

应力缓冲层对自组装 InAs 量子点发光性质的影响

姚建明¹ 孔令民^{1*} 屠 华¹ 吴正云²

(¹ 浙江海洋学院物理系, 浙江 舟山 316000; ² 厦门大学物理系, 福建 厦门 361005)

摘要 采用变温及时间分辨光致发光测量手段,研究了分子束外延(MBE)设备生长的具有不同盖帽层的 InAs 量子点样品。发现 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 盖帽层可以减小 InAs 量子点所受的应力、降低位错及缺陷的产生,使发光峰强度增大。但 x 值过大($x \geq 0.3$)将导致材料质量降低,产生多峰结构。随着温度升高,载流子在 GaAs 势垒层和量子点之间迁移,而介面势垒阻碍载流子的迁移。研究了 InAs 量子点的时间分辨谱,发现了覆盖低 In 组分 InGaAs 层及 AlAs 层的量子点发光衰退谱符合双指数衰退规律,分析了不同量子点的发光具有不同衰退规律的原因。

关键词 薄膜;应力缓冲层;时间分辨光致发光谱;InAs 量子点

中图分类号 O472⁺.3 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS200929s1.0156

Photoluminescence Characteristics of Self-Assembled InAs Quantum Dots Capped with Different Strain Reducing Layer

Yao Jianming¹ Kong Lingmin¹ Tu Hua¹ Wu Zhengyun²

(¹ Department of Physics, Zhejiang Ocean University, Zhoushan, Zhejiang 316000, China)
(² Department of Physics, Xiamen University, Xiamen, Fujian 361005, China)

Abstract Self-assembled InAs quantum dots (QDs) overgrown by different strain reducing layer have been prepared on GaAs substrate by molecular beam epitaxy (MBE). Photoluminescence (PL) measurements shows that PL intensity is enhanced by $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ cap layer, which may be attributed by reducing strain and defect among the QDs. However, the larger x ($x \geq 0.3$) may result in a lower material quality of excessive relaxation and generating an interface potential barrier near QDs. It has been found that the carriers may migrate between GaAs barrier and InAs QDs, while the interface potential barrier retards the migration. It has been found that the PL decay spectra of InAs QDs with a low-In-component InGaAs or AlAs cap layer follow the second exponential decay process. Time-resolved PL measurements were also used to analyze the special PL decay of InAs QDs with different strain reducing layer.

Key words thin films; stain reducing layer; time resolved photoluminescence spectra; InAs quantum dots

1 引 言

近年来,由于量子点结构具有许多新颖的物理现象以及潜在而诱人的器件应用前景,引起了人们极大兴趣^[1~4]。然而要实现理论预言的水平,自组装量子点(SAQD)仍然面临着诸多挑战。对于激光器来说,为避免热布局效应,降低阈值,其基态和第一激发态的能级间距至少大于 $K_B T$ (室温约为 26 meV),并且谱线半峰全宽(FWHM)要小。这就要求量子点的尺度必须在一定范围内,并且形状、尺寸分布要均匀。为此人们已经采取多种方法制备量子点^[5~13]。发现在 InAs 量子点层和 GaAs 盖层之

间加 InGaAs 或 AlAs 缓冲层可以获得发光波长较长的高发光效率材料,并且这种方法可以减小量子点发光的半峰全宽。其具体机制可能是,在 InAs 量子点上覆盖一层 InGaAs 或 AlAs 作为盖帽层,可以使量子点所承受的应变有所减小,量子点的尺寸有所增大,可以有效抑制 In 的偏析^[5,7],同时 InAlAs 可以增强载流子的量子限制,提高发光效率,不过对这种结构的瞬态光学特性研究不多。本文制备了具有不同盖帽层的 InAs 量子点样品,通过变温及时间分辨 PL 谱测量,研究了 InAs 自组装量子点的动态发光特性。

