

doi: 10.3788/gzxb20174608.0816002

# GaAs 间隔层厚度对 InAs/GaAs 量子点分子光学性质的影响

刘瑶, 王颖, 郭庆林, 李晓莉, 梁宝来, 王淑芳, 傅广生

(河北大学 物理科学与技术学院, 河北 保定 071002)

**摘要:**采用光致荧光发射谱(PL)和时间分辨荧光发射谱(TRPL)研究了 GaAs 间隔层厚度对自组装生长的双层 InAs/GaAs 量子点分子光学性质的影响. 首先, 测量低温下改变激发强度的 PL 谱, 底层量子点和顶层量子点的 PL 强度比值随激发强度发生变化, 表明两层量子点之间的耦合作用和层间载流子的转移随着间隔层厚度变大而变弱. 接着测量改变温度的 PL 谱, 量子点荧光光谱峰值位置( $E_{\max}$ )、半峰全宽及积分强度随温度发生变化, 表明 GaAs 间隔层厚度直接影响到量子点内载流子的动力学过程和量子点发光的热淬灭过程. 最后, TRPL 测量发现 60 mL 比 40 mL 间隔层厚度样品的载流子隧穿时间有明显延长.

**关键词:** 载流子; 光致荧光; 时间分辨; 自组织量子点; 光谱

中图分类号: O472+.3

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2017)08-0816002-5

## Influences of GaAs Spacer Thickness on the Optical Properties of InAs/GaAs Quantum Dot Molecule

LIU Yao, WANG Ying, GUO Qing-lin, LI Xiao-li, LIANG Bao-lai, WANG Shu-fang, FU Guang-sheng  
(College of Physics Science & Technology, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, China)

**Abstract:** The optical properties of self-assembled bilayer InAs/GaAs quantum dots (QDs) are investigated by photoluminescence (PL) and time-resolved photoluminescence (TRPL) as a function of the GaAs spacer thickness. First, the PL spectrum change with excitation intensity are investigated, the variation of PL intensity ratio between the seed layer of QDs (SQDs) and the top layer of QDs (TQDs) with respect to the excitation laser intensity reveals that the coupling and subsequently the interlayer carrier transfer between the two layers of QDs decreases with increasing the GaAs spacer thickness. Then, the temperature-dependent PL behaviors, in measurement of the peak energy ( $E_{\max}$ ), linewidth (Full Width of Half Maximum, FWHM), and the integrated intensity of QDs, show that the GaAs spacer thickness strongly affect the dynamics and the thermal quenching process of carrier in the bilayer QD structures. At last, TRPL measurements show that the carrier tunneling time of the 60ML spacer QD sample is significantly longer than that of the 40ML spacer QD sample.

**Key words:** Carrier; Photofluorescence; Time-resolved; Self-assembled quantum dots; spectrum

**OCIS Codes:** 160.2540; 160.4760; 130.5990; 170.6280

## 0 引言

近年来, GaAs 基 InAs 量子点材料以其独特的物理特性和在各类光电光子器件上的巨大潜在应用价值引起了人们极大的研究兴趣<sup>[1-5]</sup>. 利用 InAs 和 GaAs 材料之间高达 7% 的晶格失配, 通过分子束外延 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) 和金属氧化物气相外延 (Metal Organic Chemical Vapor Deposition,

**基金项目:** 国家自然科学基金青年科学基金 (No. 11504077)、河北省“百人计划”项目 (No. E2013100013)、河北省自然科学基金 (No. A2015201046) 和河北大学研究生创新项目 (No. X2016062) 资助

**第一作者:** 刘瑶 (1992-), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为半导体纳米材料的制备和表征. Email: 15100299616@163.com

**导师 (通讯作者):** 郭庆林 (1956-), 男, 教授, 博士, 主要研究方向为半导体纳米材料的制备和表征. Email: qlguo@hbu.edu.cn.

**收稿日期:** 2017-02-13; **录用日期:** 2017-04-28

<http://www.photon.ac.cn>

MOCVD)等技术可以灵活地进行 InAs/GaAs 量子点的自组装生长,还可以堆垛多层 InAs/GaAs 自组织量子点,提高量子点材料的有效体积和其在光电子发光和探测器件中的光学和电学特性<sup>[6-10]</sup>.

