

InGaAs/GaAs 量子链的光学特性研究*

王宝瑞^{1)†} 孙 征¹⁾ 徐仲英¹⁾ 孙宝权¹⁾ 姬 扬¹⁾ Z. M. Wang²⁾ G. J. Salamo²⁾

1) 中科院半导体研究所 超晶格国家重点实验室 北京 100083)

2) Department of Physics, University of Arkansas)

(2007 年 6 月 7 日收到 2007 年 8 月 7 日收到修改稿)

研究了 InGaAs/GaAs 量子链的稳态和瞬态光谱特性,特别是载流子的动力学过程.实验发现荧光寿命有很强的探测能量依赖关系,荧光寿命随发光能量的增加而减小;实验还发现,当激发功率较小时,荧光寿命随激发功率增大而增大,当激发功率足够大时,荧光寿命趋于饱和.这些结果清楚地表明,在量子链结构中,参与发光的载流子之间存在明显的耦合和输运现象,进一步分析表明,这种输运主要是由于载流子沿量子链方向的耦合造成的.发光的偏振特性研究进一步证实了载流子沿量子链方向输运过程.

关键词: InGaAs/GaAs, 量子点, 量子链

PACC: 7847, 7855

1. 引 言

In(Ga)As/GaAs 量子点结构是一种已经得到广泛研究和应用的新型纳米结构,虽然人们可以通过控制生长条件,控制量子点的密度,大小,改善均匀性,但一般来说,量子点在二维浸润层上是随机分布的.在多层量子点结构中,由于应力场的作用,量子点可以在垂直方向有序排列,此时,GaAs 层的厚度一般比较薄,有利于应力场的传递.近年来人们发现^[1-3]在一定的生长条件下,多层量子点结构中的量子点在横向方向也可以有序排列,从而形成链状量子点结构,这里我们称之为量子链.通过改变 In 含量、GaAs 层厚度和生长温度等可以改变量子链之间的间距、同一个链上的量子点间隔和量子链的长度^[3,4],从而影响其电子结构和光学性质.一般情况下,在多层量子点结构中,载流子在纵向会产生明显的耦合,而在量子链结构中,由于同一链上的量子点之间间隔可以很小,从而导致载流子之间的横向耦合,表现出独特的光学特性.本文主要研究载流子沿量子链方向输运对光学特性的影响.

2. 实 验

本文中所用的 In_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs 多层量子点结

构样品用分子束外延(MBE)生长,衬底是 GaAs(100)半绝缘衬底.衬底上先生长 0.5 μm GaAs 缓冲层,然后在 500℃ 温度下生长 16 周期的 In_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs 量子点,InGaAs 和 GaAs 层的厚度分别为 10 ML 和 120 ML,ML 是单分子层厚度,最后生长一层 10 ML 的 In_{0.4}Ga_{0.6}As 量子点,以便于用原子力显微镜(AFM)来观察样品的表面形貌.具体的生长细节和生长条件已在文献[3]报道.两层 InGaAs 量子点间的 GaAs 势垒层之所以选择 120 ML,主要是为了阻止载流子在各层量子点之间沿生长方向的输运,这样可以认为这个多层量子点样品各层之间是独立的,其所对应的光学性质主要反映了同一层内载流子的特性.AFM 分析表明^[3,5],InGaAs 量子点沿 [01 $\bar{1}$] 方向排列,形成链状结构,链的长度大约有 3—5 μm,两个相邻的量子链之间的平均距离大约为 70 nm,而同一条链上两个相邻量子点之间的平均距离(中心到中心)大约为 40 nm,量子点平均直径为 40 ± 5 nm,高度为 8.1 ± 1.1 nm,由此可以看出,同一链上的量子点之间会有明显的耦合作用.

稳态光致发光光谱测量时,分别用固态半导体绿光激光器和掺钛蓝宝石锁模激光器来激发样品,样品温度在 10—300 K 范围内可调,荧光信号经 SPB300 单色仪后,用液氮制冷的 InGaAs 光电倍增管探测.时间分辨光谱用频率上转换系统进行测量,激

* 国家自然科学基金(批准号 10334040)和国家重点基础研究发展计划(973)项目(批准号 G001CB3095)资助的课题.

