

生长在(311)A 面 GaAs 衬底上的 InAlAs/AlGaAs II 型量子点的光致发光研究*

陈 晔¹⁾ 李国华¹⁾ 朱作明¹⁾ 韩和相¹⁾ 汪兆平¹⁾ 周 伟²⁾ 王占国²⁾

¹⁾中国科学院半导体研究所,超晶格和微结构国家重点实验室,北京,100083;

²⁾中国科学院半导体研究所,半导体材料科学实验室,北京,100083)

摘要 测量了生长在(311)A 面 GaAs 衬底上的 $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 自组织量子点光致发光谱,变激发功率和压力实验证明发光峰是与 X 能谷相关的 I 型发光峰,将它指认为从 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 势垒 X 能谷到 $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$ 重空穴的 I 型跃迁.高温下观察到的高能峰随压力增大向高能方向移动,认为它来源于量子点中 Γ 能谷与价带之间的跃迁.在压力下还观察到了一个新的与 X 相关的发光峰,认为它与双轴应变引起的导带 X 能谷劈裂有关.

关键词 InAlAs/AlGaAs,量子点,压力,光致发光.

PHOTOLUMINESCENCE STUDIES OF TYPE-II SELF-ASSEMBLED InAlAs/AlGaAs QDs GROWN ON (311)A GaAs SUBSTRATE*

CHEN Ye¹⁾ LI Guo-Hua¹⁾ ZHU Zuo-Ming¹⁾ HAN He-Xiang¹⁾ WANG Zhao-Ping¹⁾
ZHOU Wei²⁾ WANG Zhan-Guo²⁾

¹⁾National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China;

²⁾Laboratory of Semiconductors for Materials Sciences, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract The photoluminescence (PL) spectra of self-assembled $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ quantum dots (QD) grown on (311)A GaAs substrate were measured. The type-I character of PL related to the X valley was verified by excitation power dependence of peak position and the PL spectra under different pressure, which was attributed to the type-II transition from X valley in $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ to heavy holes in $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$. The high energy Γ -related transition was also observed above 70K and assigned as the transition between Γ valley and heavy holes in $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$. The X-valley split was discussed to interpret the observed second X-related peak under pressure.

Key words InAlAs/AlGaAs, quantum dot, pressure, photoluminescence.

引言

近年来,发光波段在近红外波段的 InAs/GaAs、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点被大量研究.所有这些量子点都具有 I 型的能带结构,并且导带的最低能谷为 Γ 能谷. I 型量子点已在 GaSb/GaAs 和 InSb/GaAs 系统中实现^[1,2],但它们的导带最低能谷仍然是 Γ 能谷.对于 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ 异质量量子点系统^[3,4],大组分 $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ 是间接

带材料,可以预期,当量子点尺寸变得足够小时,电子运动受到强烈的量子限制效应,将导致 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ 导带最低能带上升到 $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ 的 X 能谷之上,从而形成导带最低能够为 X 能谷的 II 型量子点,还从未见过这种 II 型自组织量子点结构的报道.

我们研究了生长在(311)A 面 GaAs 衬底的 InAlAs/AlGaAs 自组织 II 型小量子点的光致发光谱,在常压 10K 温度时,量子点发光峰对激光的激发功率非常敏感,这是典型的 I 型量子点结构的特征.在

* 国家自然科学基金(编号 60076012)资助项目
稿件收到日期 2000-08-14,修改稿收到日期 2000-11-06

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 60076012)
Received 2000-08-14, revised 2000-11-06

加流体静压的条件下测得的光致发光谱证实量子点发光峰是与 X 能谷相关的 II 型跃迁. 当温度升高到 70K 以上时, 在量子点发光峰的高能侧出现了一个新峰, 我们认为它来源于 InAlAs 量子点层更高的 Γ 能带跃迁. 加压后, 在量子点发光峰的低能侧可以分辨出一个弱发光峰, 我们认为它与 InAlAs 量子点层由于双轴应力引起的 X 谷劈裂有关.

