

文章编号: 1001 - 9014(2008)03 - 0161 - 05

量子链和量子点光学特性的比较研究

王宝瑞¹, 孙征¹, 徐仲英¹, 孙宝权¹, 姬扬¹, Z. M. Wang², G. J. Salamo²

(1. 中科院半导体研究所, 超晶格国家重点实验室, 北京 100083;

2. Department of Physics, University of Arkansas, Arkansas, USA)

摘要:比较研究了 InGaAs/GaAs 量子链和量子点的稳态和瞬态光学特性. 实验发现, 量子链的荧光寿命有很强的探测能量依赖关系, 而量子点的荧光寿命随能量变化较小; 量子链的荧光寿命随着激发功率迅速增加, 高功率时趋于饱和, 而量子点的荧光寿命随激发功率变化缓慢; 此外, 量子链样品的荧光上升时间也比量子点的小得多. 这些结果清楚表明, 在量子链结构中, 参与发光的载流子之间存在很强的耦合和输运. 进一步分析表明, 这种耦合作用主要发生在量子链方向. 荧光的偏振特性进一步证实了这一点.

关键词: InGaAs/GaAs; 量子点; 量子链; 光学性质

中图分类号: O472 **文献标识码:** A

COMPARATIVE STUDY OF OPTICAL PROPERTIES BETWEEN QUANTUM DOT CHAINS AND QUANTUM DOTS

WANG Bao-Rui¹, SUN Zheng¹, XU Zhong-Ying¹, SUN Bao-Quan¹,
JI Yang¹, Z. M. Wang², G. J. Salamo²

(1. State Key Lab for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China;

2. Department of Physics, University of Arkansas, Arkansas, USA)

Abstract: A comparative study of the steady-state and transient optical properties was made between InGaAs/GaAs quantum dot chains (QDCs) and quantum dots (QDs). It was found that the photoluminescence (PL) decay time of QDCs exhibited a strong photon energy dependence, while it was less sensitive in QDs. The PL decay time increased much faster with the excitation power in the QDCs than that in QDs. When the excitation power was large enough, the PL decay time tended to be saturated. In addition, it was also found that the PL rise time was much shorter in QDCs than in QDs. All these experimental results show that there is a strong carrier coupling along the chain direction in the QD chain structure. The polarization PL measurements further confirm the carrier transfer process along the chain direction.

Key words: InGaAs/GaAs; quantum dots; quantum dot chains; optical properties

引言

基于量子线、量子点的光电器件由于在激光器、探测器以及光子晶体上的巨大应用潜力^[1-3], 因此该方面的研究引起了人们极大的兴趣. 对于量子点器件来说, 量子点密度、大小以及均匀性对器件性能至关重要, 因此这方面的研究也受到人们的广泛关注. 一般来说, In(Ga)As/GaAs 量子点在二维浸润层上是随机分布的, 在多层结构中, 由于应力场的作用, 量子点可以在垂直方向有序排列. 近年来有报道

称, 在一定的生长条件下, 多层量子点结构中的量子点在横向方向也会出现有序排列, 从而形成链状量子点结构^[4-6], 这里我们称之为量子链. 通过控制生长条件, 可以改变量子链之间的间距、同一个链上的量子点间隔以及量子链的长度^[6,7], 来影响其电子结构和光学性质. 在量子链结构中, 由于同一链上的量子点之间间隔很小, 从而导致载流子之间的横向耦合, 表现出独特的光学特性. 本文详细研究了 InGaAs 量子链和量子点的不同光学特性, 通过比较各自的稳态、瞬态光谱特性和偏振特性, 揭示了两种不

收稿日期: 2007 - 12 - 21, 修回日期: 2008 - 04 - 18

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (10334040)

作者简介: 王宝瑞 (1981-), 男, 山西孟县人, 中国科学院半导体研究所理学博士, 主要从事半导体物理与光电器件的实验和理论研究.

Received date: 2007 - 12 - 21, revised date: 2008 - 04 - 18

同结构中不同的载流子输运特性和动力学过程.

