

自组织生长 InAs 量子点发光的温度特性 *

吕振东 杨小平 袁之良 徐仲英 郑宝真 许继宗

(半导体超晶格国家重点实验室 中国科学院半导体研究所 北京 100083)

陈 弘 黄 纤 周均铭 王建农 王玉琦 葛惟昆

(中国科学院物理研究所 北京 100080) (香港科技大学物理系 九龙 香港)

摘要 本文报道了 InAs/GaAs 自组织生长量子点结构中发光的温度特性。在 12~150K 温度范围内, 实验测得的 InAs 激子发光能量随温度增加明显红移, 其红移速率远大于 InAs 带隙的温度关系, 而光谱宽度则明显减小。这些结果表明 InAs 量子点结构是一种强耦合系统, 局域在 InAs 量子点中的载流子波函数会相互交迭、相互贯穿, 从而增强了载流子的弛豫过程。

PACC: 7855, 7135

在 GaAs 衬底上自组织生长 InAs 量子点、量子线结构是一种很有前途的直接生长低维半导体结构的新方法^[1~5]。InAs 和 GaAs 具有较大的晶格失配度(7%), 在 GaAs 衬底上生长 InAs 是一种典型的 Stranski-Krastanov 生长模式。当 InAs 厚度小于临界厚度(1.5~1.7InAs 单层)时, InAs 分子集聚、镶嵌在 GaAs 基质材料中, 形成点状、线状分子集合体^[4]。当 InAs 生长厚度超过临界厚度时, 其结构将由一层浸润层(Wetting layer)和在它上面分布的岛状结构组成。这种岛状结构可以看成是 InAs 量子点^[6,7]。一般认为这种量子点结构具有圆锥体形状, 底部横向尺寸几十纳米, 高度为几纳米不等。光学测量表明, 这种自组织 InAs 量子点结构具有非常高的发光效率, 这一方面归因于 InAs 激子的局域化效应, 另一方面是由于这种镶嵌式结构大大减少了自由表面可能产生的各种非辐射复合中心, 使它成为一种近乎无缺陷的材料体系。因此这种自组织生长材料有可能成为一种具有广阔应用前景的光电子发光材料。而对实际器件应用来说, 发光的热稳定性具有十分重要的意义。

本文报道 InAs 自组织量子点结构发光温度特性研究方面的最新成果, 包括发光的热猝灭特性及发光能量、光谱半宽的温度依赖关系。我们发现当 InAs 厚度小于临界厚度时, 其温度特性与量子阱类似, 具有二维特性; 而当 InAs 层厚大于临界厚度时, 其发光表现出异常的温度特性, 这种特性与 InAs 量子点结构中波函数之间的耦合作用直接相关。

* 国家自然科学基金和国家攀登计划资助项目

吕振东 男, 1967 年生, 博士生, 从事低维半导体结构光学性质研究

徐仲英 男, 1942 年生, 研究员, 博导, 现从事半导体光学性质研究

杨小平 男, 1966 年生, 在职博士生, 从事 MBE 外延研究

1996 年 2 月 29 日收到初稿, 1996 年 4 月 16 日收到修改稿

实验所用样品由 MBE 生长, 样品基本结构为: 以(100)半绝缘 GaAs 作衬底, 先生长 GaAs 缓冲层, 然后直接生长不同厚度的 InAs 层, 上面再覆盖 20nm 左右的 GaAs 层。InAs 层生长温度为 450°C, 整个生长过程由 RHEED 监控。X 光双晶衍射、TEM、SEM 分析表明, 材料具有良好的结构特性。具体生长过程及结构分析将另文发表。光学测量采用常规的光致发光技术, 用氩离子 514.5nm 线激发, 低温 Ge 探测器探测。样品置于变温装置中, 可在 12 ~ 300K 范围内精确控制温度。

图 1 是不同温度下 InAs 量子点结构的光致发光(PL)光谱, InAs 厚度为两个单层(2ML, 1ML = 0.3nm), 其结构由浸润层和岛状结构组成。这些光谱的共同特征是: 与 InAs 相关的发光峰(12K 时, 1.274eV)很强, 光谱很宽(12K 时, 75meV); 另一方面, 与 GaAs 相关的发光峰(1.515eV, 1.493eV)很弱。考虑到实际光激发厚度的差异, 两者发光强度之比更为悬殊。大的发光强度表明载流子处在很好的局域状态, 具有大的振子强度。同时也表明载流子的有效弛豫过程(将在下面讨论)。仔细观察图 1, 还可以发现在 1.380eV 附近有一个很弱的小峰, 根据其能量位置及其发光特性, 指认为浸润层发光, 其能量大于量子点结构发光能量, 主要是因为量子点结构的高度远比浸润层厚度(临界厚度附近)大得多。下面的分析表明这个浸润层将成为 InAs 量子点结构的热猝灭势垒。而对于 InAs 单层结构, 其热势垒则是 GaAs 层。