† E-mail: brwang04@red.semi.ac.cn

发光是掺钛蓝宝石飞秒激光器发出的激光脉冲, 激发光波长 750 nm, 脉宽 100 fs, 系统分辨率大致与激光脉冲宽度相当。

3. 结果与讨论

图 1 给出了 10 K 时不同激发功率下样品的稳态光荧光光谱, 用 532 nm 激光激发。可以看到, 随着激发功率的增加, 光谱明显展宽, 高能端发光相对增强。当激发强度大于 10 mW 时, 可以明显看到一个高能发光峰。上述现象可以用载流子在不同量子点之间的布居和能带填充效应来解释: 一般来说, 量子点大小不是完全均匀的^[6,7], 并对应不同的能级。低激发时, 光致载流子主要布居在大量子点所对应的较低能级, 随着激发强度增加, 低能级开始饱和, 小量子点所对应的高能级开始填充, 高能端发光增强, 光谱展宽。当激发强度足够大时, 荧光光谱出现一个明显的高能发光峰, 由于此发光峰位置随激发功率的增加一直向高能端移动, 所以可以排除激发态发光的可能性, 一种可能的解释是此发光峰对应不同尺寸较小的量子点群发光, 因为在多层量子点结构中, 一般而言, 上面几层的量子点尺寸较大, 而底部较小, 所以稳态光谱有可能形成多峰结构。应当指出, 上述稳态光谱实验结果还不足以给出载流子在不同量子点之间运输的信息, 为此我们进一步开展了时间分辨光谱实验。

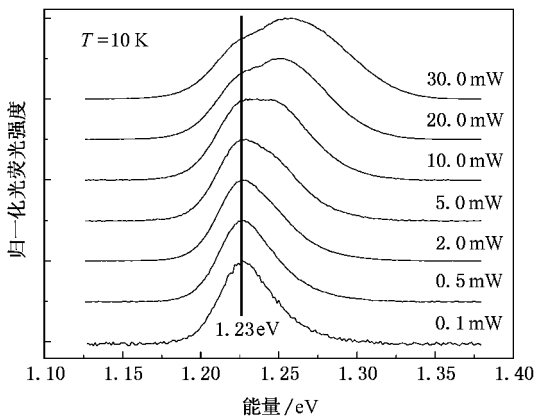


图 1 $T = 10$ K 时, 不同激发功率下样品的稳态光荧光光谱(为便于观察图中曲线在垂直方向做了移动)

图 2(a) 是 10 K 低激发时不同能量位置探测的荧光衰退曲线, 激发波长为 750 nm, 激发功率为 0.5 mW。图中荧光衰退呈单指数衰退, 可以根据(1)式拟合得到相应的荧光寿命。

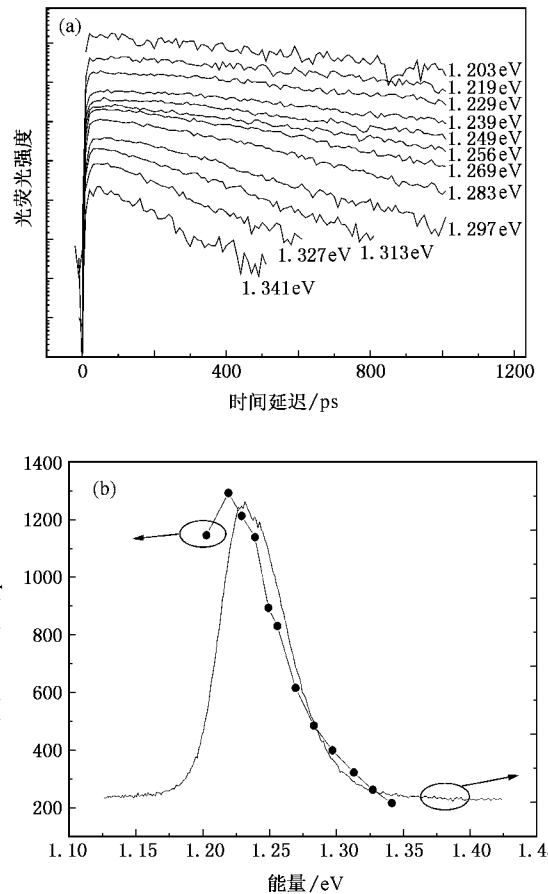


图 2 (a) $T = 10$ K 时, 不同能量位置的荧光衰退曲线(为便于观察图中曲线都在垂直方向做了移动) (b) $T = 10$ K 时, 不同能量位置对应的荧光衰退寿命