基金项目:浙江省舟山市科技局项目(06110)和浙江省教育厅科研项目(Y200804735)资助课题。

作者简介:姚建明(1960—),男,硕士,副教授,主要从事光电技术理论与应用方面的研究。E-mail:hytw001@yahoo.com.cn

* 通信联系人。E-mail:konglm0592@yahoo.com

2 样品结构与制备

量子点生长所用设备为 VG 公司的 V80H MK II 分子束外延(MBE)系统。半绝缘 GaAs(100)衬底经 580 °C 脱氧后,在 600 °C 生长 500 nm 的 GaAs 缓冲层,随后温度降至 510 °C,生长 20 nm 的 GaAs,接着生长 2 个原子单层(ML)的 InAs 层,再生长盖帽层,最后生长 GaAs 层。样品的区别在于盖帽层不同:样品 A 为 10 nm $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$,样品 B 为 10 nm $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 层,样品 C 为 3 nm AlAs 层。从高能电子衍射(RHEED)的结果来看,这三个量子点的生长状况良好。

光致发光谱的温度测量范围为 10~300 K,光谱测量系统由 APD 公司的 CSW204 闭环循环制冷系统、波长为 635 nm 半导体激光器和 Edinburgh 公司的 FL920 荧光寿命光谱仪组成。样品装在低温制冷端上,通过变温控制器控制样品的温度。激发光由半导体激光器提供,光致发光稳态信号和瞬态信号用 Hamamatsu R5509-72 NIR PMT 及采用时间相关单光子计数技术(TCSPC)测量。

3 实验结果与分析

对样品分别进行了低温光致发光、变温光致发光和时间分辨谱的测量。在 InAs 量子点上面生长 InGaAs 盖帽层的主要目的是减小量子点中来自 GaAs 盖层的应力^[8],这是由于 InGaAs 的晶格常数更接近于 InAs;而在 InAs 量子点生长 AlAs 盖帽层是为了降低 In 的组分,也就是为了减小由于 In 组分的偏析而导致应变释放而产生的位错和缺陷,但是如果 AlAs 盖层太厚,就会引起 PL 发光峰的波长变短。因而,生长的 AlAs 盖帽层很薄,其厚度小于 3 nm。

3.1 低温光致发光谱

三个样品的低温光致发光谱如图 1 所示。它们的发光峰波长在 1070 nm 附近,这比通常的量子点发光波长长。其主要原因是 InGaAs 或 AlAs 盖帽层可以减小 InAs 量子点所承受的应力,从而影响了 InAs 量子点结构的子能带位置,导致量子点发光波长变长;盖帽层的加入同时也阻止了 InAs 岛的 In 组分的偏析,降低缺陷及位错产生,这可以使量子点发光峰的强度增大,另一方面也会使发光峰波长变长^[5]。通过对图 1 中的结果进行高斯拟合,样品 A 得到了一个发光峰,样品 C 得到两个发光峰,而样品 B 需要有 4 个高斯拟合峰。并且样品 B 几个发光峰

