

在量子阱中自组织量子点结构 $\text{GaN}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的电子能谱*

刘承师 马本^方 王立民

(北京师范大学物理系和理论物理研究所, 北京 100875)

摘要: 在有效质量近似框架内, 采用绝热近似, 计算了在量子阱中 $\text{GaN}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 自组织量子点系统的电子结构和光学性质. 计算表明系统的电子能级随量子点受限势的增大而升高, 随量子点尺寸的增大而降低, 而且量子阱的宽度和量子点浸润层厚度的增加也会导致能级值有所降低. 说明结构参数会使在阱中的量子点的光致发光峰波长发生相应的蓝移或红移, 与已知的实验结果一致.

关键词: 在阱中的量子点; 电子能级结构; 光致发光峰波长

PACC: 7320D; 7125W; 7280E

中图分类号: O471.1

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2002)10-1051-06

1 引言

GaN 以其得天独厚的宽直接带隙、强价键特性, 成为蓝光发光二极管、蓝光激光器等光电器件的优良的半导体材料, 在通讯、信息等诸多领域有着重要的应用价值^[1,2]. 随着材料制备技术的进步, 人们制造出来各种以 GaN 材料为主的半导体微结构, 例如量子阱^[3~5]、量子点^[6~9], 这些结构具有比 GaN 体材料更好的光电性质^[10]. 近年来, 一种新型的 GaN 半导体微结构备受关注, 这种新型的结构采用了将单层或多层 GaN 自组织量子点放入量子阱中的设计, 从而形成了在阱中的量子点 (DWELL) 结构^[6~9]. 普遍认为这样设计的好处是能够提高量子点的密度, 增加对载流子的俘获能力, 因此采用这种结构设计 GaN 量子点激光器有望实现短波长、高发光效率、大功率、低阈值电流及阈值电流对温度不敏感^[11~19]等特性.

目前, 已经对 InAs 量子点在 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱中材料的 DWELL 结构进行了大量研究.

Stintze 等人通过对不同生长过程制备的 DWELL 结构样品的测量, 得出了激射波长和光致发光波长与生长条件和热过程的关系^[15]. Liu 等人分析了不同 x 的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱对 DWELL 的发光性质、阈值电流密度等的影响^[18]. Sakamoto 等人采用耦合速率方程, 计算了这种结构的激射谱, 分析了非均匀加宽对光学吸收的影响^[20]. 尽管在实验和理论研究方面取得一定进展, 但从理论上研究这种结构的电子结构和发光性质与 DWELL 结构参数的关系尚未见报道. 本文在有效质量框架内, 采用绝热近似^[21], 计算了 $\text{GaN}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ DWELL 结构的电子能谱及光致发光谱, 并讨论了与结构参数之间的定量关系, 为给这种新型的 DWELL GaN 激光器的设计提供了物理模型和理论依据.

2 理论模型

GaN 量子点激光器采用 DWELL 的结构, 有源区如图 1 所示, 具体的材料生长和激光器结构设计可参考文献[7]. 从垂直剖面上看, GaN 量子点的形状

* 中国教育部博士点基金资助项目 (No. 96002703)

刘承师 男, 1964 年出生, 博士研究生, 从事半导体量子点器件光电性质及输运性质的研究.

马本^方 男, 1933 年出生, 教授, 博士生导师, 从事半导体微结构、表面界面的标度生长等理论研究.

2002-01-24 收到, 2002-04-15 定稿

是梯形,从整体来看,量子点具有圆台形,置于厚度为 h_3 的浸润层之上.量子阱材料是 $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$,量子点上盖层材料是 $\text{Al}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}$.距离 (r, z) 平面原点 r 处的电子在 z 方向受限势如图 2 所示.

