

# 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\*

陈 晔 张 旺 李国华 朱作明 韩和相 汪兆平  
(中国科学院半导体研究所, 半导体超晶格国家重点实验室, 北京, 100083)  
周 伟 王占国  
(中国科学院半导体研究所, 半导体材料科学实验室, 北京, 100083)

TN304.26  
0471.1

**摘要:** 测量了自组织多层  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子点的变温光致发光谱, 同时观察到来自浸润层和量子点的发光, 首次直接观察到了浸润层和量子点之间的载流子热转移, 分析发光强度随温度的变化发现浸润层发光的热淬灭包括两个过程: 低温时浸润层的激子从局域态热激发到扩展态, 然后被量子点俘获; 而温度较高时则通过势垒层的 X 能谷淬灭。利用速率方程模拟了激子在浸润层和量子点间的转移过程, 计算结果与实验符合得很好。

**关键词:** 量子点, 光致发光, 浸润层。

三元化合物, 半导体

## 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 \*

CHEN Ye ZHANG Wang LI Guo-Hua ZHU Zuo-Ming HAN He-Xiang WANG Zhao-Ping  
(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)  
ZHOU Wei WANG Zhan-Guo  
(Laboratory of Semiconductor for Material Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

**Abstract** The photoluminescence of self-assembled multilayer  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  quantum dot (QD) was measured at various temperatures. Strong photoluminescence of wetting layer (WL) and quantum dots were observed at the same time. Furthermore, direct excitons thermal transfer process between the wetting layer and quantum dots was observed. In the study of temperature dependence of PL intensity it was found that the PL peak of wetting layer contains two quenching processes; at low temperature, excitons are thermally activated from localized states to extended two-dimensional states and then trapped by QDs; at high temperature excitons quench through the X valley of barriers. Using rate equation excitons thermal transfer and quenching processes were analyzed quantitatively.

**Key words** quantum dot, photoluminescence, wetting layer.

### 引言

近年来由于在光电子器件中的广阔应用前景和对人们低维持特性基础研究的要求, 半导体自组织量子点结构的研究引起了人们的广泛注意。发光峰在近红外波段的  $\text{In}(\text{Ga})\text{As}/\text{GaAs}$  量子点系统已经被广泛的

研究。近年来,  $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$  量子点系统由于其发光在红光波段而受到人们的关注<sup>[1~4]</sup>, 已经有很多工作研究了零维系统的载流子动力学和发光峰的热淬灭机制, 自组织量子点发光的峰值能量和半高宽的反常温度特性也已经被观察到, 一般把它们归结为量子点之间载流子的弛豫<sup>[4~6]</sup>, 有人指出浸润层在这

\* 国家自然科学基金(编号: 69776012)和国家攀登计划资助项目  
稿件收到日期 1999-04-22, 修改稿收到日期 1999-09-20

\* The project supported by the National Natural Science Foundation of China  
Received 1999-04-22, revised 1999-09-20

种载流子转移中扮演了重要角色<sup>[7,8]</sup>。但由于这些实验都没有直接观察到浸润层的发光,因此还需要更直接的证据来帮助理解这种载流子转移和淬灭机理。吕振东等<sup>[9]</sup>曾在用低于势垒带隙的激发光激发时观察到浸润层发光,但没有观察到从浸润层到势垒层的淬灭过程,也没有直接观察到激子从量子点到浸润层的转移。

本文报导了多层  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子点的变温光致发光谱研究,我们同时观察到了量子点和浸润层的发光。变温光谱表明浸润层的发光具有典型的二维量子阱温度特性;而量子点的发光峰呈现出峰值能量超常红移和半高宽变窄等反常温度特性。在研究发光峰的热淬灭时我们发现浸润层发光峰包括两个热淬灭过程。并且首次直接观察到了浸润层和量子点之间的激子热转移过程,我们利用速率方程来模拟这种激子的热转移过程,定量分析与实验符合得很好。