1 实验

实验所用样品是两个不同结构的 InGaAs/GaAs 多层量子点样品,均为分子束外延 (MBE)生长,衬底是 GaAs(100)半绝缘衬底.样品的基本结构是一个 16 周期的 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{GaAs}$ 多层结构, InGaAs 和 GaAs 层的厚度分别为 10ML 和 120ML, (ML 是指单分子层厚度),最后生长一层 10ML 的 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 层,以便于用原子力显微镜 (AFM)来观察样品的表面形貌.两个样品的主要差别是多层结构的生长温度不同,一个是 540 ,另一个是 480 ,实验表明提高生长温度有利于量子链的形成^[4,8]. GaAs 势垒层之所以选择 120ML,主要是为了阻止载流子在各层量子点之间沿生长方向的输运,这样我们可以认为这个多层量子点样品各层之间是独立的,其所对应的光学性质主要反映了同一层内载流子的特性. AFM 分析表明,量子链样品中 InGaAs 量子点沿 [011] 方向排列,链的长度大约有 3 ~ 5 μm ,两个相邻的量子链之间的平均距离大约为 70nm,而同一条链上相邻量子点之间的平均距离 (中心到中心) 大约为 40nm,与量子点的平均直径 $40 \pm 5\text{nm}$ 相近^[6,9].由此可见,量子链样品中同一链上的量子点之间会有明显的耦合作用,而在普通量子点样品中,量子点之间的耦合作用要弱得多.

稳态光致发光光谱测量时,用固态半导体绿光激光器 (532nm)为光源来激发样品,样品温度在 10 ~ 300K 范围内可调,荧光信号经 SPB300 单色仪后,用液氮制冷的 InGaAs 光电倍增管探测.时间分辨光谱用频率上转换系统进行测量,激发光是掺钛兰宝石飞秒激光器发出的激光脉冲,激发光波长 750nm,脉宽 100fs,系统分辨率大致与激光脉冲宽度相当.

2 结果与讨论

图 1 比较了 10K 下不同激发功率下量子链样品 (a)和量子点样品 (b)的稳态光致发光光谱形状的变化,用 532nm 激光激发.可以看到,随着激发功率 P 的增加,量子链样品光谱明显展宽 (半宽从 0.1mW 时的 41meV 变为 20mW 时的 73meV),高能端发光相对增强,当激发功率大于 10mW 时,出现高能发光峰,说明量子链样品中有明显的高能布居和能带填充效应^[10],这种效应源于量子链中量子点尺寸的不均匀.低激发时,光致载流子主要布居在大量子点所对应的较低能级,随着激发强度增加,低能级开始

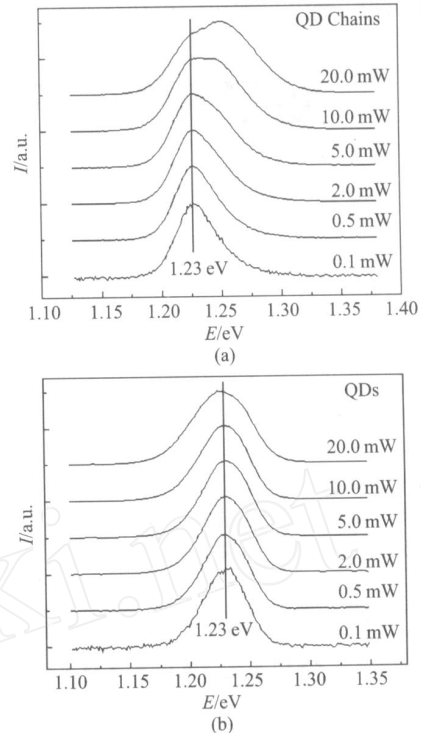


图 1 $T = 10\text{K}$ 时不同激发功率下 InGaAs/GaAs 量子链 (a)和量子点 (b)的稳态光致发光光谱

Fig 1 Steady-state photoluminescence spectra at 10 K under different excitation intensities for InGaAs/GaAs quantum dot chains (a) and quantum dots (b)

饱和,小量子点所对应的高能级开始填充,高能端发光增强,光谱展宽.而量子点样品,尺寸相对比较均匀,光谱峰值位置基本不随激发功率变化,光谱展宽相对较小 (半宽从 0.1mW 时的 41meV 变为 20.0mW 时的 57meV).量子链样品光谱中明显的高能布居和能带填充效应表明,量子点之间存在明显的输运和耦合.