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau), \quad (1)$$

$I(t)$ 表示 t 时刻的发光强度, t 是时间, τ 是载流子复合寿命。图 2(b) 画出了不同能量位置对应的荧光寿命, 可以发现, 荧光寿命有很强的探测能量依赖关系。荧光衰退寿命随发光能量的增加而减小。荧光衰退寿命随发光能量的变化清楚地表明参与发光的载流子在量子点之间相互有运输。如果参与发光的量子点之间没有载流子运输, 则在其有限的线宽范围内, 测得的发光寿命基本不随探测能量变化^[8,9]。如果不同量子点之间存在相互耦合, 则载流子就会相互运输, 位于高能端的载流子在复合发光的同时, 还会弛豫到能量较低的能级, 其结果是荧光衰退变快, 而低能级位置由于不断有载流子供给, 荧光衰退就变慢。有实验报道^[8-12], 在多层量子点结构中, 当 GaAs 势垒层厚度不太大时 (~ 10 nm), 垂直方向排列的量子点中的载流子会相互耦合、相互运输, 从而造成荧光衰退寿命有明显的能量关系, 尽管表现形式有所不同, 无论呈 bell-like^[8,12] 或 step-like^[10] 关系,

总的趋势都是荧光衰减寿命随发光能量的减小而增加,这一点与我们的实验结果完全一致.前面我们已经指出,在我们的样品中,由于 GaAs 势垒很厚(120 ML),可以排除载流子之间的纵向输运,而在量子链方向,由于量子点之间间距很小,基本上与量子点尺寸相比拟,所以有理由相信,载流子在量子链方向存在明显的耦合作用,从而导致沿量子链方向的载流子弛豫和输运.

图 3 是不同激发功率下的荧光衰减寿命,探测能量选在低激发时的峰值位置,即 1.23 eV 处.图中可以看到,当激发功率较小时,荧光寿命较短(约 800 ps),随着激发功率增大,荧光寿命也随之变大,进一步增大激发功率(大于 2 mW)荧光寿命基本饱和,大约是 2 ns 左右.这一现象可以作如下解释:当激发功率较小时,光致载流子主要布居在大量子点所对应的较低能级,随着激发强度增加,低能级开始饱和,小量子点所对应的高能级开始填充,高能端发光增强,光谱展宽,这一点已经在激发功率关系实验中得到证实(图 1).由于量子链上不同量子点之间存在相互耦合,从而增强了光生载流子在各个量子点之间的转移.随着激发功率增大,光生载流子数目也在增加,通过载流子波函数的耦合,载流子会从高能量子点向低能量子点转移(如图 3 中插图所示),探测能量位置处的载流子有效供给加大,使得荧光衰减减慢,荧光寿命增加.但由于态密度的限制,随着激发强度的进一步增大,这种由高能级向低能级的载流子转移过程会趋于饱和,从而导致发光寿命基本不变.

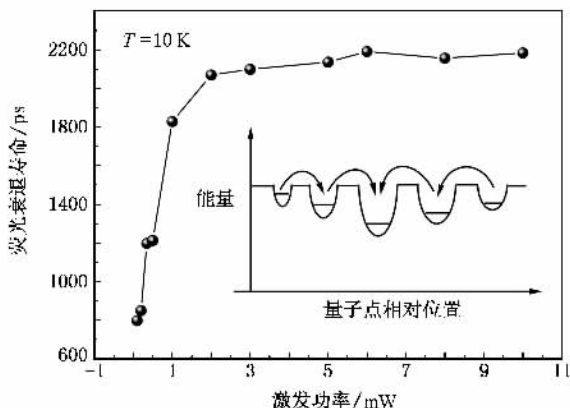


图 3 稳态光荧光光谱中 1.23 eV 处不同激发功率下的荧光衰减寿命(插图给出了光生载流子在大小量子点之间迁移的模型)

图 4 是 $T = 10 \text{ K}$ 时,对应稳态光荧光光谱中 1.23 eV 能量位置的不同激发功率下的荧光上升时

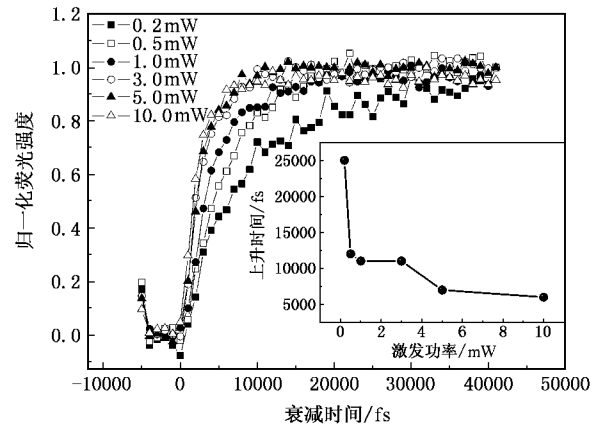


图 4 $T = 10 \text{ K}$ 时,稳态光荧光光谱中 1.23 eV 处不同激发功率下的荧光上升时间(插图为不同激发功率下荧光强度从 10% 上升到 90% 所用的时间)