对于多层堆垛 InAs/GaAs 自组织量子点,中间 GaAs 间隔层的生长参数会对上层量子点的排列和尺寸有非常明显的影响,选择合适的 GaAs 间隔层厚度可以获得垂直方向有序排列的无位错多层量子点结构<sup>[11-13]</sup>. 双层量子点是最典型的量子点堆垛结构,通过调节 GaAs 间隔层的厚度,不仅可以改变上层量子点的尺寸和均匀性,还可以有效调节 InAs/GaAs 量子点之间在垂直方向上的耦合强度和载流子的隧穿转移<sup>[14]</sup>. 为了更好地研究 GaAs 间隔层对双层 InAs/GaAs 量子点结构光学性质的影响,本文实验中利用光致荧光发射谱(Photonluminescence, PL)以及时间分辨荧光发射谱(Time-resolved Photonluminescence, TRPL),研究了 GaAs 间隔层分别为 40/50/60ML 厚的双层 InAs/GaAs 量子点结构的光学性质,从而为双层 InAs/GaAs 量子点结构更好地应用在光电子器件上提供实验依据.

## 1 实验

实验所用样品是由分子束外延(MBE)生长的三个非对称双层 InAs/GaAs 量子点结构. 半绝缘 GaAs (001)衬底经过 600℃脱氧 10 min,首先在 580℃生长 500 nm 的 GaAs 缓冲层,然后将衬底温度降至 500℃,以 0.1ML/s 的速度生长 1.8ML 的 InAs 底层量子点(SQDs),接下来三个样品分别生长 40、50、60ML 的 GaAs 间隔层,称为  $S_{40}$ 、 $S_{50}$ 、 $S_{60}$ ,再接着生长 2.4ML 的 InAs 形成顶层量子点(TQDs),最后生长 150ML 的 GaAs 覆盖层完成结构. 另外,同时生长了单层 1.8ML 量子点样品作为参考,称为  $S_{Ref}$ . 光致荧光发射谱(PL)采用 532nm 连续激光器激发样品,样品处于一个闭式循环恒温样品室内,温度在 10K~300K 之间变化,产生的 PL 信号通过一个 20 倍物镜到达液氮制冷的 CCD 探测器,由 0.5m 的光栅光谱仪采集 PL 信号. 另外,在光谱仪的侧出口连接红外光电倍增管和 Picoharp 300 单光子计数器用于时间分辨荧光发射谱(TRPL)测试.

## 2 结果与讨论

图 1 为低温( $T=10K$ )条件下采用 532 nm 波长的固体连续激光器(激发强度为  $1 W \cdot cm^{-2}$ )测量得到的各个样品的光致荧光发射谱. 从图 1 中可以看出  $S_{40}$ 、 $S_{50}$ 、 $S_{60}$  三个不同 GaAs 间隔层厚度样品的 PL 谱均显示出双峰结构,对比  $S_{Ref}$  单层量子点参考样品的 PL 谱发光峰位置,可以判断出高能 1.25 eV 附近 PL 弱峰是来自 SQDs 的辐射信号,而低能位置 PL 强峰来自于 TQDs. 从样品  $S_{60}$  到样品  $S_{40}$ ,随着 GaAs 间隔层厚度减小,TQDs 峰产生红移,这是因为间隔层厚度减小导致了生长方向上应力传播加大,从而导致 TQDs 体积变大. 同时随着间隔层厚度减小,由于垂直应力外延的作用,导致 TQDs 的均匀性也得到显著提高,从而 TQDs 的 PL 峰半高宽(FWHM)变小,当间隔层厚度减小,SQDs 的 PL 峰强度显著下降,特别是达到样品  $S_{40}$ ,基本形成一种长拖尾现象. 这说明 SQDs 和 TQDs 之间存在有效的载流子转移,而从 SQDs 到 TQDs 的载流子转移机制是由于电子的非共振隧穿,转移的效率与 SQDs 和 TQDs 之间的间隔层厚度呈现指数关系.