## 1 实验和样品

多层  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子点样品用 MBE 方法生长在 GaAs(001) 衬底上,首先在 600°C 温度下生长了 200nm 的 GaAs 缓冲层,然后生长 80nm 的  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ ,再将温度冷却到 530°C,生长 5 个周期的  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  (10ML/10nm) 的有源层,最后生长了 75nm 的  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  限制层和 5nm 的 GaAs 盖层。整个生长过程都由高能电子衍射 (RHEED) 进行监测。

光荧光测量温度范围为 10~180K,用 APD 闭环致冷系统实现变温控制。入射光采用的是氩离子激

光器的 514.5nm 线,激发光被聚焦到约直径 5 $\mu\text{m}$  的区域,功率约为 100W/cm<sup>2</sup>。信号采用 JY-HRD1 单色仪分光 and GaAs 光电倍增管以光子计数模式接收。

## 2 结果与讨论

图 1 给出的是样品的变温光致发光谱,可以看出在 10~180K 的温度范围内都能观察到两个峰。在 10K 时低能峰能量为 1.929eV,半高宽约 85meV。高能峰具有较窄的半高宽(约 20meV),能级位置为 2.021eV。从图中可以发现两个发光峰的发光强度、能量位置、以及半高宽都强烈地依赖于样品的温度,而且不难看出在低温下低能峰强度较大,而高温时却是高能峰更强,这表明发光峰之间存在着载流子转移,我们将在后面讨论。

图 2 和 3 分别给出了 2 个发光峰的能量和半高宽随温度的变化关系。为了对照,图 2 中实线给出了势垒层  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  的带隙温度变化关系<sup>[10]</sup>,图中虚线是经过垂直平移的  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$  带隙的温度变化关系<sup>[11]</sup>。从图 2 和 3 中可以清楚地看出高能峰的峰值能量的温度变化关系与  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒层和  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$  带隙的相似,而且其半高宽随温度升高而单调增加,这些都是二维量子阱的典型特性<sup>[12-14]</sup>。因此我们把高能峰指认为浸润层的发光。值得注意的是:在低于 60K 时,高能峰的能量比相应的虚线所表示的温度关系大约要低 10meV。这是由于浸润层界面的微起伏和缺陷引起的激子局域化造成的。这种现象经常能在量子阱中观察到<sup>[14]</sup>。在 InAs/GaAs 自组织量子

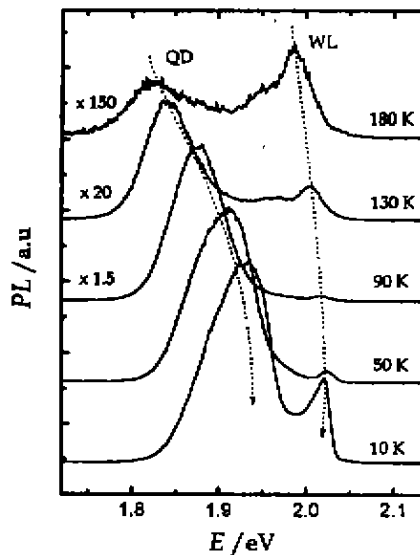


图 1 多层  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子点的变温光致发光谱

Fig. 1 PL spectra of multilayer  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  quantum dots at various temperatures

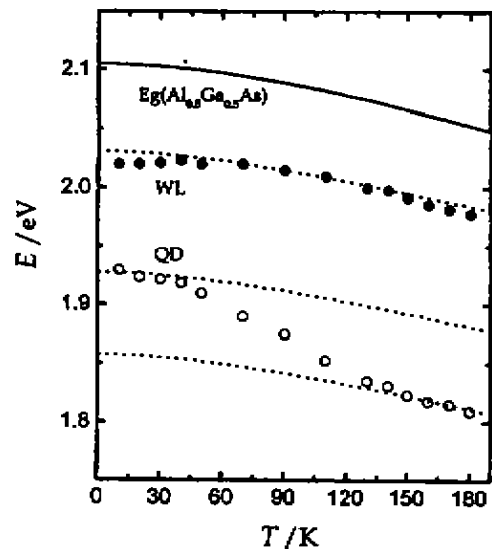


图 2 浸润层和量子点发光峰的峰值能量随温度的变化关系

Fig. 2 Temperature dependence of photoluminescence peak energy of WL and QDs peaks