1 实验

样品是用 MBE 生长在半绝缘的 (311)A 取向的 GaAs 衬底上, 结构为: 200nm 的 GaAs 缓冲层, 然后是 80nm 的 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 隔离层, 10ML 的 $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$ 量子点层, 75nm 的 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 层和 5nm 的 GaAs 盖帽层. 全部的生长过程由高能电子束衍射进行监测, TEM 照片显示在 (311)A 取向的 GaAs 衬底上生长成了小量子点, 它的横向尺寸大约为 7nm, 面密度为 $6.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$.

在测量压力光谱时, 样品从背面机械减薄到大约 $20 \mu\text{m}$, 然后再切成 $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ 见方的小片. 我们用金刚石对顶砧来获得较高的流体静压, 用液氦作为传压媒质. 压力用红宝石定 R_1 线定标. 我们在 15K 和 80K 时进行了压力下光致发光的测量, 激发光用的是氦离子激光器的 413.1nm 线, 功率密度为 100W/cm^2 . 样品的发光通过 JY-HRD1 双光栅单色仪, 用 GaAs 光电倍增管以光子计数器模式计数.

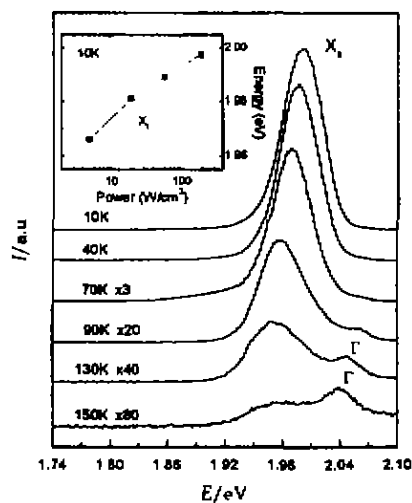


图 1 生长在 (311)A 面 GaAs 衬底上的 InAlAs/AlGaAs 量子点的变温度光致发光谱, 插图为发光峰能量位置随激发功率的移动

Fig. 1 PL spectra of InAlAs/AlGaAs QDs at various temperatures, grown on (311) A GaAs substrate The inset shows the excitation power dependence of energy of peak X_1 at 10K

2 实验结果与讨论

图 1 是变温 (10~200K) 情况下测得的荧光谱. 在 10K 温度下只观察到能量为 1.997eV 的发光峰 X_1 , 它随着激发功率的提高而显著地向高能方向移动. 图 1 的插图给出了峰值位置随激发功率的移动, 当激发功率密度从 2mW/cm^2 升高到 200mW/cm^2 时, 发光峰的位置移动大约为 30meV, 这种显著的能量位置移动与通常的 I 型 InAs 和 InGaAs 量子点不同. 对于 I 型量子点, 发光峰随激发功率密度变化不明显^[5]. 当量子点激发态与基态发光的非均匀展宽无法分辨时, 由于态填充效应量子点发光峰的能量位置会发生稍微的蓝移. 但对 II 型 GaSb、InSb、AlSb 量子点^[1~2], 人们发现发光峰位置随激发功率密度显著移动的现象, 我们认为 X_1 峰是 II 型量子点发光峰. 在 $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}/\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 量子点中, 导带 Γ 能谷和价带具有 II 型配置, 导带 X 能谷和价带在价带带阶大于 10% 时将具有 II 型结构. 一般来说, 如果量子点的尺寸足够小时, 由于电子运动受到量子限制作用, Γ 能谷可能升高到 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 的 X 能谷之上, 而组成 II 型的能带结构, 同时导带的最低能谷为 X 能谷. 这样, 发光峰将具有 I 型发光的特征, 并且是一个与 X 能谷相关的跃迁. 当温度升高到 70K 以上时, 一个新的发光峰 Γ 出现在高能侧. 它在温度提高时变得越来越清晰, 当温度超过 150K 后变成了占主导地位的发光峰, 我们认为它来源于 InAlAs 量子点导带 Γ 能谷到价带之间的跃迁. 在 II 型 GaAs/AlAs 短周期超晶格中已经观察到过类似现象^[6], 当温度超过 150K 时人们观察到占主导地位的 I 型发光峰. 低温下大多数光生电子空穴分离到不同的层中, 而在高温下, 电子可以从 X 能谷向 Γ 能谷转移. 一般来说这种 II 型跃迁是禁戒的, 因为它们在实际空间是分离的. 我们能看到零声子线是因为界面散射和布里渊区折叠引起的 Γ -X 混合等造成的.