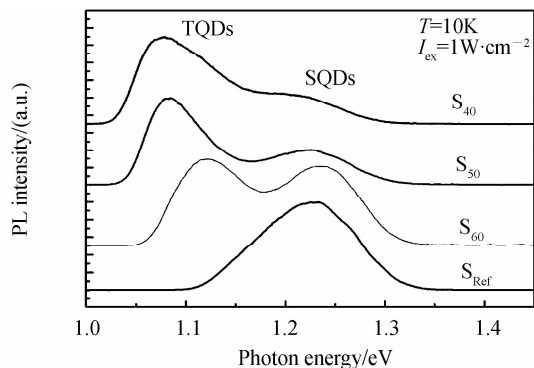


图 1 低温(10K),  $S_{40}$ 、 $S_{50}$ 、 $S_{60}$  和  $S_{Ref}$  的 PL 谱  
Fig. 1 Low-temperature (10 K) PL spectra obtained for  $S_{40}$ 、 $S_{50}$ 、 $S_{60}$  and  $S_{Ref}$  sample

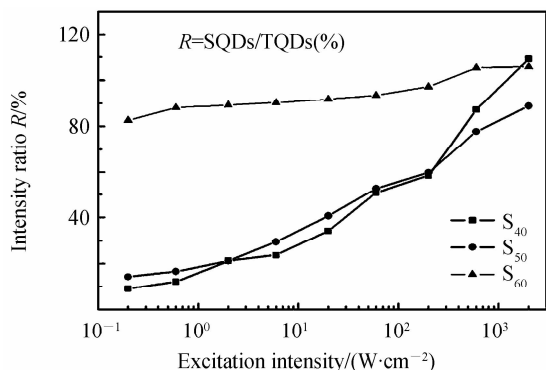


图 2 低温(10K), PL 峰值强度比( $R=SQDs/TQDs$ )随激发强度变化的曲线  
Fig. 2 The PL peak intensity ratio ( $R=SQDs/TQDs$ ) as a function of the laser excitation intensity at 10 K

为了更有效地观察载流子转移随 GaAs 间隔层厚度变化的关系, 在低温 ( $T=10\text{K}$ ) 条件下分别测试了三个样品的 PL 光谱随不同激发强度的变化, 并绘出 SQDs 和 TQDs 的 PL 峰值强度的比值  $R$  随激发强度的变化曲线, 如图 2 所示. 从图 2 中可以看出, 随着激发强度增强, 三个样品的  $R$  值均在增加, 当激发强度达到  $1000\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$  时,  $R$  值达到 100% 左右, 说明从 SQD 到 TQD 转移的载流子数量随着激发强度增强而减少.  $S_{40}$  和  $S_{50}$  的  $R$  值变化曲线的斜率基本一致且比较大, 而  $S_{60}$  的  $R$  值变化缓慢且变化曲线的斜率比较小. 产生这种现象的原因是厚的 GaAs 间隔层会减弱层间载流子的转移, 当间隔层达到 60ML 时, 层间载流子的转移效率很低, 即使激发强度变大,  $R$  值也基本不变.

图 3 给出三个样品 TQDs 的 PL 峰值位置 ( $E_{\text{max}}$ )、半峰全宽 (FWHM) 及积分强度随温度的变化, 为了避免激发态的影响, 选择较低的激发强度为  $2\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ . 从图 3(a) 可以看出随温度升高, 三个样品 PL 谱的 TQDs 峰值位置  $E_{\text{max}}$  均有明显的红移. 在半导体结构中,  $E_{\text{max}}(T)$  一般遵循 Varshni 定律, 即