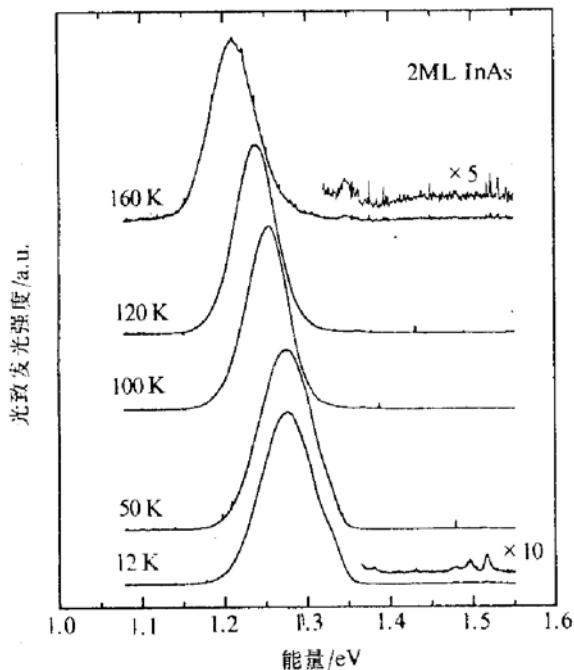


图 1 不同温度下 2ML InAs 量子点结构的光致发光谱

强度随温度的变化。在较低温度时, 荧光强度基本不变或变化平稳; 而在温度较高时, 就出现热猝灭现象。此时荧光强度可表示为 $I = C \exp(-E_A/kT)$ 。由此可直接求得热激活能(E_A)。对 1ML 样品, $E_A = 64\text{meV}$; 而对 2ML 样品, $E_A = 116\text{meV}$ 。上述数值分别对应 1ML InAs 发光峰与 GaAs 带边发光能量之差(67meV)和 2ML InAs 发光峰与浸润层发光能量之差(106meV)。这个结果表明, 当 InAs 层厚小于临界厚度时(单层或亚单层), InAs 发光的热激活必须克服 GaAs 势垒。而当 InAs 层厚大于临界厚度时, 浸润层势垒可成为 InAs 载流子的热势垒。这一现象在许多样品中均观察到过, 结果列于表 1 中。类似地, 浸润层的势垒作用在光致发光激发谱中也曾有人报道过^[7]。

表 1 计算得到的热激活能 E_A 和相应光谱能量之差的比较

InAs 层厚 / ML	热激活能 E_A / meV	$E_{\text{GaAs}}(E_{\text{wetting}}) - E_{\text{QD}}$ / meV
0.5	27	28
1	64	67
2	116	106
2.5	108	120