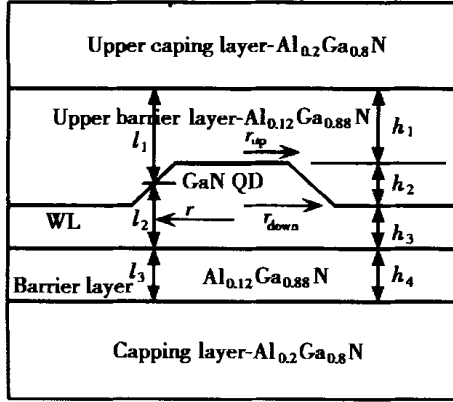


图 1 DWELL 结构有源区示意图
Fig. 1 Active region of DWELL structure

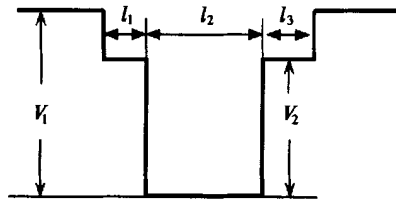


图 2 距离量子点中心 r 处电子和空穴在 z 方向受限势示意图
Fig. 2 Confining potential of electron and hole at the position r in DWELL structure in the z direction

采用有效 Rydberg 单位制. $R^* = m_e e^2 / 2 \hbar^2$, $a_B^* = \hbar^2 / m_e e^2$. 其中 m_e 和 ϵ 分别为电子的有效质量和介电常数. 在有效质量近似的框架下,采用柱坐标系 (r, θ, z) , DWELL 结构单电子薛定谔方程为^[21]:

$$\left[-\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z) \right] \times (r, \theta, z) = E(r, \theta, z) \quad (1)$$

在量子点和浸润层内, $V_e = 0$, 在量子点边界处, $V_e = V_1$, 在量子阱边界处, $V_e = V_2$. V_1 和 V_2 包含两种材料的导带失谐和所有应变能. 在解薛定谔方程(1)时,采用绝热近似,将电子的波函数写成: $(r, \theta, z) = (1/\sqrt{2}) e^{im\theta} g_r(z) f_m(r)$, 其中 $g_r(z)$ 是 r 的慢变函数. 考虑到电子在 z 方向运动的受限远大于 (r, θ) 平面上的受限,相对而言,电子在 z 方向上形成

的束缚能级间距甚大,因此电子在 z 方向运动状态处在最低能级或子带上. 将电子波函数代入方程(1),作解耦近似,可得 $g_r(z)$ 和 $f_m(r)$ 满足如下的方程:

$$\begin{aligned} \left[-\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z) \right] g_r(z) &= E_0(r) g_r(z) \quad (2) \\ \left[-\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} - m^2 \right) + E_0(r) \right] f_m(r) &= E f_m(r) \quad (3) \end{aligned}$$

其中 z 方向的薛定谔方程是一维有限深势阱问题,受限势如图 2 所示. 解出其基态能量 $E_0(r)$, 将 $E_0(r)$ 代入径向方程(3)中,解受限势为 $E_0(r)$ 的径向薛定谔方程,可得出本征值 E , 其中 $E_0(r)$ 起受限势的作用. 在解径向方程时,我们用 n 段阶跃势来代替 $E_0(r)$, 即 $E_0(r) = v_i$, 当 $s_i < r < s_{i+1}$ 时, 其中 $0 = s_0 < s_1 < \dots < s_n = s_{n+1}$. 与角动量为 m 对应的波函数可以表达为:

$$f_m(r) = A_i F(k_i, r) + B_i G(k_i, r) \quad s_i < r < s_{i+1} \quad (4)$$

这里 $k_i^2 = |E - v_i|$, 而 (F, G) 是一对线性无关的贝塞耳函数: 当 $E > v_i$ 时, (F, G) 分别是一阶和二阶贝塞耳函数 (J_m, Y_m) ; 当 $E < v_i$ 时, (F, G) 分别是变型二阶和变型一阶贝塞耳函数 (K_m, I_m) . 首先利用波函数在每一边界必须光滑衔接,另外由于波函数必须有限,可得到一个边界条件: $B_0 = 0$, 同时波函数在无穷远处必须衰减为 0, 所以我们得到另一个边界条件: $B_n = 0$. 由此进行数值计算可以得到分立的束缚能级 E , 并可计算相应能级的波函数.

空穴在 DWELL 中运动满足相同的薛定谔方程(2)、(3)和边界条件,只需采用空穴的有效质量和受限势,同样可以计算出空穴在 DWELL 结构中受限的分立能级和波函数.