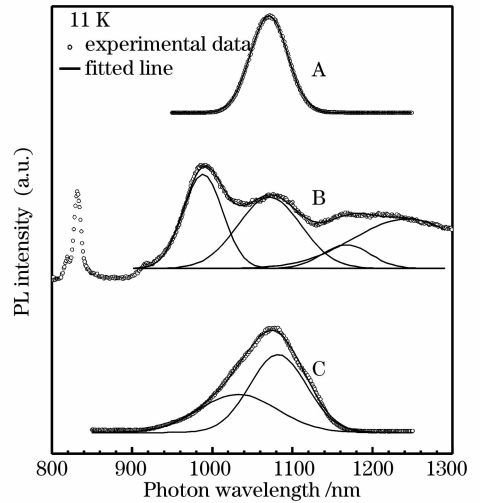


图 1 三种样品在 11 K 时的光致发光谱
Fig. 1 PL spectra of three samples at 11 K 的间距较大。

随着激发功率的改变,样品的谱形和发光波长位置均无明显变化,如图 2 所示。认为发光能量较高的发光峰并不是由激发态发光引起的,而是尺寸较小的量子点发光。同时,样品 B 高能发光峰的发光强度大于低能发光峰的发光强度。这是由于样品 B 的 In 的比重较大,引起 InAs 量子点的所受应力不均匀及导致量子点的尺寸大小分布不均匀,受应力大的量子点较多,因而高能发光峰的强度比低能发光峰的大。对于样品 C,很薄的 AlAs 层使 In 的偏析降低,高能发光峰强度比低能发光峰的小,同时 AlAs 层的加入又会提高电子空穴对的能级位置。因而,这使得高能端的发光峰不能完全消失。

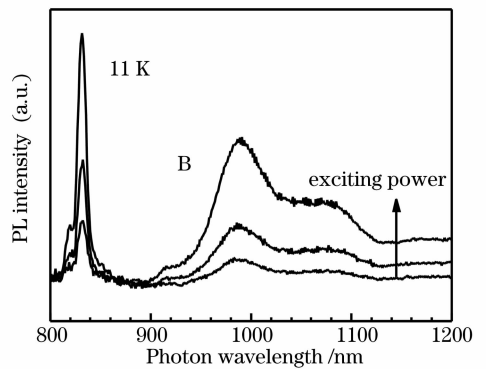


图 2 样品 B 在 11 K 时的变功率光致发光谱
Fig. 2 PL spectra of sample B at 11 K with different exciting power

通过对三个样品温度为 11 K 时 1070 nm 附近的发光峰高斯拟合可知,样品 A 发光峰的半峰全宽最小,为 49.9 meV,样品 B 的最大,为 96.7 meV,而

峰值能量则是样品 C 的最小,峰值能量最大的也是样品 B。同时注意到样品 B 在低温下具有较强的 GaAs 带边发光和多发光峰。这说明加入一定的 InGaAs 盖帽层有助于使量子点的尺寸大小趋于均匀,阻止了 InAs 岛的 In 的偏析,保持了 InAs 量子点形状^[9,11],从而使得半峰全宽减小。但 InGaAs 中 In 的比重过大一方面将会导致 InAs 岛所受应力不均匀和量子点中的介面势垒增加,使得载流子在 GaAs 层与 InAs 量子点层以及不同量子点之间的迁移速率减小,另一方面也会导致成核中心增多,量子点的大小分布不均匀,使得发光峰谱线半峰全宽增加^[7]。加入 AlAs 层也可以使量子点发光峰向长波方向移动,但半峰全宽也会随之增大。需要指出的是,加了 InAsAl 盖帽层,会使量子点的限制势增大,导致量子点的基态能级有所升高,发光蓝移。但与应力减小引起的红移相比,这种蓝移效果不明显。

3.2 变温光致发光谱

图 3 为不同样品的变温光致发光谱。从中可以看出,这三种样品有个共同的特点就是发光峰值随温度升高而迅速红移,高能发光位置比低能发光位置红移速度快,并且温度高于 100 K 时尤为明显。

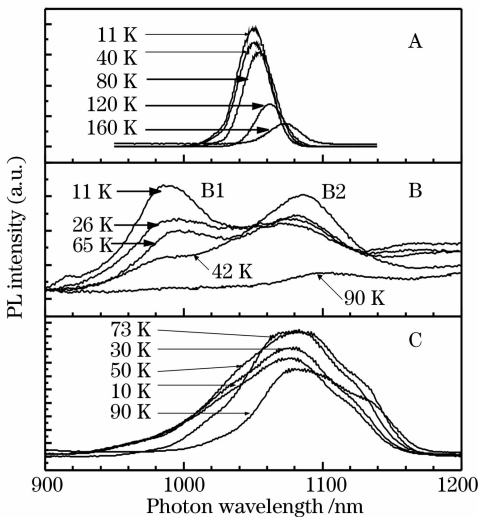


图 3 样品 A, B 和 C 在不同温度下的光致发光谱
Fig. 3 PL spectra of sample A, B and C at different temperatures