$$E(T) = E_0 - [\alpha T^2 / (T + \beta)] \quad (1)$$

式中  $E_0$  是绝对温度为零 ( $T=0\text{ K}$ ) 时的禁带宽度,  $\alpha$  和  $\beta$  是与材料相关的常数. 对于  $S_{60}$  样品, TQDs 的  $E_{\text{max}}(T)$  曲线类似于“S”型, 观察到  $100\sim 200\text{K}$  一个快速的红移, 这种现象的产生不能单独由 InAs 和 GaAs 材料的能带 ( $E_{\text{gInAs}}$ 、 $E_{\text{gGaAs}}$ ) 随温度的变化来解释, 主要是由于温度引起的在 TQDs 中载流子的热激发和再布居引起的<sup>[15]</sup>. 因为  $S_{60}$  样品层间耦合很小, 所以温度升高引起在 TQDs 层内载流子的热激发和由较小量子点到较大量子点的载流子的再布居. 比较而言,  $S_{40}$  和  $S_{50}$  样品的  $E_{\text{max}}(T)$  表现出比较平坦的变化, 整体产生这样的效果主要归因于量子点层间的较强耦合作用. 首先  $S_{40}$  和  $S_{50}$  样品的量子点层间耦合非常强, 大部分载流子可以通过隧穿由 SQDs 转移到 TQDs 后再实现光学跃迁辐射, 即使在弱激发条件下也在一定程度上增加了 TQDs 内载流子的布居, 减弱了由于温度的增加而引起的 TQDs 层内大点到小点的载流子的热激发和再布居. 其次, 随着 GaAs 间隔层厚度减小, 由于垂直应力外延的作用导致 TQDs 的均匀性得到显著改善, 这也会减弱由于温度的增加而引起的 TQDs 量子点内载流子的热激发和再布居效应, 使得  $S_{40}$  和  $S_{50}$  样品的  $E_{\text{max}}(T)$  表现出比较平坦的变化趋势.