图 3 是上述两个样品的发光能量位置(E_{hv})和半高宽(FWHM)随温度的变化。可以看出

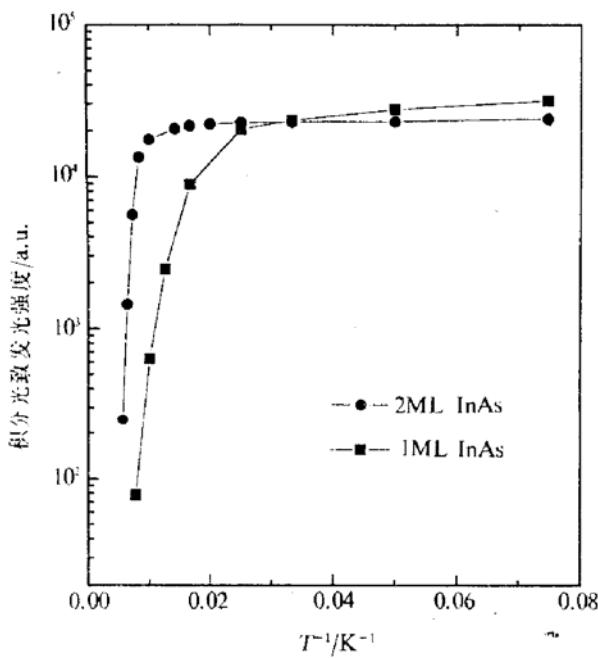


图 2 两个不同 InAs 样品(1ML 和 2ML)的积分荧光强度随温度的变化

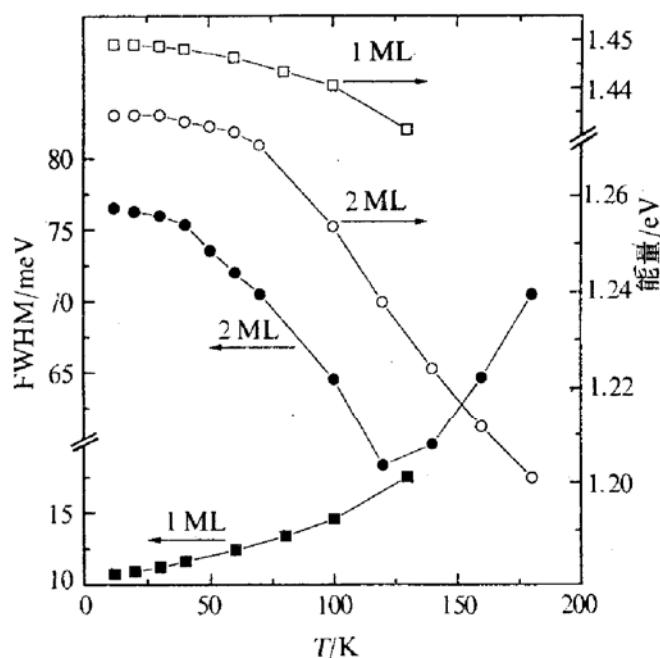


图 3 1ML 和 2ML-InAs 样品发光能量位置(E_{hv})和光谱半高宽(FWHM)随温度的变化

2ML InAs 具有非常强的温度依赖关系,与 1ML 结构的特性完全不同。关于单层和亚单层的发光的温度特性,我们曾有过详细的研究^[5],其发光特性与二维系统十分接近。但当 InAs 厚度大于临界厚度时,其发光主要来自量子点岛状结构,光谱的宽度直接反映了量子点大小的均匀性。而这些量子点的间距大约在 10~30nm^[2,7,8]之间,局域在量子点上的激子波函数会发生较大的交迭,并相互贯穿,这样整个系统成为一个耦合系统,量子点中的载流子可发生相互扩散和转移。这种波函数的交迭和扩展,实际上增加了参与发光的态密度,有助于载流子的弛豫过程,也有助于解除(或部分解除)“声子瓶颈效应”^[9,10],使这种量子点结构总的发光强度大大加强。当温度升高时,由于电子-声子相互作用增强,不同量子点载流子之间的隧穿过程增加,加剧了耦合作用和弛豫作用,使高能级的载流子向低能级转移,从而使得发光能量迅速红移,并伴随光谱半宽的变窄和光谱形状的不对称性变化(见图 1)。当温度进一步增加时,由于载流子的热布居,光谱半宽随之增加。由图 3 得到 2ML InAs 发光能量的变化速率约为 1ML 样品的三倍,(1ML 样品的带隙变化十分接近 InAs 体材料的带隙变化)。正是基于这种分析,可以预期,当量子点的尺寸均匀性较好时,相应光谱半宽较窄,发光能量半宽随温度的变化亦将明显减小。我们已观察到这一现象,例如一个 2.5ML InAs 量子点样品,低温时光谱半宽为 56meV,在 10~150K 范围内,其 E_{hv} 变化速率仅为正常带隙变化速率的 1.5 倍,而光谱半宽只减小了 ~3meV。反之当一个样品尺寸均匀性较差时,低温 FWHM 必然很大,相应变化也会很大^[11]。

参 考 文 献

- [1] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1993, **63**: 3203.
- [2] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1994, **64**: 196.
- [3] K. Ploog and O. Brandt, Semicond. Sci. & Technol., 1993, **8**: S229.
- [4] P. D. Wang, N. N. Ledentsov, C. M. Sotomayern Torres *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1994, **64**: 1526.
- [5] Z. L. Yuan, Z. Y. Xu, B. Z. Zheng *et al.*, to be published in Phys. Rev. B.
- [6] J. M. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael *et al.*, Phys. Rev. Lett., 1994, **73**: 716.
- [7] Qianghua Xie, P. Chen, A. Kalburge *et al.*, J. of Crystal Growth, 1995, **150**: 357.
- [8] D. Leonard, K. Pond and P. M. Petroff, Phys. Rev. B, 1994, **50**: 11687.
- [9] U. Bockelmann and G. Bastard, Phys. Rev. B, 1990, **42**: 8947.
- [10] H. Benisty, C. M. Sotomayor Torres and C. Weisbuch, Phys. Rev. B, 1991, **44**: 10945.
- [11] D. I. Lubyshev, P. P. Gonzalez-Borrero, E. Marega *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1996, **68**: 205.

Temperature Behavior of Exciton Emission in Self-Organized InAs Quantum Dots

Lu Zhendong, Yang Xiaoping, Yuan Zhiliang,
Xu Zhongying, Zheng Baozhen and Xu Jizong

*(National Laboratory for Superlattices & Microstructures, Institute of Semiconductors,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)*

Chen Hong, Huang Qi and Zhou Junming

(Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

Wang Jiannong, Wang Yuqi and Ge Weikun

(Department of Physics, Hong Kong University of Science & Technology, Clear Water Bay, Kowloon, Hong Kong)

Received 29 February 1996, revised manuscript received 16 April 1996

Abstract We report on the results of temperature-dependent photoluminescence in self-organized InAs quantum dots (QDs) grown on GaAs substrates. In the temperature range from 12 to 150K we observed a fast red-shift of exciton emission and an anomalous decrease of line-width with increasing temperature. We believe that the unusual temperature behavior is typical characteristics of self-organized InAs QDs, resulting from the enhanced carrier relaxation process due to the spread and penetration of the wave functions of carriers in strongly-coupled InAs QDs.