Vol.31, Suppl. March, 2004

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0443-04

垂直堆垛 InAs 量子点的光学性质

李树玮1. 小池一步2

(¹中山大学光电材料与技术国家重点实验室,广东广州 510275 ²大阪工业大学新材料研究中心,大阪旭区大宫,535-8585 日本)

摘要 垂直堆跺 InAs 量子点是用分子束外延(MBE),通过 Stranski-Krastanov (S-K) 方式生长。利用光致发光(PL)实验对 InAs 量子点进行了表征。在生长过程中使用对形状尺寸控制的方式来提高垂直堆垛 InAs 量子点形貌均匀性。样品的外延结构是 Si 掺杂 GaAs 衬底生长 500 nm 的过渡层,500 nm 的 GaAs 外延层,15 nm 的 Al₀₅Ga₀₅As 势垒外延层,5 个周期的 InAs 量子点生长后 2 单层 GaAs 的外延结构,50 nm 的 Al₀₅Ga₀₅As 势垒外延层,最后是 15 nm 的 GaAs 覆盖层。外延结构中 Al₀₅Ga₀₅As 势垒外延层对镰 嵌在里面的 InAs 量子点有很强的量子限制作用产生量子效应。PL 测量系统使用 514.5 nm 的 Ar 离子激发源。发现了量子点基态 光致发光峰等距离向红外方向劈裂等新的物理现象。利用光致发光通过改变势垒的宽度和掺杂情况,研究了外延结构的光致发光 特性,得到二维电子气(2DEG)随势能变化局域化加强等的新结果。

关键词 半导体材料;光致发光;垂直堆垛的 InAs 量子点;分子束外延(MBE)
中图分类号 O472*.3
文献标识码 A

Photoluminescence Characterization of Vertically Stacked InAs Quantum Dots

LI Shu-wei¹, Koike Kazuto²

¹ The State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Zhongshan University,

Guangzhou, Guangdong 510275, China

² New Materials Research Center, Osaka Institute of Technology, Asahi-ku Ohmiya, Osaka 535–8585, Japan

Abstract The epilayer of vertically stacked, self-assembled InAs Quantum Dots (QDs) was grown by MBE with solid sources in non-cracking K-cells. An attractive feature of vertically stacked InAs/AlGaAs quantum dots, which were buried in AlGaAs high potential barrier and spacer epilayer, exhibits an unknown macroscopic quantum phenomenon. In the vertically aligned QDs, due to many-body effect and quantum-mechanical renormalization, the electron ground state splits into series of peaks of which the intensity gradually, systematically decreases to redshift direction with a wavelength constant. Photoluminescence (PL) of quantum dots embedded in high potential barriers is studied as functions of barrier thickness and temperature. With the increase of barrier thickness, both of strengthened two-dimensional electron gas (2DEG) structure and strongly localized electron wave functions can increase the carrier recombination. The PL recombination characteristic of the samples with the barriers adjacent to a Si-doping GaAs layer is different from that of samples with barrier adjacent to an i-GaAs layer.

Key words semiconductor materials; photoluminescence; vertically stacked InAs quantum dots; molecular beam epitaxy (MBE)

1引言

垂直堆垛自组织 InAs 量子点具有很强的三维 量子限制作用已经引起人们的极大兴趣ⁿ⁻³¹,不仅具 有丰富的物理现象,而且在光电子方面有重大的应 用背景。垂直堆垛 InAs 量子点是在分子束外延 (MBE)设备上通过 Stranski-Krastanov (S-K) 生 长方式生长的¹⁴¹。通过尺寸控制生长技术得到分布 和状态很好的量子点,垂直堆垛量子点被镶嵌在高 势能的 AlGaAs 外延层势垒里,表现出与单层量子 点不同的现象,也就是垂直堆垛的 InAs 量子点,在 柱内量子点之间存在耦合效应,表现出更强的量子 限制作用和其他现象。当垂直堆垛的被高势能镶嵌 的量子点生长在 n 掺杂的 GaAs 层旁边,丰富的能 量共振电子可以隧穿势垒,使局域和非局域的电子 相互作用,加上强的量子限制作用及多体粒子相互 作用便产生了量子点基态光致发光峰等距离向红 外方向劈裂等新的物理现象。Alu5Ga05As 势垒外延