为了进一步证实我们的指认, 我们在高压下测量了样品的光致发光谱. 图 2(a) 和 (b) 是 15K 和 80K 温度时测得的压力光谱, 可以看出 X_1 峰显示出典型的类 X 发光特征, 它随着压力的提高而向低能方向移动, 并且其发光强度随压力增大急剧下降, 这样在低能侧出现的一个发光峰 X_2 变得清晰可分辨, 它以与峰 X_1 相近的速度随压力增大而红移. 在 80K 温度下, Γ 发光峰在 0.27GPa 时仅仅是 X_1 峰高能侧的一个小峰, 它随着压力的增大而向高能侧移动. 因此, 发光峰 Γ 是一个与 Γ 能谷相关的跃迁. X_1 峰的发光强度也随着压力的升高而减弱, 但在 80K 温

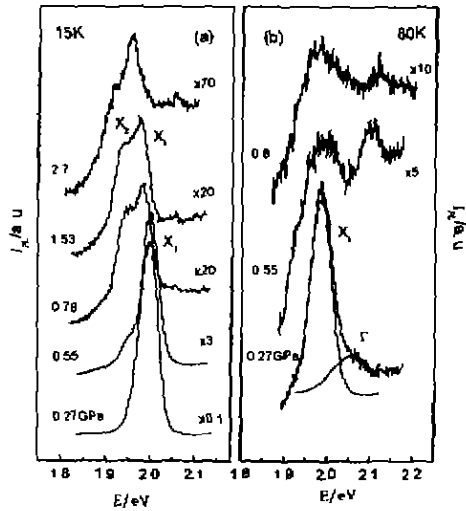


图2 InAlAs/AlGaAs 量子点在(a) 10K 和 (b) 80K 温度下的压力光致发光谱
Fig. 2 PL spectra of InAlAs/AlGaAs QDs at various pressures, measured at (a) 15K and (b) 80K

度下我们不能分辨出 X₂ 峰。

图 3(a)总结了 Γ 、X₁、X₂ 峰和 GaAs 衬底发光峰的压力依赖关系,实线表示用线性和二次曲线进行最小二乘拟合结果,相应的压力系数列于表 1。为

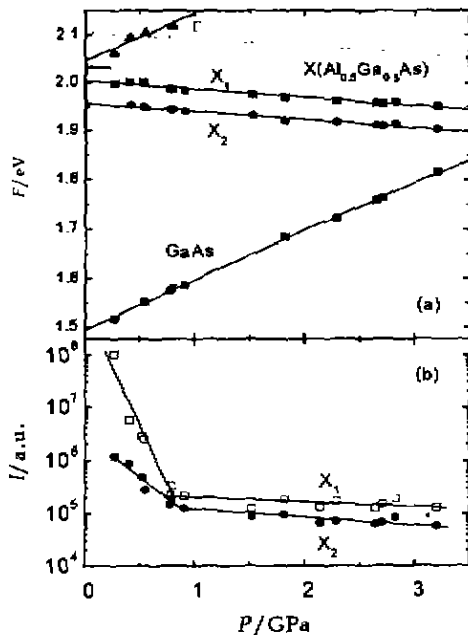


图3 (a) In_{0.55}Al_{0.45}As 量子点和 GaAs 衬底发光峰的能量位置对压力依赖关系 (b) X₁ 和 X₂ 峰的积分强度的压力依赖关系
Fig. 3 (a) Pressure dependence of the PL peaks energies of In_{0.55}Al_{0.45}As QDs and GaAs substrate (b) pressure dependence of the integrated intensities of peaks X₁ and X₂

了比较, In_{0.55}Al_{0.45}As 体材料的压力系数用虚线表示。可以清楚地看出, X₁ 峰的能量位置低于 Al_{0.5}Ga_{0.5}As 的间接带隙, 并且低于 In_{0.55}Al_{0.45}As 体材料的 X 带隙(图中的箭头所示)。相似的情况在 GaAs/Al₂Ga_{1-x}As 量子阱中也能观察到^[7], 我们把观察到的 X 谷发光峰指认为 Al_{0.5}Ga_{0.5}As 的 X 能谷到 In_{0.55}Al_{0.45}As 量子点中重空穴的跃迁发光, 这样, X₁ 峰随激发强度提高而显著移动就可以容易理解。由于光生电子和空穴的空间分离, 它们的聚集将使能带产生弯曲, 因此额外的载流子量子限制将使发光峰能量提高, 结果发光峰出现显著的蓝移。