间.可以看到,随着激发功率的增加,上升时间在明显变短.为简单起见,我们取荧光强度从 10% 上升到 90% 这一范围内所需的时间为荧光上升时间,并在插图中画出了荧光上升时间随激发功率的变化,荧光上升时间随激发功率的增加而快速减小,这一结果表明,在所研究的量子点结构中,载流子弛豫非常有效.进一步研究表明,在量子点基态能级和浸润层能级之间,存在大量的准连续态^[5],正是由于这些能级的存在,使得载流子弛豫过程中不会发生瓶颈效应.

前面已经指出,量子链结构中量子点沿量子链方向有很强的耦合,而链与链之间间距又很大,于是我们有理由相信这种量子链结构在一定程度上会表现出某些量子线的特性,为此我们研究了发光的偏振特性.在实验中,我们在单色仪前放了线偏振片和一个 $\lambda/2$ 波片,通过旋转波片,使进入单色仪的荧光偏振方向不变,从而消除了光栅对荧光两个偏振分量的影响.实验结果如图 5 所示,分别用 532 nm (a) 和 750 nm (b) 激发.显然,发光有明显的光学各向异性,两个偏振分量的荧光强度有明显不同.实验中,我们以激光的偏振方向平行于量子点链的排列方向即 $[01\bar{1}]$ 方向激发样品,分别测得 $[01\bar{1}]$ 和 $[011]$ 的偏振荧光光谱.荧光偏振度 P 用下式来定义:

$$P = (I_{[011]} - I_{[01\bar{1}]}) / (I_{[011]} + I_{[01\bar{1}]}) \quad (2)$$

$I_{[011]}$ 和 $I_{[01\bar{1}]}$ 分别是平行于 $[011]$ 和 $[01\bar{1}]$ 方向的偏振光的荧光强度.根据(2)式可以算出图 5 (a) 和 (b) 中的偏振度分别为 25.3% 和 17%.