适当波长的光照射到量子点上,可使电子从量子点中空穴基态跃迁到电子基态和激发态的分立能级上,产生电子和空穴. 当在各自的基态或低激发态分立能级上的电子与空穴进行复合时,会发射光子,满足选择定则: $m = 0, m$ 为角量子数. 假定电子和空穴在其基态或低激发态分立能级的分布满足玻耳兹曼分布,则电子空穴复合发光系数^[21,22]为:

$$R(E) = \frac{4 \pi^2 \hbar e^2 N_D}{n^2 m_e m_h} \sum_{i,j} \frac{|P_{c_v_j}|^2}{E_{c_v_j}} [f^e(E_{c_v_j}) - f^h(E_{c_v_j})] B_{cv}(E - E_{c_v_j}) dE_{c_v_j} \quad (5)$$

其中 N_D 是量子点密度; m_e 和 m_h 分别为电子和

空穴的有效质量； c_i 和 v_i 分别是的电子和空穴的分立能级； $P_{c_i v_i} = |c_i| \hat{P} e^{-ikr} |v_i|$ 是电子和空穴之间的跃迁矩阵元； $E_{c_i v_j}$ 为对应跃迁发出光子的能量； $f^{c_i}(E_{c_i v_j})$ 和 $f^{v_j}(E_{c_i v_j})$ 分别为电子和空穴占据各自的基态和激发态分立能级的玻耳兹曼分布函数； n 是折射率. 并假定能级的均匀展宽具有洛仑兹分布,

$$B_{c_i v_j}(E - E_{c_i v_j}) = \frac{\hbar c_{ij}}{(E - E_{c_i v_j})^2 + (\hbar c_{ij})^2}, \text{ 半高宽为 } 2\hbar c_{ij}.$$

3 数值计算结果与讨论

在进行数值计算时,采用如下参数^[23]:取量子点中电子的有效质量为 0.2,空穴有效质量 0.8,介电常数 12,GaN 零温的带隙为 3.5eV,AlN 零温带隙 6.2eV.假定 Al_xGa_{1-x}N 的带隙采用如下简单线性关系获得： $E_g(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = E_g(\text{GaN}) + x(E_g(\text{AlN}) - E_g(\text{GaN}))$. 得到 Al_{0.12}Ga_{0.88}N 的带隙为 3.824eV, Al_{0.2}Ga_{0.8}N 的带隙为 4.04eV. 假定导带失谐 67%,价带失谐 33%,可算出电子受限势 $V_1 = 361.8\text{meV}$, $V_2 = 271.1\text{meV}$,空穴受限势 $V_1 = 178.2\text{meV}$, $V_2 = 106.9\text{meV}$. 圆台形量子点尺寸为^[7]:上底半径 8nm,下底半径 15nm,高 4nm,浸润层的厚度为 1nm,量子阱的总宽度为 12.6nm.

图 3 和 4 分别给出不同量子数 m 的电子的束缚能级和空穴的束缚能级. 电子和空穴能级分别取导带底和价带顶为零. 从图中可以看出,能级具有近似相同的能级间隔,因此可以用截断的抛物势的能谱来近似^[21].

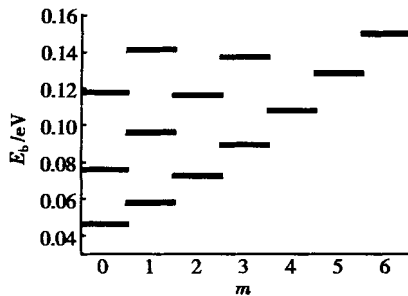


图 3 电子在量子点中受限的分立能级

Fig. 3 Electronic energy levels of QDs in the DWHL structure

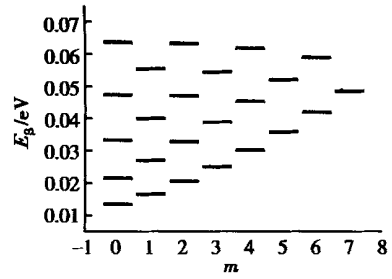


图 4 空穴在量子点中受限的分立能级

Fig. 4 Hole's energy levels of QDs in the DWHL structure

量子点的大小与生长条件有关,变化特征是半径和高度之比为常数. 图 5 给出量子点电子角动量 $m=0$ 的几个分立能级随着量子点大小变化的关系. 仅量子点大小发生变化,下底半径和高度之比为 0.27,上下底半径之比 0.53,其它参数不变. 从图中可以看出,随量子点的尺度变大,电子在量子点中运动空间受限的减弱,能级也变低. 空穴能级随量子点大小变化也有同样的规律,因此发出光子的能量将变小,发光谱波长将红移.