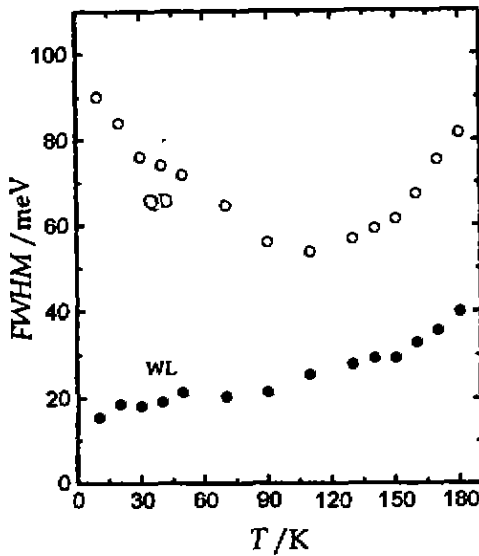


图3 浸润层和量子点发光峰的半高宽随温度的变化关系

Fig. 3 Temperature dependence of linewidth (FWHM) of WL and QDs peaks

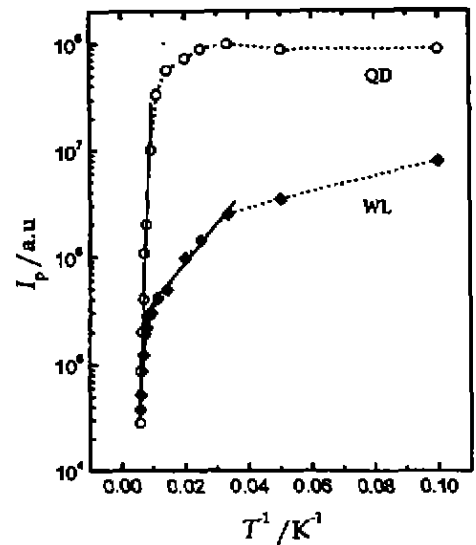


图4 浸润层和量子点的发光峰积分强度随温度的变化关系

Fig. 4 Temperature dependence of integrated intensities of WL and QDs peaks

点中,在高于势垒的激发光激发下通常观察不到浸润层发光峰.我们的样品在高于势垒的激发光激发下也能观察到浸润层发光,这可能与多层生长时浸润层量子较强的局域化有关.

低能峰来源于量子点的发光,其温度行为与浸润层发光峰截然不同.它的峰值能量的温度变化关系与  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  和势垒层  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  明显不同.从图2可看出在低于50K和高于110K时,其能量的温度关系与  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  类似.而在中间温度(50~100K)时,其能量变化出现超常红移.与此同时,从图3可以看到它的半高宽先随温度升高而下降,当温度升到100K以上时,半高宽再随温度升高而上升.这种现象与在  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  量子点中观察到的现象类似<sup>[4~5]</sup>.在低温时由于量子约束激子很难在量子点之间转移,激子发光峰的峰宽由量子点的不均匀尺寸分布决定,当温度升高时,能量较高的量子点中的激子可以通过隧道穿透,或热激发过程转移到低能量的量子点中,从而引起峰值能量的超常红移和半高宽的减小.我们拍摄了透射显微平面形貌图,照片显示岛的横向尺寸在100~200Å之间,岛密度较大,很多岛状结构紧密相连,这使得载流子热转移易于发生.温度继续升高到超过100K时,电子-声子散射和激子的热分布成为主要因素,结果峰值能量和半高宽的温度关系又与通常的体材料类似<sup>[15]</sup>.