不同波长激发下的荧光偏振度不同的原因是因为样品对不同波长激光吸收系数不同,于是样品的

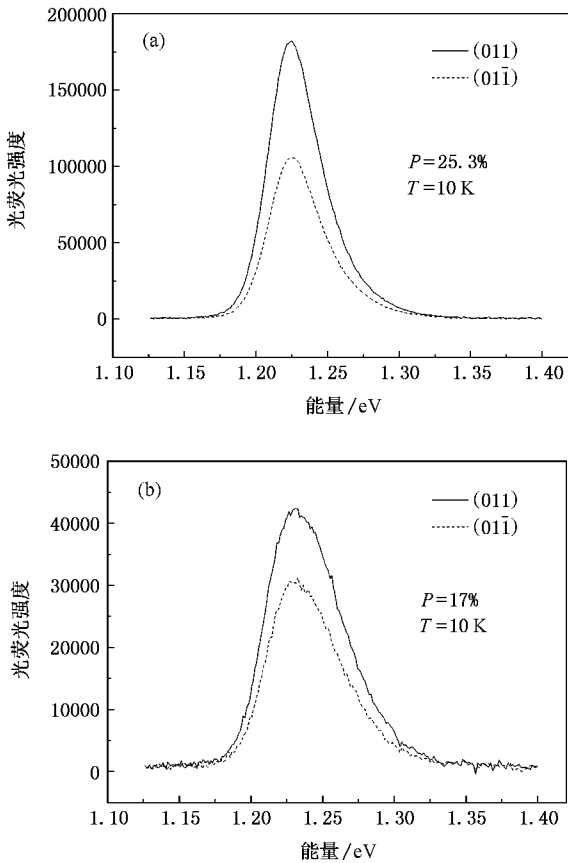


图5 不同激发条件下样品的偏振特性 (a) 532 nm 连续光激发 (b) 750 nm 脉冲光激发

激发深度也不同. 根据文献 [13] 提供的数据, 当用 750 nm 波长激发样品时, 样品中的 16 层量子点结构全部被激发, 而 532 nm 连续激光只能穿透最上面的 6—8 层量子点结构. 详细的结构分析表明, 在多层量子点结构生长过程中, 最初几层并不形成链状结构, 因此各向异性特性不明显, 当层数足够多时, 上面的量子点就会成链状排列, 形成稳定的量子链结构, 因此光学上会表现出明显的各向异性. 532 nm 激发时, 上面几层量子链结构被激发, 因此有较大的偏振度, 而采用 750 nm 激光激发时, 由于上下各层全部被激发, 总的偏振度就会减小.

4. 结 论

本文用稳态光荧光和时间分辨光谱研究了 InGaAs/GaAs 链状量子点结构的光学特性, 探讨了载流子沿量子链方向输运对光学特性的影响. 实验发现荧光衰减寿命有很强的探测能量依赖关系和激发强度关系, 这些结果表明, 在量子链结构中, 参与发光的载流子之间存在明显的耦合和输运现象, 这种输运主要是由于载流子沿量子链方向的耦合造成的. 偏振光谱研究进一步证实了量子点沿量子链方向有很强的耦合, 表现出类似量子线的各向异性发光特性.

- [1] Ma W Q, Nötzel R, Trampert A, Ramsteiner M, Zhu H J, Schönherr H P, Ploog K H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 1297
- [2] Mazur Y I, Ma W Q, Wang X, Wang Z M, Salamo G J, Xiao M, Mishima T D, Johnson M B 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 987
- [3] Wang Z M, Holmes K, Mazur Y I, Salamo G J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1931
- [4] Wang Z M, Mazur Y I, Holmes K, Salamo G J 2005 *J. Vac. Sci. & Technol. B* **23** 1732
- [5] Mazur Y I, Liang B L, Wang Z M, Guzun D, Salamo G J, Tarasov G G, Zhuchenko Z Y 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 54316
- [6] Marzin J Y, Gerard J M, Izrael A, Barrier D, Bastard G 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 716
- [7] Xu Z Y, Lü Z D, Yang X P, Yuan Z L, Zheng B Z, Xu J Z, Ge W K, Wang Y, Wang J, Chang L L 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11528
- [8] Gurioli M, Sanguinetti S, Grilli E, Guzzi M, Taddei S, Vinattieri A, Colocci M, Frigeri P, Franchi S 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2262
- [9] Atsushi Tackeuchi, Yoshiaki Nakata, Shunichi Muto, Yoshihiro Sugiyama, Tatsuya Usuki, Yuji Nishikawa, Naoki Yokoyama, Osamu Wada 1995 *Jpn. J. Appl. Phys.* **34** L1439
- [10] Mazur Y I, Tomm J W, Petrov V, Tarasov G G, Kissel H, Walther C, Zhuchenko Z Y, Masselink W T 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3214
- [11] Yim J S, Jang Y D, Lee D, Lee H G, Noh S K 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 23518
- [12] Nakaoka T, Tatebayashi J, Arakawa Y, Saito T 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 150
- [13] Gallium Arsenide 1987 *Key Papers in Physics*, edited by J. S. Blakemore (AIP, New York, 1987) p406



Optical properties of InGaAs/GaAs quantum chains^{*}

Wang Bao-Rui¹† Sun Zheng¹ Xu Zhong-Ying¹ Sun Bao-Quan¹ Ji Yang¹ Z. M. Wang² G. J. Salamo²

¹ *State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,*

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China

² *Department of Physics, University of Arkansas*

(Received 7 June 2007; revised manuscript received 7 August 2007)

Abstract

We have investigated the steady-state and transient optical properties of InGaAs/GaAs quantum chains and found that the photoluminescence (PL) decay time exhibits a strong photon energy dependence. It increases with the decrease of the emission energy. It is also found that the PL decay time increases with the excitation power. When the excitation power is large enough the PL decay time tends to be saturated. All these experimental results show that there is a strong carrier coupling along the chain direction in the quantum dot chain structure. The polarization PL measurements further confirm the carrier transfer process along the chain direction.

Keywords : InGaAs/GaAs, quantum dots, quantum chains

PACC : 7847, 7855

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10334040) ,the Special Fund for Major State Basic Research Project of China (Grant No. G001CB3095).

† E-mail :brwang04@red.semi.ac.cn