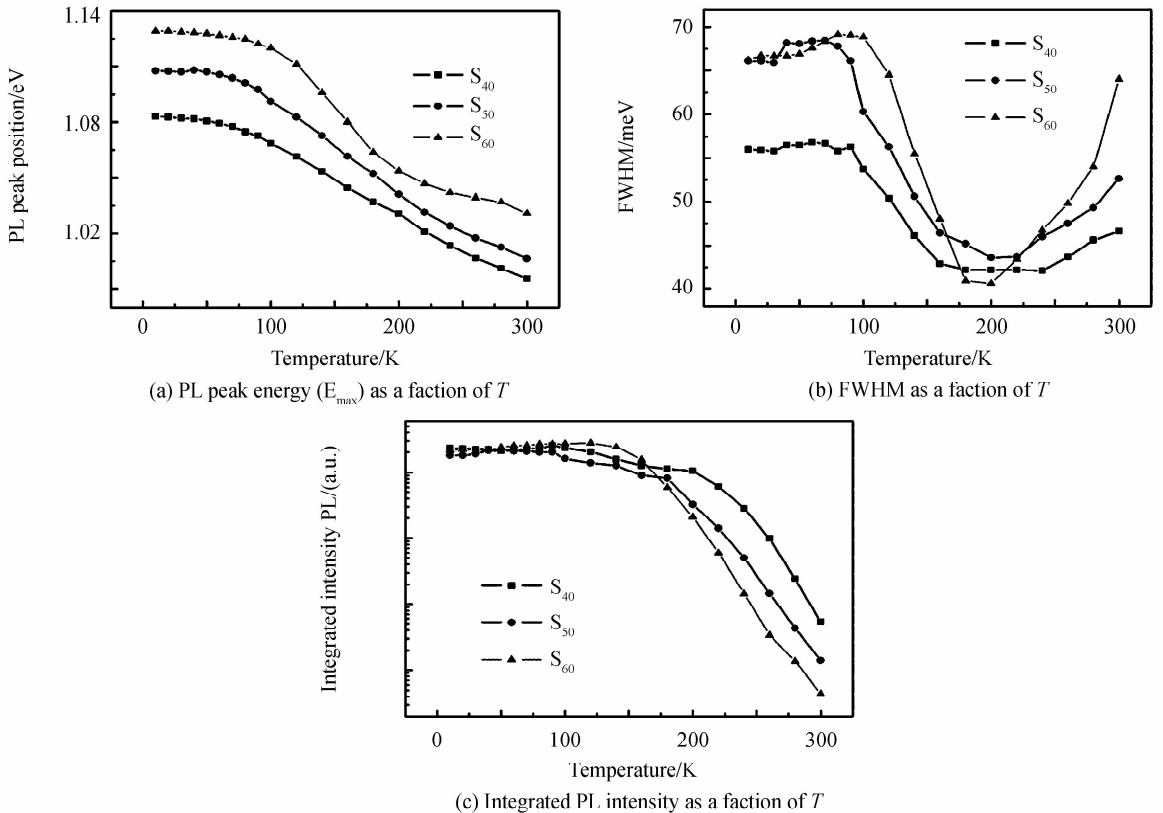


图 3  $S_{40}$ 、 $S_{50}$  和  $S_{60}$  在 TQDs 位置处 PL 谱随温度变化的曲线  
Fig. 3 PL as a function of temperature for the TQDs of  $S_{40}$ 、 $S_{50}$  and  $S_{60}$  sample

图 3(b)给出三个样品的半峰全宽(FWHM)的温度依赖关系. 发现  $E_{\max}(T)$  和  $\text{FWHM}(T)$  之间有一定的相关性,  $S_{60}$  的  $E_{\max}(T)$  发生陡峭变化的温度范围(100~200 K)与 FWHM 明显减小的范围相对应. 在低温范围内( $T < 100$  K),  $E_{\max}(T)$  和  $\text{FWHM}(T)$  变化很小, 说明热声子造成量子点内载流子发生热激活和再布居的几率很小. 当温度从 100K 上升到 200K 时,  $S_{60}$  的 FWHM 减小了将近 30%, 反映出  $S_{60}$  样品较强的载流子的热激活现象和再布居效应. 当温度从 200K 升高到 300K 时, FWHM 又有明显增加, 这是由于声子对载流子的散射造成的. 另外, 随着间隔层厚度变小, 层间耦合变强,  $E_{\max}(T)$  和 FWHM 随温度变化相对小一些.

图 3(c)给出了三个样品 TQDs 的 PL 峰积分强度  $I_{\text{int}}(T)$  的温度依赖关系, 每一个  $I_{\text{int}}(T)$  均被归一化. 可以看出, 在  $T < 200$  K 时,  $I_{\text{int}}(T)$  的变化很小, 说明即使热声子造成量子点内载流子发生热激活和再布居, 较小量子点中的载流子虽然被热激发, 但是其中的大部分还是会被较大的量子点再俘获, 因此系统中只有很少的载流子损失. 而当  $T > 200$  K 时, 所有样品 TQDs 的  $I_{\text{int}}(T)$  开始快速衰退. 说明声子散射造成载流子跳出量子点的受限能级而被非辐射复合中心俘获, 导致量子点发光辐射复合的淬灭. 通过比较三个样品可以发现, 当间隔层厚度最小(40 ML)时, TQDs 的  $I_{\text{int}}(T)$  衰退最慢, 而间隔层厚度达到 60 ML 时, TQDs 的 PL 衰退速率最快. 同时不同样品 TQDs 的  $I_{\text{int}}(T)$  开始快速衰退的温度也不一样.  $S_{60}$  样品的  $I_{\text{int}}(T)$  从大约 160 K 开始快速下降, 但是  $S_{10}$  样品的  $I_{\text{int}}(T)$  却从大约 220K 开始. 这是因为样品 GaAs 间隔层厚度变化造成了的量子点层间的不同耦合作用和量子点的能级变化, 进而影响到 TQDs 量子点内的载流子布居和温度淬灭行为.

实验采用 532 nm 波长、20 ps 脉冲宽度、3.89 MHz 重复频率的超连续谱激光器作为激发源, 激发强度为  $20 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ . 测量波长分别设置在 SQDs、TQDs 的 PL 谱中心波长对应位置, TRPL 测量得到的时间衰减曲线利用 Fluofit 软件进行单指数拟合得到载流子寿命, 拟合结果见图 4. 图 4(a)为三个样品 SQDs 峰值波长位置处以及参考样品峰值波长位置处的时间分辨荧光衰减曲线, 图 4(b)为三个样品 TQDs 峰值波长位置处的时间分辨荧光衰减曲线. 由图 4 可知, 三个样品的 SQDs 发光均比 TQDs 发光衰退得要快. 且随着间隔层厚度变大, SQDs 的载流子寿命明显增加, 表明两个量子点层之间存在载流子隧穿. 双层 InAs/GaAs 量子点分子结构中载流子隧穿特性可以用一个简单三级系统来理解<sup>[16]</sup>, 即

$$\tau_{\text{PL}} = \tau_{\text{S}} \tau_{\text{T}} / (\tau_{\text{T}} + \tau_{\text{S}}) \quad (2)$$