图 3(b)还给出 X₁ 和 X₂ 峰的积分强度压力依赖关系, 可以看出 X₁ 峰的强度在 0.8GPa 的压力范围内以 3 个数量级的速度急剧下降, X₂ 峰的强度只下降了约 1 个数量级。当压力不大于 0.8GPa 后, 两个峰的强度大致相同, 并且随着压力的增大有相近的下降趋势。这种现象在生长在(001)面 GaAs 衬底上的 InAs/GaAs 单层结构中^[8]也观察到过, 类 X 发光峰在 Γ -X 交叉点附近强度急剧下降一般归因于界面处势台阶引起的 Γ -X 混合效应, 两个类 X 发光峰来源于双轴应变引起的 X 能级劈裂。

我们的样品由于量子点是生长在(311)A取向的衬底上, 情况要复杂一些。我们知道体布里渊区通常有 6 个等效的 X 点(沿<001>方向)和 8 个等效的 L 点(沿<111>方向)。但是, 当体布里渊区在生长方向上折叠时, 体材料的 X 点投影到垂直于生长方向的平面上仍然会投影到不同位置。图 4 是体布里渊区在垂直于(311)轴的平面上的投影图, 图中平面布里渊区选取了第一布里渊区和部分第二布里渊区的

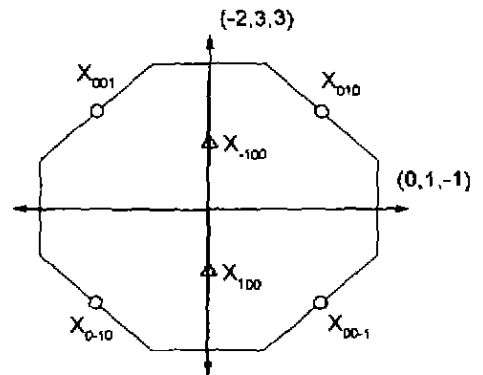


图4 InAlAs 体材料的体布里渊区在垂直于(311)方向的平面上的投影, 同时画出了等效 X 点在平面上的两组投影
Fig. 4 The projection of InAlAs bulk Brillouin zone on the plane perpendicular to [311] axis. The projections of X points on the plane are also given

组合,主要给出了体材料X点在平面上的投影点,很明显,X投影点可以分成两组: $X_{//}$ (包括 $X[100]$ 和 $X[\bar{1}00]$)和 X_{\perp} (包括 $[001]$, $X[0\bar{1}0]$, $X[010]$ 和 $X[00\bar{1}]$).椭圆主轴和 $[311]$ 轴之间的夹角为 25.2° 和 72.5° [9].虽然X点投影到垂直于 (311) 轴的平面上后并不与 Γ 点重合,但是对于在三维方向上都受到限制的量子点来说, Γ 与X波函数的混合是可能的,而且 Γ -X混合对于两组X能谷是不同的,当量子点中存在双轴应力时,X能谷将劈裂[10].两重简并的 X_{\perp} (包括 $X[100]$ 和 $X[\bar{1}00]$)将向高能方向移动,而四重简并的 $X_{//}$ (包括 $X[100]$, $X[0\bar{1}0]$, $X[010]$ 和 $X[00\bar{1}]$)则将向低能方向移动.因此, X_1 峰来源于 $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 的 X_{\perp} 能谷与 $In_{0.55}Al_{0.45}As$ 重空穴之间的II型跃迁,而 X_2 峰很可能来源于 $In_{0.55}Al_{0.45}As$ 层的 $X_{//}$ 能谷与重空穴之间的I型跃迁.自组织生长的量子点一般认为呈扁平形,如果 $(311)A$ 方向生长的 $In_{0.55}Al_{0.45}As/Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 量子点在生长方向上受到更强烈的限制,那么 X_{\perp} 能级与 Γ 能谷更易发生 Γ -X混合.因此, X_1 峰的发光强度随着压力的增大而急剧下降,而 X_2 发光峰的强度却变化不大.由于X能谷劈裂与量子点的形状和应变密切相关,很难进行细节上的讨论.