图 2 比较了两个样品的荧光偏振特性,图 2 (a)和图 2 (b)分别给出了两个样品偏振荧光光谱,用 532nm 激光激发.实验中,我们在单色仪前放了线偏振片和一个 $\lambda/2$ 波片,通过旋转波片,使进入单色仪的荧光偏振方向不变,从而消除了光栅对荧光两个偏振分量的影响.荧光偏振度 用下式来定义:

$$= \frac{(I_{011} - I_{0\bar{1}\bar{1}})}{(I_{011} + I_{0\bar{1}\bar{1}})} \quad (1)$$

I_{011} 和 $I_{0\bar{1}\bar{1}}$ 分别是平行于 [011] 和 [0 $\bar{1}\bar{1}$] 方向的偏振光的荧光强度.根据式 (1) 我们可以算出量子链样品荧光偏振度为 25%,而普通量子点样品的荧光没有明显的偏振特性.

量子链样品之所以有明显的偏振特性,是因为同一链上的量子点之间有很强的耦合,而链与链之间间距又很大,结构上与量子线类似,因而有明显的

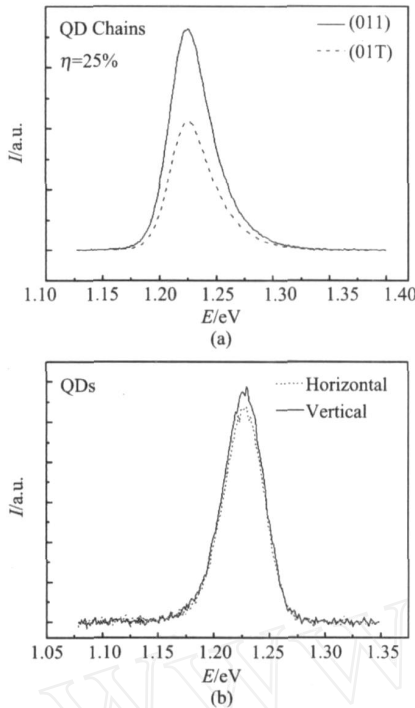


图 2 两个样品的偏振光谱 (a)量子链 (b)量子点
Fig 2 PL polarization spectroscopy of the samples
(a) QD Chains (b) QDs

光学各向异性. 对于量子点样品,量子点在二维平面上随机分布,量子点之间间距较大,耦合作用较弱,因而不会表现出明显的光学各向异性. 但由于量子点本身的形状一般呈椭圆形^[8],因此,两个不同偏振方向的荧光强度会有所不同,这就是我们实验见到的情况图 2(b).

上述研究表明,量子链和量子点的发光特性存在明显的差别,其主要原因在于量子链中载流子之间有明显的耦合作用,这种耦合来自沿量子链方向的载流子相互运输. 下面我们将进一步研究量子链中载流子之间的相互耦合对瞬态发光特性的影响.

图 3(a)和图 3(b)比较了量子链和量子点样品不同能量位置的荧光衰减特性,我们可以看到量子链样品的荧光寿命随能量变化很大,而量子点样品的寿命随能量变化相对较小. 对于量子链样品,荧光衰减寿命随发光能量的变化清楚地表明参与发光的载流子在量子点之间相互有运输. 一般来说,位于高能端的载流子在参与复合发光的同时,还会迅速弛豫到能量较低的能级,其结果是导致整个荧光衰减过程变快. 而在低能级位置,由于不断有载流子供给,荧光衰减就变慢. 前面已经指出,在我们的样品中,由于 GaAs 势垒层很厚 (120 ML),层与层之间载流子的纵向运输可以不考虑,而在量子链方向,由于

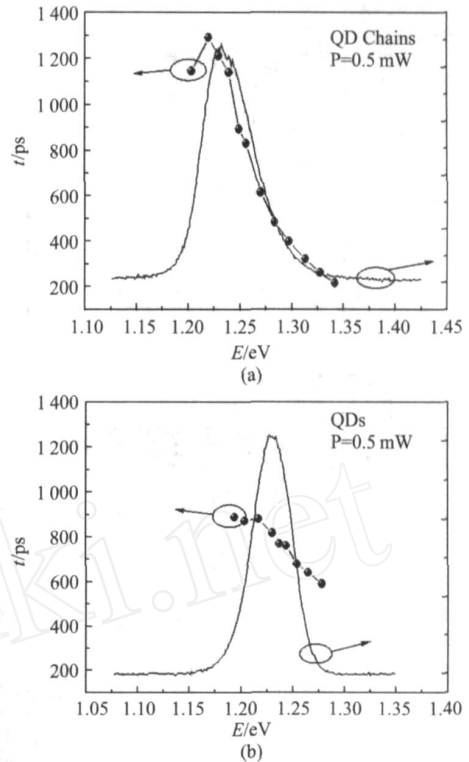


图 3 $T = 10\text{K}$ 时,不同探测能量位置对应的荧光衰减寿命 τ (a)量子链 (b)量子点
Fig 3 PL decay time τ versus different energy positions at 10K (a) QDCs (b) QDs