式(2)中,  $\tau_{\text{T}}$  是 SQDs 到 TQDs 的载流子隧穿时间,  $\tau_{\text{S}}$  是 SQDs 中的载流子寿命. 根据实验数据和式(2), 算出  $S_{10}$  样品载流子隧穿时间为 0.221 ns,  $S_{50}$  样品载流子隧穿时间为 0.238 ns,  $S_{60}$  样品载流子隧穿时间为 0.276 ns. 说明当间隔层厚度从 40 ML 增加到 60 ML 时, 载流子隧穿时间有明显增长.

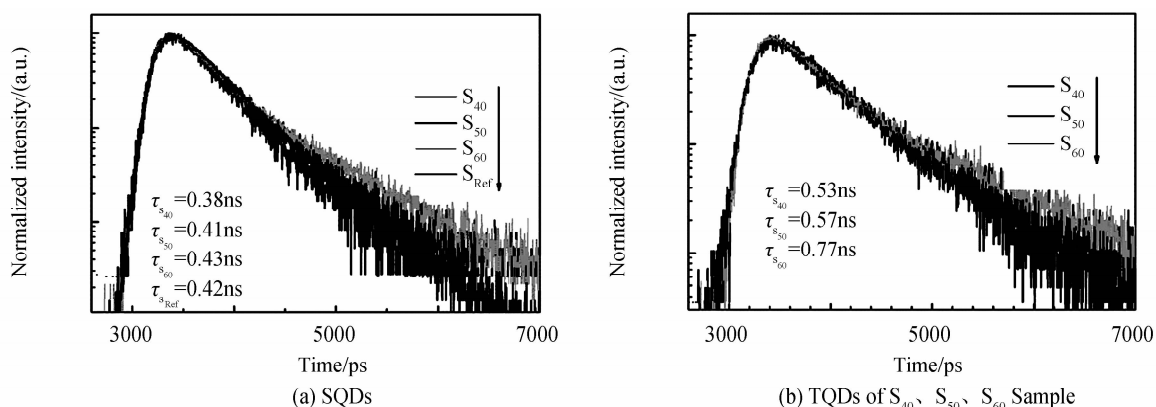


图 4  $S_{10}$ 、 $S_{50}$ 、 $S_{60}$  的时间分辨荧光光谱(TRPL)结果  
Fig. 4 Time-resolved photoluminescence (TRPL) results

### 3 结论

本文实验研究了 GaAs 间隔层厚度对双层 InAs/GaAs 量子点结构光学性质的影响, 随着 GaAs 间隔层厚度变大, 两层量子点之间的耦合作用变弱, 载流子转移效率变低. 低温下三个样品的光致荧光发射谱均为双峰结构, SQDs 和 TQDs 之间存在有效的载流子转移, 而且随着间隔层厚度变大, 这种转移效率变低. 不同样品的 PL 谱峰值强度比值  $R$  随激发强度变化的结果也验证了这个规律. 三个样品 TQD 的 PL 谱峰值能量

( $E_{\max}$ )、半峰全宽(FWHM)及积分强度随温度的变化显示 GaAs 间隔层厚度直接影响到量子点内载流子的动力学过程和量子点发光的热淬灭过程.同时,分析了三个样品的时间衰退行为(TRPL),间隔层厚度大的样品  $S_{60}$  比  $S_{40}$  的载流子隧穿时间有明显延长.