样品 A 量子点尺寸呈高斯分布。其中,由于小量子点所受量子限制比大量子点强,发光峰值较高。随着温度的升高,不同尺寸的量子点之间相互作用加强,载流子发生从小量子点向大量子点的转移,所以就导致高能边 PL 强度减弱得比低能边快。因而相对而言,也可以导致了发光峰的高能边红移速度较快。

与样品 A 不同,由于样品 B 中各层之间存在介面势垒,随着温度升高,大量的载流子克服介面势垒迁移到浸润层,并从 GaAs 势垒层通过浸润层转移到量子点中^[12],从而导致发光峰 B1 和 B2 的发光强度分别在 42~65 K 和 11~65 K 温度区间内反常增强。由于低能态大于高能态对载流子的俘获几率^[13],所以对发光峰 B2 作用更为明显。样品 C 发光峰的高能边也发现反常现象。从 10~70 K,它的发光强度一直在增加。认为除了有与样品 B 同样原因外(随温度的升高,从浸润层迁移到低能态的载流子增多),另一种机制可能是由于小量子点和大量子点之间相互作用,载流子从小量子点转移到较大的量子点以及从很大的量子点也转移到尺寸小一点的量子点。特别在 70 K 时,发光峰顶部几乎是平的,它的发光峰不是高斯线型,并且半峰全宽最小,这说明此时中间尺寸量子点中的载流子最多,辐射复合最多,发光强度也就最大。随着温度继续升高,三组样品的发光强度均降低,这是由于热运动加快、热猝灭加剧以及各种非辐射复合增加所致^[14~16]。

3.3 时间分辨谱

为了进一步研究不同盖帽层结构的 InAs 量子点载流子弛豫机制,分别测量了三组样品在不同温度下的 PL 衰减谱。通过对这三个样品的 PL 谱的研究,得出量子点的尺寸大小是按高斯分布的,在每一种样品的发光峰值处进行了时间分辨谱测量。通常,半导体材料的 PL 峰发光强度与衰减时间的变化关系可以表示为^[7,17]

$$I = I_0 + \sum_{i=1}^n A_i e^{-t/\tau_i},$$

其中每一个 τ 代表一种衰减过程。

在对样品 A 发光时间分辨谱测量数据进行拟合的过程中,发现用单指数拟合得很不理想,而用双指数拟合得很好,这说明样品 A 存在两种发光衰减过程。这是因为量子点的本征复合寿命不随温度改变,但是仪器探测到的是大量量子点的综合的发光寿命。分析认为量子点所受应力大小对它的发光寿命起着重要的作用。量子点所受应力的不同导致不同的发光寿命,量子点所受的应力大小也会影响到它的发光峰位置。相同尺寸的量子点,所受应力大的量子点发光波长较短,而受应力较小的量子点发光波长较长,所以峰值处的发光实际上包含着所受应力较小的小量子点和所有应力较大的大量子点两种发光过程。