作者简介: 李树玮(1967-),男,中山大学教授,博士生导师,主要从事光电子材料生长与器件应用方面的研究。 E-mail:stslsw@zsu.edu.cn 中

层对镶嵌在里面的 InAs 量子点产生很强的量子限 制作用,利用光致发光通过改变势垒的宽度和掺杂情况,研究了外延结构的光致发光特性,得到二维电子 气(2DEG)随势能变化局域化加强等的新结果。

2 垂直堆垛 InAs 量子点外延生长

垂直堆垛 InAs 量子点在 MBE 外延生长所使用 的是 Al,Ga,In,和 As₄ 固体源,在生长过程中用反射 式高能电子衍射仪(RHEED)实时监控¹⁴。在生长过 程中使用对形状尺寸控制的方式来提高 5 个周期垂 直堆垛 InAs 量子点统一性。尺寸控制的方法是在生 长完 AlGaAs 外延层后生长两层 GaAs 外延层,将原 子活性比较强的铝原子覆盖掉,增加了外延生长的 平整度,为后面量子点的生长创造出平滑的表面。图 1 是 5 个周期垂直堆垛 InAs 量子点的外延结构图, 外延结构是 Si 掺杂 GaAs 衬底上生长 500 nm 的 Si-GaAs 过渡层,500 nm 的 GaAs 外延层,15 nm 的 Al₀₅Ga₀₅As 势垒外延层,5 个周期的 InAs 量子点及 生长后的 2 单层 GaAs 的平滑层和 Al₀₅Ga₀₅As 填充 层,50 nm 的 Al₀₅Ga₀₅As 势垒外延层,最后是 15 nm 的 GaAs 覆盖层。

在 5 层周期结构中的每一层之间是用 Al₀₅Ga₀₅As 层来分离,量子点是生长在钝化的 GaAs 表面。每一层的量子点的生长是在 As₄In 压力比大 约为 50 的情况下生长的,生长速率是大约每秒 0.1ML。用原子力显微镜(AFM)获得表面形貌的照片 观察中,从第 1 层量子点的形貌图和第 5 层的形貌 图的对比来看,量子点的分布、尺寸、大小几乎没有 变化,也就是说垂直堆垛生长的量子点质量非常高。 因为 AFM 不能在生长中进行在位观测,只能在相同 的生长条件下分别在生长完每一层后,马上取出样 品进行 AFM 观测,然后再生长再观测。高质量的堆 垛量子点,在柱内部可以产生很强量子耦合效应,为 后面的表征和器件应用奠定坚实的材料基础。



图 1 尺寸控制的 5 个周期垂直堆垛 InAs 量子点的结构图 Fig.1 Structure of 5-period vertically stacked size-controlled QDs samples

3 光致发光实验

光

光致发光(PL)测量系统是使用 514.5 nm 的氩离 子激光器作为激发源,致冷是 20~300 K 的氦循环致 冷系统。在光致发光实验中,一般来说量子点的 PL 峰 对应 GaAs 带边发射 PL 峰是弱的,这是由于量子点 中载流子复合的瓶颈效应是影响 PL 发光效率的关键 因素⁶⁰,所以量子点光致发光的效率并不是很高。

垂直堆垛自组织量子点:将具有三维限制的量 子点垂直堆跺生长,使其具有更强的量子限制效 应,同时垂直堆跺的一组量子点也可以作为一个人 工大分子。从图 2 中观测到了量子点电子基态能级 劈裂现象。在 60K 曲线中基态光致发光峰劈裂成 21K 光致发光曲线中的向红外方向的相等波长差的 8个峰。激光激发强度为 26mW。21K 光致发光曲线 中,垂直堆垛 InAs 量子点的基态能级由于多粒子 相互作用相变产生的等波长差劈裂新现象,在过去 对半导体材料理解中,带隙电子和空穴的基态光致 发光的符合应该是能量最低的,这一基态发光峰是 不能劈裂的,也就是说基态有一个最基本的稳定发 光峰是不能朝红外方向分裂的,但是在量子点中却 发现这个最基本的基态发光峰能朝红外方向分解 成波长差相等的最多达八个发光峰。当垂直堆垛的 被高势能深埋的量子点生长在 n 掺杂的 GaAs 层旁 边时,丰富的共振能量电子可以隧穿势垒,局域和 非局域的电子相互作用,加上强的势垒量子限制作 用及多体粒子相互作用便产生了量子点基态光致 发光峰等距离差向红外方向劈裂等新的物理现象。 另外在理论方面,这种现象表现了共振电子隧穿到 人工大分子相变过程中量子力学机制从新分布,这 需要用多体粒子相互理论来解释。但是观测到的这种