### 参考文献

- [1] ZHANG H, CHEN Y, ZHOU G, *et al.* Wetting layer evolution and its temperature dependence during self-assembly of InAs/GaAs quantum dots[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2012, **7**(1):1-6.
- [2] MAZUR Y I, LOPES-OLIVEIRA V, SOUZA L D, *et al.* Carrier transfer in vertically stacked quantum ring-quantum dot chains[J]. *Journal of Applied Physics*, 2015, **117**(15):154307.
- [3] JI H M, LIANG B, LIANG P J, *et al.* Hybrid type-I InAs/GaAs and type-II GaSb/GaAs quantum dot structure with enhanced photoluminescence[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, **106**(10):130104.
- [4] PERSANO A, COLA A, TAURINO A, *et al.* Electronic structure of double stacked InAs/GaAs quantum dots: Experiment and theory[J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, **102**(9):094314-094314-8.
- [5] LIU Y, LIANG B L, GUO Q L, *et al.* Electronic coupling in nanoscale InAs/GaAs quantum dot pairs separated by a thin Ga(Al)As spacer[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2015, **10**(1):271.
- [6] TARASOV G G, ZHUCHENKO Z Y, LISITSA M P, *et al.* Optical detection of asymmetric quantum-dot molecules in double-layer InAs/GaAs structures[J]. *Semiconductors*, 2006, **40**(1):79-83.
- [7] CHAKRABARTI S, HALDER N, SENGUPTA S, *et al.* Vertical ordering and electronic coupling in bilayer nanoscale InAs/GaAs quantum dots separated by a thin spacer layer[J]. *Nanotechnology*, 2008, **19**(50):505704.
- [8] LIU Y, WANG Y, LIANG B L, *et al.* Interplay effect of excitation and temperature on carrier transfer between vertically aligned InAs/GaAs quantum dot pairs[J]. *Crystals*, 2016, **6**(11):144.
- [9] TIAN Peng, HUANG Li-rong, FEI Shu-ping, *et al.* Effect of different cap layers on the structure and optical properties of InAs/GaAs self-assembled quantum dot[J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, **59**(8):5738-5742.  
田芃, 黄黎蓉, 费淑萍, 等. 不同盖层对 InAs/GaAs 量子点结构和光学性质的影响[J]. 物理学报, 2010, **59**(8):5738-5742.
- [10] CHUN C, LIN S D, PAN C H, *et al.* Observation of long-lived excitons in InAs quantum dots under thermal redistribution temperature[J]. *Physics Letters A*, 2012, **376**(17):1495 - 1498.
- [11] LIU Yu-min, YU Zhong-yuan, REN Xiao-min. Effects of the thickness of spacing layer and capping layer on the strain distribution and wavelength emission of InAs/GaAs quantum dot[J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **58**(1):66-72.  
刘玉敏, 俞重远, 任晓敏. 隔离层厚度和盖层厚度对 InAs/GaAs 量子点应变分布和发射波长的影响[J]. 物理学报, 2008, **58**(1):66-72.
- [12] TUTU F K, SELLERS I R, PEINADO M G, *et al.* Improved performance of multilayer InAs/GaAs quantum-dot solar cells using a high-growth-temperature GaAs spacer layer[J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, **111**(4):5014-166.
- [13] WEI Quan-xiang, WU Bing-peng, REN Zheng-wei, *et al.* Photoluminescence study of two layer stacked InAs/GaAs quantum dots[J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, **32**(1):0125001.  
魏全香, 吴兵朋, 任正伟, 等. 双层堆垛长波长 InAs/GaAs 量子点发光性质研究[J]. 光学学报, 2012, **32**(1):0125001.
- [14] MAZUR Y I, WANG X, WANG Z M, *et al.* Photoluminescence study of carrier transfer among vertically aligned double-stacked InAs/GaAs quantum dot layers[J]. *Applied Physics Letters*, 2002, **81**(13):2469-2471.
- [15] ZHOU X L, CHEN Y H, JIA C H, *et al.* Interplay effects of temperature and injection power on photoluminescence of InAs/GaAs quantum dot with high and low areal density[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2010, **43**(48):485102-485107.
- [16] MAZUR Y I, WANG Z M, TARASOV G G, *et al.* Interdot carrier transfer in asymmetric bilayer InAs/GaAs quantum dot structures[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, **86**(6):063102.