在图 4 中给出了样品 A 在 11 K 时的衰减谱,实

验值与拟合曲线符合得很好。其中拟合结果为： $\tau_1=5.86\text{ ns}$ ， $\tau_2=1.38\text{ ns}$ 。在 $10\sim 120\text{ K}$ 区间内，随着温度升高， τ_1 减小， τ_2 增大（ 120 K 时， $\tau_1=4.44\text{ ns}$ ， $\tau_2=1.92\text{ ns}$ ）。通过分析，认为 τ_1 代表受应力小的小量子点的衰退寿命， τ_2 代表受应力大的大量子点的衰退寿命。 τ_1 随温度升高而减小，在载流子迁移过程中所受阻挡相对减小；由于在 InAs 量子点中结构中存在浸润层，而小量子点的能级位置较高，当温度升高时，在载流子更易于从小量子点热跃迁到浸润层，然后再被处于低能态的大量子点俘获^[11]。因而导致 τ_1 减小，而 τ_2 增大。温度继续升高（ $T>120\text{ K}$ ）， τ_1 减小到 1 ns 左右， τ_2 增大到 10 ns 左右，但 10 ns 的发光所占比重很小。温度继续升高（ $T>170\text{ K}$ ），所受应力很小的量子点发光很弱，以至于不能被探测，对发光有贡献的量子点尺寸趋于一致。因而只有一个发光寿命（此时为 0.99 ns ）。对于样品 B，符合单指数衰退规律，这可能是由于该样品应力过度弛豫，不同量子点中的应力差别较小引起的，这可能也是样品 B 发光性能较差的原因。

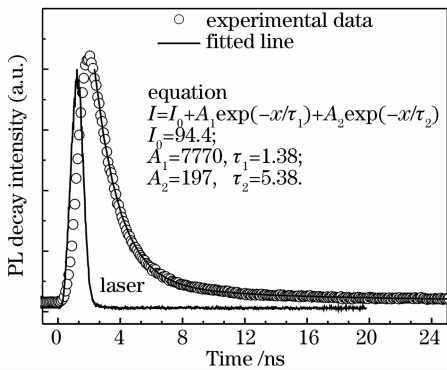


图 4 样品 A 在 11 K 时的发光衰退谱

Fig. 4 PL decay spectrum of sample A at 11 K

样品 C 的发光时间分辨谱也符合双指数衰退规律。发光能量较低的峰（ 60 K 时， 1126 nm ）从 $60\sim 140\text{ K}$ ，它的 τ_1 （ 3 ns 左右）变化很小， τ_2 增加（ $0.68\sim 1.72\text{ ns}$ ）。 τ_1 变化小说明该样品生长质量很好，界面位错和缺陷少，所以受热散射影响较小。 τ_2 一直增加可能是由于一些本来在 高能峰（ 60 K 时 1083 nm ）发光的载流子迁移到低能发光峰所引起的。这正与高能发光峰的 τ_1 减小相对应（从 3.3 ns 减小到 2.85 ns ）。高能发光峰的 τ_2 与其他两个样品的 τ_2 变化规律一致，先增大后减小。

4 结 论

通过对加 InGaAs 和 AlAs 盖帽层的 InAs 量子

点的低温光致发光谱、变温光致发光谱以及时间分辨谱的研究，发现 InGaAs 及 AlAs 盖帽层可以减小 InAs 量子点所受的应力、降低位错及缺陷的产生。量子点发光峰复合双指数衰退规律是由所受应力不同及不同尺寸的量子点发光引起的。但 InGaAs 盖帽层中 In 的组分过大又会引起 In 的偏析，使得位错及缺陷增多和材料过度弛豫，导致发光强度减小。联合盖帽层可以更有效缓冲量子点中的应力，使 InAs 量子点的发光向长波长移动且半峰全宽减小，同时可以提高载流子的限制势垒，增大发光效率。因而要得到高质量的 InAs 量子点发光材料，选择合适的盖层是需要考虑的一个重要因素。