图 2 5 个周期垂直堆垛 InAs 量子点的光致发光实验,下面 21 K 曲线中产生了基态能级的劈裂现象,激光激发强 度为 26 mW。右上角是发生劈裂时的能级示意图

Fig.2 PL spectra. Temperatures of two curves are at 21K and at 60K, the laser excitation power is 26 mW, and the peak distance of the ground state splitting is about 46.9 nm. The inset is energy level diagram

445

基态能级劈裂现象有时是不稳定的,在一定的条件下可以重复该现象的发生,另外劈裂现象只会发生在一段时间内。右上角的小图是发生基态能级劈裂时的能带结构图,可以看到能级的劈裂是在带隙内的方向上发生的,是等波长的,不是等能量能级的。

出于对垂直堆跺量子点结构浓厚的兴趣,我们 从三方面去研究量子点结构对发光的影响,第一是 通过垂直堆跺 5 周期量子点掩埋的上下势垒的厚 度变化来研究其对堆跺量子点发光特性的影响,势 垒的厚度分别是 0,3,7,15,50 nm。第二是研究下 面势垒 (量子点和衬底方向砷化铟外延层之间的势 垒)的变化为 3,7,15,50 nm 和相邻砷化镓层为掺 杂情况下的量子点光致发光变化。第三是研究上、 下两个势垒在掺杂情况下厚度分别为 3,7,15,50 nm 时对量子点光致发光变化的影响。

图 3 是垂直堆跺 5 周期量子点掩埋上下势垒 的厚度变化对堆跺量子点发光特性的影响,势垒的 厚度分别是 0,3,7,15,50 nm。当厚度为 0 时,也就 是没有生长势垒情况时,在量子点结构外的外延层 导带和价带里光致发光产生的大量光生载流子,在 没有势垒阻挡情况下直接掉到量子点的湿层和基态能级里,发生发光复合。随着势垒厚度从 3 nm 逐 渐增加到 50 nm;光致发光产生的载流子在 3 nm 的情况下穿越势垒的能力最强,当达到 50 nm 时越 来越弱,基态能级的光致发光复合逐渐减弱。在 0 时(没有势垒)光致发光的复合强度是有势垒情况 下的 8 倍多。同时观察到图 3 中 1.42eV 较宽范围的 湿层光致发光;3 nm 情况下,光致发光载流子产生



图 3 垂直堆踩量子点的上、下势垒的厚度变化对发光特性 影响,左上图是实验和电子能级变化的示意图 Fig.3 PL spectra of the variation of upper and bottom side barrier thickness with 0, 3, 7, 15, and 50 nm. The recombination without barriers is very strong compared with that of the other 4 samples. With increasing barrier thicknesses, the recombination produces the different appearance. The inset is energy level diagram 共振穿越势垒来回渡越的频率非常大,光生载流子 复合的几率变小,当势垒逐渐变化到 50 nm 时,这 样厚的势垒对载流子穿越势垒几率产生严重影响, 湿层的量子限制作用逐渐增强,湿层的复合也逐渐 增强。同时研究 1.51 eV 附近的 AlGaAs 势垒和 i-GaAs 外延层之间的二维电子气(2DEG)结构的 光致发光情况,2DEG 的载流子复合也因为随势垒 增加而产生量子限制作用的增强而增强。在 3 nm 情况下,光致发光载流子很容易穿越势垒,发生光 致发光的几率很小,当到 50 nm 时,二维电子气的 量子限制最强,光致发光的强度最大。