为了更好地了解发光峰的淬灭机理,图4给出了

浸润层和量子点发光峰的积分强度和温度的关系.当两个峰之间有交迭时,我们利用两个高斯线型来拟合以得到各峰的积分强度.从图1中可以看出当温度高于130K时,在浸润层和量子点之间还出现了一个小峰,它可能是量子点的激子激发态发光,在计算积分强度时未计入它的贡献.图中直线是对相应实验点进行最小二乘法拟合的结果.从图4我们可以看到浸润层发光峰的淬灭过程可以分为两个阶段.在10~80K范围内,发光峰的淬灭较为缓慢,我们认为它对应于浸润层中的激子从局域态中热激发到扩展的自由激子态,然后被量子点捕获的过程,这可以从量子点发光峰强度在此温度范围内有所增强得到进一步证实.从此段直线的斜率我们得到局域激子的激活能量为7meV,也与从图2得到的10meV基本一致.在90~180K温度范围内浸润层发光峰迅速淬灭,从这一段的斜率可得到此时的激活能为89meV,同浸润层发光峰峰值能量与  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒的X能谷能量差(85meV)基本一致,而比浸润层与势垒层Γ谷能量差(235meV)小得多.对于  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒来说,最低导带底是X能谷.所以我们认为此时发光峰淬灭对应于浸润层激子热激发到  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒的X能谷,然后通过各种非辐射复合中心复合.由于X能谷的发光效率很低,所以我们没有观察到势垒层的发光峰.

量子点的发光强度随温度的变化与浸润层发光不同.在10~50K时量子点发光强度随温度的升高而增

大,如前所述,这是由于激子从浸润层中转移到量子点中所致.到高于 90K 以后量子点发光峰迅速淬灭,从它的斜率得到的激活能为 105meV,它比浸润层和量子点发光峰能量之差(91meV)大一些,但比量子点发光峰与  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒 X 能谷的能量差(175meV)要小得多.这表明此时量子点发光主要是通过激子激发到浸润层来淬灭的.激子激发到势垒层的过程可能要到更高的温度时才比较明显.

由于我们同时观察到了量子点和浸润层的发光,所以我们可以仔细地考察激子在量子点和浸润层之间由热激发引起的转移.为此,我们在图 5 中给出了量子点发光峰和浸润层发光峰的发光强度比  $R=I_1/I_2$  随温度的变化关系,其中  $I_1$  和  $I_2$  分别为量子点和浸润层发光峰的积分强度.从图 5 可以看到在 10K 时量子点发光峰的强度约为浸润层的 20 倍,随着温度的升高,两峰的强度比  $R$  进一步增大,在 80K 左右达到最大.在此温度区域,激子主要是从浸润层到量子点的转移.温度进一步升高则  $R$  迅速下降,这表明此时激子从量子点到浸润层的转移起主导作用.

为了定量描述激子在量子点与浸润层之间的转移过程,我们设量子点和浸润层中的激子数分别为  $N_1$  和  $N_2$ ,而辐射复合率(发射率)分别为  $r_1(e_1)$  和  $r_2(e_2, e_3)$ ,假设量子点和浸润层之间的激子转移只由热激发的非辐射过程决定,我们给出速率方程

$$\frac{dN_1}{dt} = G_1 + N_2 e_2 \exp\left\{\frac{-\Delta E_2}{KT}\right\} - N_1 r_1 - N_1 e_1 \exp\left\{\frac{-\Delta E_1}{KT}\right\}, \quad (1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = G_2 + N_1 e_1 \exp\left\{\frac{-\Delta E_1}{KT}\right\} - N_2 r_2 - N_2 e_2 \exp\left\{\frac{-\Delta E_2}{KT}\right\} - N_2 e_3 \exp\left\{\frac{-\Delta E_3}{KT}\right\}, \quad (2)$$