致谢 感谢中科院半导体所牛智川研究员提供的自组装量子点样品。

参 考 文 献

- 1 Wang Kexin, Pang Fufeng, Wang Tingyun. Evanescent wave coupled semiconductor quantum dots fiber amplifier[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(3): 398~401
王克新, 庞拂飞, 王廷云. 渐逝波耦合半导体量子点光纤放大器[J]. *中国激光*, 2007, **34**(3): 398~401
- 2 Li Zhixin. Ground-state lifetime of strong-coupling bound magnetopolaron in asymmetrical quantum dot[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(12): 2416~2419
李志新. 非对称量子点中强耦合束缚磁极化子的基态寿命[J]. *光学学报*, 2008, **28**(12): 2416~2419
- 3 Lin Li, Guojun Liu, Zanhua Li *et al.*. Growth and characterization of InAs quantum dots with low-density and long emission wavelength[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(1): 71~73
- 4 D. Bimberg, C. Meuer, M. Lammlin *et al.*. Nonlinear properties of quantum dot semiconductor optical amplifiers at $1.3\ \mu\text{m}$ [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(10): 724~726
- 5 Niu Zhichuan, Wang Xiaodong, Miao Zhenhua *et al.*. Photoluminescence properties of self-organized InGaAs/GaAs quantum dot structures [J]. *Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2001, **20**(1): 20~24
牛智川, 王晓东, 苗振华等. InGaAs/GaAs 自组装量子点光致发光特性研究[J]. *红外线与毫米波*, 2001, **20**(1): 20~24
- 6 H. Y. Liu, M. Hopkinson, C. N. Harrison *et al.*. Optimizing the growth of $1.3\ \mu\text{m}$ InAs/InGaAs dots-in-a-well structure [J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **93**: 2931~2936
- 7 Kong Lingmin, Wu Zhengyun, Feng Zhechuan *et al.*. Photoluminescence characteristics of InAs self-assembled quantum dots in InGaAs/GaAs quantum well [J]. *J. Appl. Phys.*, 2007, **101**: 126101
- 8 K. Nishi, H. Saito, S. Sugou *et al.*. A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at $1.35\ \mu\text{m}$ from strain-reduced InAs quantum dots covered by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**: 1111
- 9 S. Huang, Z. C. Niu, H. Q. Ni *et al.*. Fabrication of ultra-low density and long-wavelength emission InAs quantum dots [J]. *J. Cryst. Growth*, 2007, **301-302**: 751
- 10 J. Bloch, J. Shah, W. S. Hobson *et al.*. Room-temperature $1.3\ \mu\text{m}$ emission from InAs quantum dots grown by metal organic chemical vapor deposition [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **75**: 2199
- 11 Wang Hailong, Zhu Haijun, Feng Songlin *et al.*

- Photoluminescence in Be-doped self-organized InAs quantum dots [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2000, **21**(1):20~23
- 王海龙,朱海军,封松林等. Be 掺杂 InAs 自组装量子点的发光特性[J]. *发光学报*, 2000, **21**(1):20~23
- 12 Chen Ye, Zhang Wang, Li Guohua *et al.*. Photoluminescence study of multilayer $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ quantum dot at various temperature [J]. *Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2000, **19**(1):19~23
- 陈 晔,张 旺,李国华等. 多层 $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 量子点的变温光致发光研究[J]. *红外与毫米波学报*, 2000, **19**(1):19~23
- 13 Jiang Weihong, Xu Huanzhe, Gong Qian *et al.*. Structural and optical properties of self-assembled InAs quantum dots grown on GaAs(311)A substrate[J]. *Acta Physica Sinica*, 1999, **48**(8):1541~1546
- 姜卫红,许怀哲,龚 谦等. GaAs(311)衬底上自组装 InAs 量子点的结构和光学特性[J]. *物理学报*, 1999, **48**(8):1541~1546
- 14 E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund. Carrier-carrier correlations in an optically excited single semiconductor quantum dot [J]. *Phys. Rev. B*, 2000, **61**:11009~11020
- 15 Kim Jin Soo, Lee Cheul-Ro, Hong Sung Ui. Structural and optical properties of shape-engineered InAs dots in a GaAs matrix emitting at 1.27 μm [J]. *J. Cryst. Growth*, 2007, **305**:78~82
- 16 Yu Haiping, Lycett Sam, Roberts Christine *et al.*. Time resolved study of self-assembled InAs quantum dots [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**:4087
- 17 Kong Lingmin, Feng Zhechuan, Wu Zhengyun *et al.*. Emission dynamics of InAs self-assembled quantum dots with different cap layer structures [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2008, **23**:075044