量子点之间间距很小,基本上与量子点尺寸相比拟,所以有理由相信,载流子在量子链方向存在明显的耦合作用,从而导致沿量子链方向的载流子弛豫和运输. 由于量子链结构中量子点尺寸起伏较大,能级涨落也大,因而发光寿命的能量变化关系越加明显. 而对于量子点样品,量子点之间间距较大,相互耦合较弱,加上尺寸起伏较小,因此,在能测量到频率上转换信号的范围,荧光寿命的能量变化关系就不明显^[11,12].

图 4(a)和图 4(b)分别是 $T = 10\text{K}$ 时,量子链和量子点中对应稳态光谱 1.23eV 能量位置的、在不同激发功率下的荧光上升曲线. 可以看到,两个样品有类似的特性: (1)荧光上升时间很短; (2)随着激发功率的增加,上升时间明显变短. 简单起见,我们取荧光强度从 10%上升到 90%这一范围内所需的时间为荧光上升时间,并分别在插图中画出了荧光上升时间随激发功率的变化. 一般来说,荧光上升时间是载流子弛豫过程的一种量度,很短的上升时间表明,在所研究的量子结构中载流子弛豫非常有效,进一步研究表明,在量子点基态能级和浸润层能级之间,存在大量的准连续态^[9],正是由于这些能

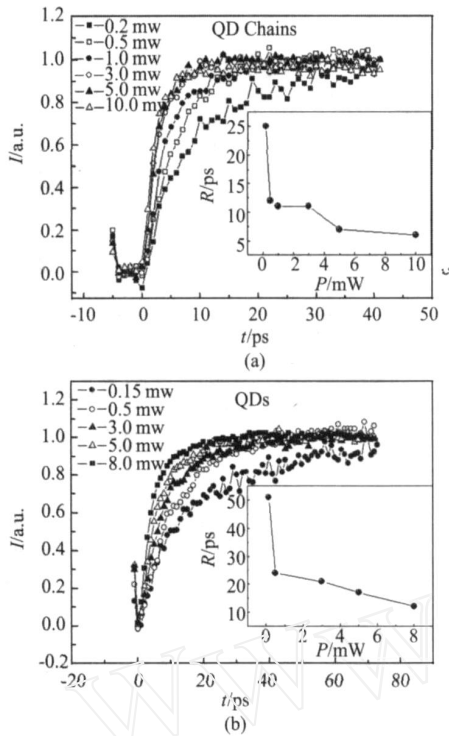


图4 $T=10\text{K}$ 时,不同激发功率下的荧光上升曲线,探测能量位置是 1.23eV (a)量子链 (b)量子点,插图画出了荧光上升时间 R 和激发功率 P 的关系

Fig 4 The PL rise time t under different excitation intensities I at the energy position of 1.23eV (a) QD Chains (b) QDs. The inset shows the PL rise time R as a function of the excitation intensities P

级的存在,使得载流子弛豫过程变得很容易.实验测得的荧光上升时间随激发功率的增加而快速减小,表明载流子之间的散射是造成载流子快速弛豫的主要机理^[13].仔细比较图(4)所示的实验结果,不难发现,在同样激发功率下,量子链样品的荧光上升时间要比量子点样品的小很多,这是由于量子链中量子点之间波函数的耦合提供了新的载流子弛豫途径,从而进一步加速了载流子的弛豫过程.

下面我们进一步研究两个样品荧光寿命的激发功率关系,实验结果如图(5)所示.可以看出两者有明显不同,量子链的荧光寿命随激发功率迅速增加,然后饱和,而量子点样品的荧光寿命随激发功率缓慢增加.我们认为对量子链样品,当激发功率较小时,光生载流子主要布居在大量子点所对应的较低能级,随激发强度增加,低能级饱和,小量子点所对应的高能级开始被填充,高能端发光增强,光谱展宽,这一点已经在稳态光谱实验中得到证实(图(1)).由于量子链上不同量子点之间存在很强的耦合,因而增强了光生载流子在各个量子点之间的转