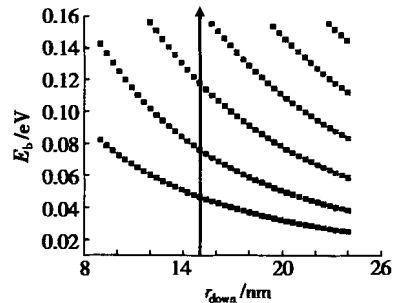


图 5 电子分立能级随量子点尺寸大小变化关系图 其中 $r_{up}/r_{down} = 0.53$, $h_2/r_{down} = 0.27$, $m = 0$,其它参数不变. 横轴是量子点的底面半径,纵轴是能级,箭头所在位置对应图(3)的能谱.

Fig. 5 Dependence of the electronic energy level of the dot on size with $r_{up}/r_{down} = 0.53$, $h_2/r_{down} = 0.27$, $m = 0$. The other parameter is the same as Figure 3. The x-axis is h_2 , and y-axis is energy level. The arrows indicate the spectrum in Fig. 3.

量子点电子受限势 V_2 的大小与 Al_xGa_{1-x}N 中 Al 的比例 x 有关,Al 比例变大,导致 V_2 升高. 图 6 给出量子点 $m=0$ 的几个分立能级随受限势大小变化关系,其它参数与图 3 相同. 从图中明显可以看出,随量子点电子受限势 V_2 的增大,电子的分立能

级升高间距加大. 空穴的分立能级, 也有同样的规律. 因此电子空穴复合发出的光子能量将增大, 发光谱波长将蓝移.

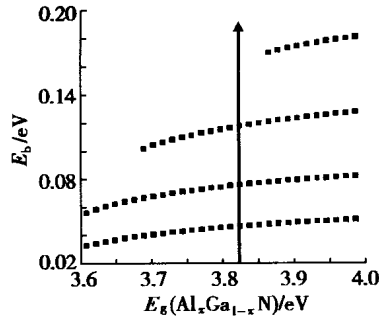


图6 电子分立能级随量子点受限势大小变化关系图 横轴是边界层 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的带隙, 纵轴是能级, $m=0$, 其它参数不变, 箭头所在位置对应图3的能谱.

Fig. 6 Dependence of the electronic energy level of the dot on confining potential with $m=0$. The other parameter is the same as Fig. 3. The x -axis is band-gap of barrier layer $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, and y -axis is energy level. The arrows indicate the spectrum in Fig. 3.

图7 给出在 DWELL 结构中电子角动量 $m=0$ 的三个分立能级大小的改变量随量子阱宽度的变化, 以量子阱的宽度最低的能级为基准, 即纵轴为 $\Delta E_b^i(x) = E_b^i(x) - E_b^1(x_0)$, i 是能级序号, x 为量子阱宽度, 其中 $h_1/h_4 = 2.9$, 能级 1、2、3 从小到大依次

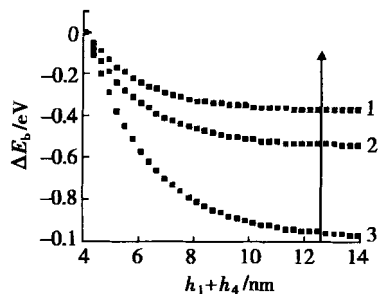


图7 电子分立能级的变化随量子阱宽度大小变化关系图 横轴是 h_1+h_4 , 其中 $h_1/h_4 = 2.3$, $m=0$, 纵轴是能级的改变量. 其它参数不变, 箭头所在位置对应图3的能谱.

Fig. 7 Dependence of the electronic energy level of the dot on width of WL with $m=0$. The other parameter is the same as Fig. 3. The x -axis is width of h_1+h_4 , and y -axis is variation of the energy level. The arrows indicate the spectrum in Fig. 3.

排列, 横轴为量子阱宽度. 从图中可以看出, 电子能级随阱宽增大而有小幅度的降低, 低能级降低的幅度相对高能级降低的幅度小. 从能级 1、2 也可以看出, 随量子阱宽度的变大, 量子阱宽度对量子点分立能级的影响也越来越小. 由于空穴也有同样的规律, 因此量子点发光谱波长随阱宽红移. 电子以较大的概率受限在量子点中, 相对量子点中高能级的电子, 低能级电子在受限量子点中的概率较大, 因此外界量子阱宽度的变化对低能级电子的影响要小, 并且随宽度的增加这种影响越来越小, 以上的计算证实了我们的分析.