式(1)和(2)中第一项  $G_1$  和  $G_2$  分别是 QD 和 WL 的光生激子数,包括由激发光在量子点和浸润层中直接激发产生的激子数,和从势垒层俘获的激子数.式(1)中第二项描述浸润层的局域激子从局域态热激发到扩展态中,然后被量子点俘获的转移过程, $\Delta E_1$  为浸润层的激子局域能;第三项  $N_1 r_1$  描述的是量子点中的激子辐射复合过程;最后一项描述的是量子点的激子从量子点热激发到浸润层的转移过程, $\Delta E_2$  是浸润层与量子点束缚能级之间的能量差.式(2)中的最后一项描述的是高温下浸润层中的激子通过势垒层而淬灭的过程, $\Delta E_3$  是浸润层和  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒 X 能谷之间的能量差.其它各项意义与式(1)相同.从对图 4 的分析可知,

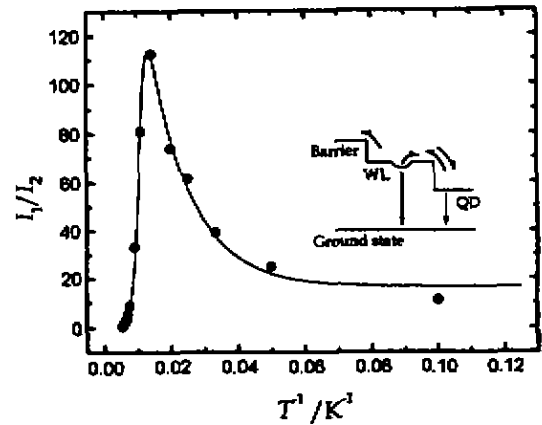


图 5 量子点和浸润层发光峰强度比的温度变化关系,计算曲线用实线画出,插图描绘的是激子热激发过程的示意图

Fig. 5 Temperature dependence of PL intensity ratio of QDs and WL peak, the solid line represents the calculated results. The inset is the schematic diagram of excitons thermal transfer and quenching processes

从量子点到势垒层的激子淬灭过程可以忽略,所以在式(1)中没有计入相关项.图 5 中的插图给出了这些激子转移过程的示意图.

由于发光强度  $I_1=N_1 r_1, I_2=N_2 r_2$ ,根据稳态条件可以得出量子点和浸润层发光的强度比为

$$R = \frac{I_1}{I_2} = \frac{\left[ G'_1 + \left\{ \frac{e_2}{r_2} \right\} \exp\left\{ \frac{-\Delta E_2}{KT} \right\} + G'_1 \left\{ \frac{e_1}{r_2} \right\} \exp\left\{ \frac{-\Delta E_3}{KT} \right\} \right]}{\left[ G'_2 + \left\{ \frac{e_1}{r_1} \right\} \exp\left\{ \frac{-\Delta E_1}{KT} \right\} \right]} \quad (3)$$

式中  $G'_{1,2}=G_{1,2}/(G_1+G_2)$ ,通过可调参数  $G_1, G_2$  和  $e_1/r_1, e_2/r_2, e_3/r_3$ ,利用式(3)可以拟合实验数据.计算中, $\Delta E_1=91\text{meV}$  是 10K 时浸润层和量子点发光峰的能量差, $\Delta E_2=7\text{meV}$  由低温时计算的浸润层激子局域能得到, $\Delta E_3=85\text{meV}$  是浸润层发光峰和  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒 X 能谷之间的能量差.计算得到曲线在图 5 中用实线给出,可以看出计算的结果与实验数据符合得很好.