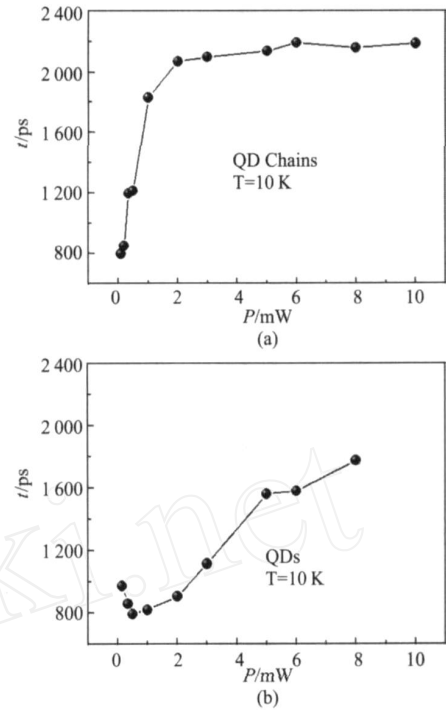


图5 稳态光荧光光谱中 1.23eV 处不同激发功率 P 下的荧光衰减寿命 t (a)量子链 (b)量子点

Fig 5 The PL decay time t at the energy position of 1.23eV under the different excitation intensities P (a) QD Chains (b) QDs

移.随着激发功率增大,光生载流子数目也在增加,通过载流子波函数的耦合,载流子会从高能量子点向低能量子点转移,探测能量位置处的载流子有效供给加大,使得荧光衰减减缓,荧光寿命增加.但随着激发强度的进一步增大,由于态密度的限制,这种由高能级向低能级的载流子转移过程趋于饱和,从而导致发光寿命基本不变.而对于量子点样品,由于量子点之间耦合相对较小,所以载流子转移——有效供给加大——荧光寿命增加这一过程不像量子链样品那样明显,实验上表现为荧光寿命随激发强度的增加而缓慢增加,在我们的实验范围内未出现饱和现象.

3 结论

本文用稳态光荧光和时间分辨光谱比较研究了 $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ 链状量子点和普通量子点结构的光学特性,探讨了载流子沿量子链方向输运对光学特性的影响.实验发现,与普通量子点相比,量子链的荧光衰减寿命有很强的探测能量依赖关系和激发强度关系,其荧光上升时间也比量子点的要短得多.这些结果表明,在量子链结构中,参与发光的载流子之间存在很强的耦合和输运,这种现象是与量子点沿量

(下转 189页)

定阈值增加噪声的同时,通过烟羽掩膜限制背景像元的范围来减少噪声,保证低温火点探测的精度.改进算法提高了对低温小火点和大扫描角的火点探测的敏感性,增强了区域尺度火点的探测能力和探测精度.验证分析时仅用了四景 MODIS火灾图像用于比较分析,因此还需要开展大量的实验和验证工作,对改进算法进一步测试和检验.

致谢 本研究得到马来西亚国家遥感中心(MA-CRES)的数据支持,在此表示感谢.

REFERENCES

- [1] Kaufman Y J, Justice C O, Giglio L, *et al* Potential global fire monitoring from EOS/MODIS [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1998, **103**: 215—238.
- [2] Justice C O, Giglio L, Kaufman Y, *et al* The MODIS fire products [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2002, **83**: 244—262.
- [3] Giglio L, Descloitres J, Justice C O, *et al* An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2003, **87**: 273—282.
- [4] Wang W T, Qu J J, Hao X J, *et al* An improved algorithm for small and cool fire detection using MODIS data: A preliminary study in the southeastern United States [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2007, **108**: 163—170.
- [5] PENG Guang-Xiong, CHEN Yun-Hao, LI Jing, *et al* Combination of remote sensing and meteorological data for fire risk monitoring—a case study in peninsular Malaysia [J]. *Geomatic Science* (彭光雄, 陈云浩, 李京, 等. 结合遥感和气象数据的森林火险监测研究—以马来西亚半岛为例. *地球信息科学*), 2007, **9**(5): 99—104.
- [6] ZHANG Xiao-Hua, ZHANG Ren-Cheng, GONG Xue, *et al* Detection and estimation of early fires' process character by using infrared spectrum [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (张晓华, 张认成, 龚雪, 等. 火灾早期过程特征的红外光谱探测和诊断. *红外与毫米波学报*), 2006, **25**(5): 382—385.
- [7] PENG Guang-Xiong, HE Yu-Hua, LI Jing, *et al* Study on CBERS-2'S CCD image cross calibration and atmospheric correction [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (彭光雄, 何宇华, 李京, 等. 中巴地球资源 02星 CCD图像交叉定标与大气校正研究. *红外与毫米波学报*). 2007, **26**(1): 22—25.
- [8] XIE Qi-Yuan, ZHANG He-Ping, ZHANG Yong-Ming, *et al* Experimental study on Stokes scattering matrixes of smoke particles [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (谢启源, 张和平, 张永明, 等. 火灾烟颗粒 Stokes散射矩阵的实验研究. *红外与毫米波学报*). 2007, **26**(4): 279—283.
- [9] Xie Y, Qu J, Hao X. Smoke plume detecting using MODIS measurements in eastern United States [C]. East FIRE Conference Proceedings, Fairfax, VA, 2005, May 11—13.