改变生长条件可以改变浸润层厚度. 图8 给出量子点电子角动量 $m=0$ 的几个分立能级随浸润层 h_3 的变化关系. 浸润层变厚, 电子在 z 方向空间受限减弱, 能级降低, 从而电子发光峰将红移. 与量子点横向尺寸大小变化对其能级的影响相比, 浸润层的厚度对能级的影响要弱, 比较图5、图7和图8可以明显地看出这一点.

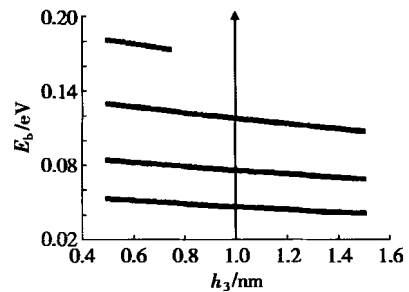


图8 电子分立能级随浸润层厚度 h_3 变化关系 $m=0$, 其它参数不变, 箭头所在位置对应图3的能谱.

Fig. 8 Dependence of the electronic energy level of the dot on width of WL with $m=0$. The other parameter is the same as Fig. 3. The x -axis is width of WL, and y -axis is energy level. The arrows indicate the spectrum in Fig. 3.

利用所计算出的电子和空穴的能谱和波函数及公式(5), 取半高宽度为 0.05eV , 图9 给出了计算的发光谱. 最强的发光峰对应电子的基态与空穴基态之间的跃迁, 对应光子能量为 3.55eV . 随着其能量的增加, 满足选择定则 $m=0$ 在激发态之间跃迁的发光峰强度迅速下降, 所有发光峰的包络线对应实验所测量的发光谱, 与实验结果基本一致^[2,7].

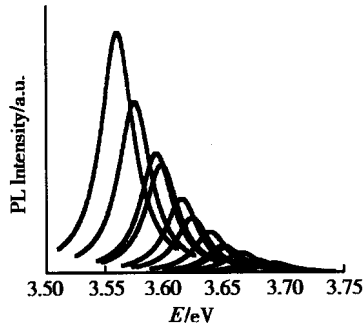


图9 光致发光光谱

Fig.9 PL spectra

4 结论

在有效质量近似框架内,采用绝热近似,计算了圆台形 GaN 自组织量子点在量子阱结构中的电子结构和光致发光谱,得到了与实验相一致的结果,并发现量子点束缚能级的值敏感于结构参数.增加量子点的尺寸或量子阱的宽度,导致能级的降低,从而导致发光谱峰波长的红移,增厚浸润层也有同样的结果.通过计算还发现,随受限势的增大(增大 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 中 Al 的比例),引起能级的升高,从而导致发光峰的蓝移.从以上理论计算可知,在设计 DWELL 结构时,使其中电子和空穴具有我们希望的能级间隔和束缚状态数,达到所希望光致发光峰波长,将有助于紫外光量子点激光器的设计与优化.