### 3 结论

我们测量了多层  $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子点的变温荧光谱,同时被观察到浸润层和量子点的发光.浸润层的发光峰具有典型的二维特性,而量子点发光峰则表现出反常的温度变化特性.在仔细研究发光峰的积分强度的温度依赖关系时,我们发现浸润层的

发光峰包含了两个淬灭过程:在低温时激子从局域态激发到扩展态,然后被量子点所俘获.在高温下浸润层中的激子可以通过  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  势垒 X 能谷淬灭;量子点的发光主要通过浸润层淬灭.我们用速率方程定量地分析了浸润层和量子点之间的激子热转移过程,所得结果与实验符合得很好.

## REFERENCES

- [1] Leon R, Fafard S, Leonard D, *et al.* Red-emitting semiconductor quantum dot lasers, *Science*, 1996, **274**: 1350
- [2] Fafard S, Leon R, Leonard D, *et al.* Visible photoluminescence from N-dot assemblies and the linewidth of ultrasmall  $\text{AlInAs}/\text{AlGaAs}$  quantum dots, *Phys. Rev. B*, 1991, **50**: 8086
- [3] Arlett J, Yang F, Hinzer K, *et al.* Temperature independent lifetime in  $\text{InAlAs}$  quantum dots, *J. Vac. Sci. Tech. B*, 1998, **16**(2): 578
- [4] Lubyshev D I, Gonzalez-Borrero P P, Marega, *et al.* Exciton localization and temperature stability in self organized  $\text{InAs}$  quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**: 205
- [5] Dai Y J, Fan J C, Chen Y F, *et al.* Temperature dependence of photoluminescence spectra in  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  quantum dots superlattice with large thickness, *J. Appl. Phys.*, 1997, **82**(2): 1189
- [6] Takeuchi A, Nacata Y, Muto S, *et al.* Near-1.3  $\mu\text{m}$  high-intensity photoluminescence at room temperature by  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  multi-coupled quantum dots, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**: L405
- [7] Brusaferrri L, Sanguinetti S, Gilh E, *et al.* Thermally activated carrier transfer and luminescence line shape in self-organized  $\text{InAs}$  quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**: 3354
- [8] Xu Z Y, Lu Z D, Yang X P, *et al.* Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized  $\text{InAs}$  multi-layer grown on  $\text{GaAs}$  substrates, *Phys. Rev.*, 1996, **B54**: 11528
- [9] LU Zhen-Dong, XU Zhong-Ying, ZHENG Bao-Zhen, *et al.* Photoluminescence studies of wetting layer in  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  self-organized quantum dot structure, *Chinese Journal of Semiconductors* (陆泽东, 徐仲英, 郑宝珍, 等.  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  自组织生长量子点结构中浸润层光致发光研究, *半导体学报*), 1997, **18**(7): 631
- [10] Pavesi Lorenzo, Guzzi Mario. Photoluminescence of  $\text{Al}(\text{Ga})_x\text{As}$  alloys, *J. Appl. Phys.*, 1994, **75**(10): 1779
- [11] Gaskill D K, Bottka N, Ama L, *et al.* Band-gap determination by photoreflectance of  $\text{InGaAs}$  and  $\text{InAlAs}$  lattice match  $\text{InP}$ , *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **56**: 1269
- [12] Xu Z Y, Yuan Z L, Xu J Z, *et al.* Exciton localization in corrugated  $\text{GaAs}/\text{AlAs}$  superlattices grown on (311)  $\text{GaAs}$  substrates, *Phys. Rev.*, 1995, **B51**: 7021
- [13] Bastard G, Delalande C, Heynadier M H, *et al.* Low-temperature exciton trapping on interface defects in semiconductor quantum wells, *Phys. Rev.*, 1981, **B29**: 7042
- [14] Delalande C, Meynadier M H, Voos M. Effect of temperature on excitons trapping on interface defects in  $\text{GaAs}$  quantum well, *Phys. Rev.*, 1985, **B31**: 2491
- [15] Gammon D, Rudin S, Reincke T L, *et al.* Phonon broadening of excitons in  $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$  quantum wells, *Phys. Rev.*, 1995, **B51**: 16785