(上接 164页)

子链方向的紧密排列分不开的.偏振光谱研究进一步演示了量子点沿量子链方向紧密排列所造成的类似于量子线的各向异性发光特性.

REFERENCES

- [1] Binberg D, Grundman M, Ledentsov N N. *Quantum Dot Heterostructures*[M]. Chichester: Wiley, 1999.
- [2] HAO Guo-Qiang, ZHANG Yong-Gang, GU Yi, *et al* Performance analysis of extended wavelength InGaAs photovoltaic detectors grown with gas source MBE [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (郝国强, 张永刚, 顾溢, 等. 气态源分子束外延生长扩展波长 InGaAs探测器性能分析. *红外与毫米波学报*) 2006, **25**(4): 241—245.
- [3] ZHANG Yong-Gang, GU Yi, ZHU Cheng, *et al* Fabrication of short wavelength infrared InGaAs/InP photovoltaic detector series [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (张永刚, 顾溢, 朱诚. 短波红外 InGaAs/InP光伏探测器系列的研制. *红外与毫米波学报*), 2006, **25**(1): 6—9.
- [4] MA Wen-Quan, Richard Nötzel, Achim Trampert, *et al* Self-organized quantum wires formed by elongated dislocation-free islands in (In, Ga)As/GaAs(100) [J]. *Appl Phys Lett*, 2001, **78**: 1297—1299.
- [5] Mazur Yu I, MA Wen-Quan, Wang X, *et al* InGaAs/GaAs three-dimensionally-ordered array of quantum dots [J]. *Appl Phys Lett*, 2003, **83**: 987—989.
- [6] WANG Zhi-Ming, Holmes K, Salamo G J, *et al* Fabrication of (In, Ga)As quantum-dot chains on GaAs(100) [J]. *Appl Phys Lett*, 2004, **84**: 1931—1933.
- [7] WANG Zhi-Ming, Mazur Yu I, Salamo G J, *et al* Control on self-organization of InGaAs/GaAs(100) quantum-dot chains [J]. *J. Vac. Sci. & Technol.*, 2005, **B23**: 1732—1735.
- [8] MA Wen-Quan, Richard Nötzel, Klaus H Pöggendorf, *et al* Shape transition of coherent three-dimensional (In, Ga)As islands on GaAs(100) [J]. *Appl Phys Lett*, 2001, **79**: 4219—4221.
- [9] Mazur Yu I, Liang B L, WANG Zhi-Ming, *et al* Time-resolved photoluminescence spectroscopy of subwetting layer states in InGaAs/GaAs quantum dot structures [J]. *J. Appl Phys*, 2006, **100**: 054316(1)—054316(5).
- [10] XU Zhong-Ying, LU Zhen-Dong, YUAN Zhi-Liang, *et al* Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **54**: 11528—11531.
- [11] Gurio li M, Sanguinetti S, Grilli E, *et al* Disorder-induced localized states in InAs/GaAs multilayer quantum dots [J]. *Appl Phys Lett*, 2003, **83**: 2262—2264.
- [12] A tsumi Tackeuchi, Yoshiaki Nakata, Shunichi Muto, *et al* Time-resolved study of carrier transfer among InAs/GaAs multi-coupled quantum dots [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**: L1439—L1441.
- [13] LI Q ing, XU Zhong-Ying, GE Wei-Kun. Carrier capture into InAs/GaAs quantum dots detected by a simple degenerate pump-probe technique [J]. *Solid State Communication*, 2000, **115**: 105—108.