参考文献

- [1] Jiang Jianping. Semiconductor laser. Beijing: Tsinghua University Press, 2000:159 [江剑平. 半导体激光器. 北京:清华大学出版社, 2000:159]
- [2] Nakamura S, et al. Appl Phys Lett, 1996, 69:1568
- [3] Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, Zhang Jianping, et al. $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ and $\text{GaN}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ quantum wells grown by gas source molecular beam epitaxy. Chinese Journal of Semiconductors, 1999, 20:407
- [4] Xu Dapeng, Yang Hui, Zhao Degang, et al. Strain analysis of cubic AlGaIn/GaN grown on GaAs (100) substrate by MOVPE. Chinese Journal of Semiconductors, 1999, 20:921
- [5] Zhou Yugang, Shen Bo, Liu Jie, et al. Investigation on two-dimensional electron gas in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ heterostructure by using Schottky $C-V$ measurement. Chinese Journal of Semiconductors, 2001, 22:1420 [周玉刚, 沈波, 刘杰, 等. 肖特基 $C-V$ 法研究 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 异质结界面二维电子气. 半导体学报, 2001, 22:1420]
- [6] Tanaka S, et al. Solid State Phys, 1997, 12:38
- [7] Tanaka S, et al. Appl Phys Lett, 1997, 71:1299
- [8] Hirayama H, Tanaka S, Ramvall P, et al. Appl Phys Lett, 1998, 72:1736
- [9] Tanaka S, Iwai S, Aoyagi Y. Appl Phys Lett, 1996, 69:4099
- [10] Garnett W. Bryant Quantum dots in quantum well structure. J Lumin, 1996, 70:108
- [11] Seifert W, Carlsson N, Miller M, et al. Prog Cryst Growth, 1996, 33:423
- [12] Wang Zhanguo. Semiconductor quantum dot laser. Physics, 2000, 29(11):643 [王占国. 半导体量子点激光器研究进展. 物理, 2000, 29(11):643]
- [13] Liu G T, Stinze A, Li H, et al. Extremely low room-temperature threshold current density diode laser using InAs dots in InGaAs quantum well. Electron Lett, 1999, 35:1163
- [14] Park G, Shcheking O B, Csutak S, et al. RT continuous-wave operation 1.3 μm quantum dot laser. Appl Phys Lett, 1999, 75:3267
- [15] Stintze A, Liu G T, Li H, et al. Low-threshold current density 1.3 μm InAs quantum dot lasers with the dots-in-a-well (DWELL) structure. IEEE Photonics Technol Lett, 2000, 12(6):591
- [16] Liu H Y, et al. J Cryst Growth, 2000, 213:193
- [17] Wang X D, et al. Effect of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 < x < 0.4$) capping layer on self-assembled 1.3 μm wavelength InAs/GaAs quantum islands. J Cryst Growth, 2001, 223:363
- [18] Liu G T, Stinze A, et al. The influence of quantum-well composition on the performance of quantum dot lasers using $\text{InAs}/\text{InGaAs}$ dots-in-a-well (DWELL) structure. IEEE J Quantum Electron, 2000, 36(11):1272
- [19] Mukai K, et al. Quantum dots 1.3 μm CW lasing characteristics of self-assembled $\text{InGaAs}-\text{GaAs}$ quantum dots. IEEE J Quantum Electron, 2000, 36(4):472
- [20] Sakamoto Arkia, Sugawara Mitsuru. Theoretical calculation of lasing spectra of quantum dot laser: effect of homogeneous broadening of optical gain. IEEE J Quantum Electron, 2000, 12(2):107
- [21] Jacak L, Hawrylak P, Wojs A. Quantum dots. Berlin: Springer-verleg, 1998
- [22] Li Mingfu. Semiconductor physics. Beijing: Science Press, 1998 [李名复. 半导体物理学. 北京:科学出版社, 1998]
- [23] Pankove J I. Optical processes in semiconductors. New York: Vover Publication Inc, 1975

Electronic Energy Spectra of GaN/Al_xGa_{1-x}N Self-Assembling Quantum Dots in a Well Structure *

Liu Chengshi , Ma Benkun and Wang Limin

(Department of Physics , Beijing Normal University , Beijing 100875 , China)

Abstract : In the frame of effective mass approximation ,the adiabatic approximation is applied to calculate the electronic energy spectra of the GaN/Al_xGa_{1-x}N self-assembling quantum dots (QDs) in a well (DWELL) structure under various structural parameters. Results show that the energy spectra structure and the photoluminescence (PL) spectra wavelength are sensitive to the structural parameters of quantum dot and quantum well (QW) . The computation suggests that the QDs with higher confining potential have higher electron and hole energy levels ,and the QDs with large dimension have a lower electron and hole energy level ,the wider QW and thinner self-assembling QDs wetting layer (WL) results to have low electron and hole energy level. The computation also suggests that the variation of structural parameters can make the PL peak wavelength shift slightly.

Key words : DWELL ; energy structure ; PL peak wavelength

PACC : 7320D ; 7125W ; 7280E

Article ID : 0253-4177 (2002) 10-1051-06

* Project supported by the Doctorial Program of Education Ministry of China (Grant No. 96002703)

Liu Chengshi male ,was born in 1964 ,PhD candidate. He is primarily involved in optical and electronic character ,transport feature of semiconductor self-assembled quantum dots device.

Ma Benkun male ,was born in 1933 ,professor and tutor of PhD candidates. His research interests include theories of semiconductor microstructures ,crystal surface and interface scaling growing etc.

Received 24 January 2002 ,revised manuscript received 15 April 2002

© 2002 The Chinese Institute of Electronics