3 结语

我们测量了生长在 $(311)A$ 面GaAs衬底上的 $In_{0.55}Al_{0.45}As/Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 量子点的光致发光谱.在低温下只观察到一个发光峰 X_1 ,其能量位置随激发强度增强而显著蓝移,这表明它具有典型的II型发光特征.当温度升高到70K时,一个新的发光峰 Γ 出现

表1 采用最小二乘法关系式 $E(p)=E(0)+a_1 \times P+a_2 \times P^2$ 得到量子点样品各发光峰的压力系数和能量位置

Table 1 Energies and pressure coefficients of PL peaks in QDs sample obtained from least-square fit of a quadratic relation $E(p)=E(0)+a_1 \times P+a_2 \times P^2$ to the experimental data

Peaks	$E(0)(eV)$	$a_1(meV/GPa)$	$a_2(meV/GPa^2)$
GaAs	1.492(4)	107(6)	-2(2)
X_1	2.003(2)	-17(1)	
X_2	1.956(2)	-17(1)	
Γ	2.05(2)	98(25)	

在 X_1 峰的高能侧.压力实验证明 X_1 峰是一个与X能谷相关的发光峰,而 Γ 峰则具有典型的 Γ 型跃迁特征.因此我们将 X_1 峰指认为 $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 势垒层X能谷与 $In_{0.55}Al_{0.45}As$ 量子点中的重空穴之间的II型跃迁.导带 Γ 能谷由于强烈的电子限制效应而升高到X能谷之上,高温下在 X_1 峰高能侧出现的发光峰 Γ 即对应着量子点中 Γ 电子能谷与重空穴之间的跃迁.在压力实验中还观察到在 X_1 峰低能侧有一弱发光峰 X_2 ,我们认为发光峰 X_1 和 X_2 与双轴应变引起的 $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 中X能谷的劈裂相关.

REFERENCES

- [1] Glaser E R, Bennett B R, Shanabrook B V, *et al.* Photoluminescence studies of self-assembled InSb, GaSb and AlSb quantum dot heterostructure, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**: 3614
- [2] Bennett B R, Magno R, Shanabrook B V. Photoluminescence studies of self-assembled InSb, GaSb, and AlSb quantum dot heterostructures, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**: 505
- [3] Fafard S, Leon R, Leon D, *et al.* Visible photoluminescence from N-dot ensembles and linewidth of ultra-small AlInAs/AlGaAs quantum dot, *Phys. Rev. B*, 1994, **50**: 8086
- [4] Phillips J, Bhattacharya P, Venkateswaran. Pressure-induced energy level crossings and narrowing of photoluminescence linewidth in self-assembled InAsAs/AlGaAs quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**: 1549
- [5] Fafard S, Leon R, Leonard D, *et al.* Phonons and radiative recombination in self-assembled quantum dots, *Phys. Rev. B*, 1995, **52**: 5752
- [6] Fu L P, Bacalzo F T, Gilliland G D, *et al.* Photoluminescence determination of thermally activated fast X- Γ interlayer electron scattering in type-I GaAs/AlAs superlattice, *Phys. Rev. B*, 1995, **51**: 17630
- [7] Venkateswaran U, Chandrasekhar M, Chandrasekhar H R, *et al.* High-pressure studies of GaAs-AlGaAs quantum wells of widths 26 to 150 Å, *Phys. Rev. B*, 1986, **33**: 8416
- [8] Li G H, Goni A R, Abraham C, *et al.* Photoluminescence from strained InAs monolayers in GaAs under pressure, *Phys. Rev. B*, 1994, **50**: 1575
- [9] Ikonik Z, Srivastava G P. Electronic structure of $[133]$ -grown $(GaAs)_m(AlAs)_n$ superlattices, *Phys. Rev. B*, 1994, **49**(15): 10749
- [10] Chris G. Walle Van de Band lineups and deformation potentials in the model-solid theory, *Phys. Rev. B*, 1989, **38**: 10749