图 4 中的 4 条曲线分别是下面势垒 3,7,15, 50 nm 时的光致发光图。由于下面势全挨着硅掺杂 砷化镓层,有着大量的光生电子,数量比上面图3 情况的大得多,所以产生的光致发光的强度比图 3 情况要强得多。在3nm情况下,光生载流子共振穿 越势垒达到基态能级,由于这种隧穿能量非常强, 基态能级由于瓶颈效应,这些载流子不能马上复合 发光,在基态能级上这些载流子又共振隧穿回原来 的位置。由于势垒比较小,隧穿来回的频率非常大, 导致在基态能级发生载流子复合几率非常小。当势 垒逐渐变化到 50 nm 时,厚的势垒对载流子穿越势 垒几率产生严重影响,载流子不能容易地来回隧穿 势垒,势垒对基态的量子限制作用逐渐增强,所以 被加强限制的光生载流子产生的复合率逐渐增强, 对应的基态发光强度也逐渐增强。同时二维电子气 随着势垒增加,量子限制作用逐渐加强,产生的光 致发光复合逐渐增强。

图 5 是在势垒进行掺杂,上和下势垒厚度发生 变化时堆跺量子点对光致发光影响的实验图,这种 情况比较复杂。从 3 nm 的光致发光可以观测到基



图 4 只有下面势全 3,7,15,50 nm 时的光致发光图,左上图 是实验和电子能级变化的示意图

Fig.4 PL spectra of the variation of bottom side barrier with 3,7,15, and 50 nm adjacent to a Si-doped GaAs layer. The inset is energy level diagram



图 5 在势垒进行搀杂情况下,上和下势垒变化对光致发光 影响的实验图,左上图是实验和电子能级变化的示意图 Fig.5 PL spectra of the variation of the doped upper and bottom side barrier with 3,7,15, and 50 nm adjacent to a Si-doped GaAs layer. The inset is energy level diagram

态和湿层的发光,当到 50 nm 时只观测到湿层的光 致发光,可以解释为此时势垒上的大量光生载流子 没有隧穿势垒的效应直接从势垒导带注入到量子 点中进行发光复合,但是由于湿层到基态弛逾时间 很长,并且在基态载流子由于瓶颈效应进行光致发 光的复合率非常小,光生载流子直接在湿层复合 掉,产生了曲线中主要的发光峰。

4 结 论

用 MBE 设备以 Stranski-Krastanov 生长方式 外延生长了 5 个周期垂直堆垛的 InAs 量子点,生长 过程中用控制形状尺寸方法来提高垂直堆垛 InAs 量子点的均匀性。Al₀₅Ga₀₅As 势全外延层对镶嵌在 里面的 InAs 量子点有很强的量子限制作用,产生量 子效应。将具有三维限制的量子点垂直堆跺生长,使 其具有更强的量子限制效应,同时垂直堆跺的一组 量子点也可以作为一个人工大分子。发现了量子点 基态光致发光峰等距离向红外方向劈裂等新的物理 现象。利用光致发光通过改变势全的宽度和掺杂情 况,研究了外延结构的光致发光特性,得到二维电子 气(2DEG)随势能变化局域化加强等的新结果。

参考文献

- 1 Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen *et al.*. Vertically self-organized InAs quantum box islands on GaAs (100) [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995,**75**: 2542~2545.
- 2 G. Solomon, J. Trezza, A. Marshall *et al.*. Vertically aligned and electronically coupled growth induced InAs islands in GaAs[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**: 952~955.
- 3 K. Koike, K. Saitoh, S. Li et al.. Room-temperature operation of a memory-effect AlGaAs/GaAs heterojunction field-effect transistor with self-assembled InAs nanodots [J]. Appl.Phys. Lett., 2000, 76: 1464~1466
- 4 K. Koike, S. Li, M. Yano. Molecular beam epitaxial growth and characterization of the vertically aligned InAs quantum dots embedded in Al_{a5}Ga_{a5}As[J]. Jpn.J.Appl.Phys., 2000, **39**: 1622~ 1628
- 5 G. Medeiros-Ribeiro, D. Leonard, P. Petroff. Electron and hole energy level in InAs self-assembled quantum dots [J]. Appl. Phys.Lett., 1995, 66: 1767-1769