

双模自组织量子点光致发光的温度依赖性

邓浩亮¹, 姚江宏^{2*}

(1. 天津工程师范学院 数理系, 天津 300222

2. 南开大学 弱光非线性光子学教育部重点实验室, 天津 300457)

摘要: 采用稳态速率方程模型, 对双模自组织量子点光致发光的温度依赖性进行了研究, 模拟获得了不同温度下双模自组织量子点的光致发光光谱, 并进一步研究了两组量子点分布的光致发光强度比的温度依赖性。研究表明: 在低温下 ($< 75\text{ K}$), 两组量子点分布的发光强度比基本保持不变; 随着温度的升高 ($75\text{ K} < T < 150\text{ K}$), 两组量子点分布的发光强度比将持续增大, 且当温度为 150 K 时达到峰值; 当温度高于转折温度 (150 K) 后, 两组量子点分布的发光强度比显著减小。

关键词: 双模自组织量子点; 光致发光; 热激发

中图分类号: O472.3 O482.31

PACC: 3250F; 7855

文献标识码: A

1 引言

自组织量子点材料一直是低维半导体领域的研究热点之一。为了弄清量子点中能量弛豫、载流子迁移等过程, 许多研究小组对量子点光致发光的温度依赖性进行了研究^[1~8], 报道了量子点光致发光光谱的积分强度、峰值能量及半峰全宽随温度的变化规律。随着温度的升高, 光谱的峰值能量快速红移和半峰全宽反常减小可归因于不同基态能量的量子点之间载流子的热迁移。当温度达到一定值时, 量子点光致发光将发生热猝灭, 这是由于量子点中的载流子被热激发到势垒层中并发生非辐射复合造成的。目前, 尽管人们已经作了大量的理论和实验研究, 但要充分理解自组织量子点光致发光的温度依赖性仍有待于进一步的研究。

本文采用稳态速率方程模型, 对双模自组织量子点光致发光的温度依赖性进行了研究, 模拟获得了不同温度下双模自组织量子点的光致发光光谱, 并在 $75\text{ K} < T < 150\text{ K}$ 的温度范围内, 进一步研究了两组量子点分布的荧光强度比的温度依赖性。

2 稳态速率方程模型

本文采用如图 1 所示的稳态速率方程模型^[4], 对双模自组织量子点进行了模拟, 该稳态速率方程模型中, E_B 、 E_{WL} 和 E_{QD} 分别为势垒层、浸润层和量子点中载流子的能量; g 为载流子从势垒层到浸润层的俘获率; m 为浸润层中的载流子数目; $n(E)$ 为基态能量为 E 的量子点中的载流子数目; R_c 为载流子从浸润层到量子点的俘获率; R' 为浸润层中载流子的非辐射复合率; R_c' 为载流

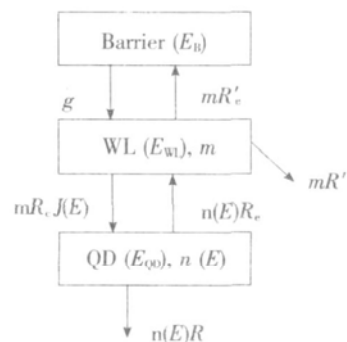


图 1 稳态速率方程模型示意图

Fig 1 Schematic representation of the steady-state rate equation model

收稿日期: 2008-07-28 修订日期: 2008-09-24

基金项目: 天津工程师范学院科研基金 (KJ2006-028); 天津应用基础研究计划 (08JCYBJC1480Q 06YFJZJC01100); 国家自然科学基金 (60476042); “863”计划 (2006AA03Z413); “973”计划 (2006CB921703) 资助项目

作者简介: 邓浩亮 (1980-), 男, 山西平遥人, 主要从事低维半导体材料与器件的研究。

E-mail dengh@mail.nankai.edu.cn Tel (022) 85923664

*: 通讯联系人; E-mail yaojh@mail.nankai.edu.cn Tel (022) 23501490 23501594

子从浸润层到势垒层的热激发率; R 为量子点中载流子的辐射复合率; R_e 为载流子从量子点到浸润层的热激发率; $J(E)$ 为自组织量子点按基态能量的分布函数。模型中未考虑载流子从量子点到势垒层之间的俘获或热激发过程, 且只考虑了量子点的基态, 该假设对于低激发强度的实验条件是合理的。

由该模型可建立相应的稳态速率方程如下:

$$\frac{dn}{dt} = g - mR' - mR'_e - \sum_{N_D} mR_c J(E) + \sum_{N_D} n(E)R_e = 0 \quad (1)$$

$$\frac{dn(E)}{dt} = mR_c J(E) - n(E)R - n(E)R_e = 0 \quad (2)$$

从上述方程可得出基态能量为 E 的量子点光致发光的强度表达式为:

$$I = n(E)R = g \frac{RR_c J(E)}{R + R_e} \frac{1}{R' + R'_e + \sum_{N_D} \frac{RR_c J(E)}{R + R_e}} \quad (3)$$

由细致平衡原理可知:

$$R_e = \frac{N_{WL}}{N_D} R_c \exp(-E_A/kT) \quad (4)$$

其中, N_{WL} 为浸润层有效态密度; N_D 为量子点面密度; E_A 为量子点的激活能。

在模拟过程中, 我们以自组织 InAs/GaAs 量子点为例, 模拟参数参考文献 [3, 4], 具体数值见表 1。

表 1 理论模拟参数

Table 1 The parameters used in the theoretical simulation

Parameters	Value
N_D	$1.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$
N_{WL}	$4.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$
R	$1.0 \times 10^9 \text{ Hz}$
R'	$1.0 \times 10^{11} \text{ Hz}$
R_e	$0.03 \times 10^{12} \text{ Hz}$
R'_e	$0.6 \times 10^{14} \text{ Hz}$

3 结果与讨论

本文假设自组织量子点的尺寸呈双模分布, 即: 可将双模自组织量子点按基态能量分解为两个高斯分布, 如图 2 所示。我们将基态能量高的

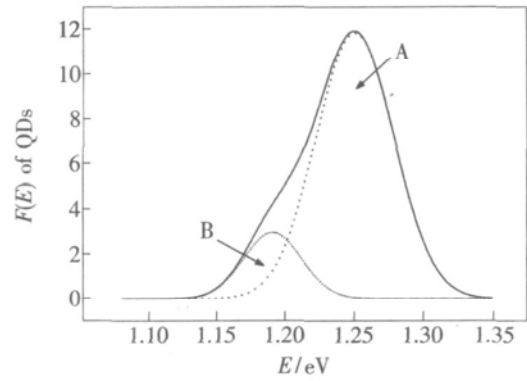


图 2 双模自组织量子点按基态能量的分布

Fig 2 The distribution of self-assembled bimodal QDs according to ground state energy

一组量子点分布 (峰值能量为 1.25 eV) 记作 A, 基态能量低的一组量子点分布 (峰值能量为 1.19 eV) 记作 B。

运用稳态速率方程模型, 可模拟获得不同温度下双模自组织量子点的光致发光光谱, 如图 3 所示。在模拟过程中, 考虑了量子点材料的带隙随温度的变化^[9], 且假设单量子点的光致发光谱随温度升高而红移的速率与体材料一致^[10]。

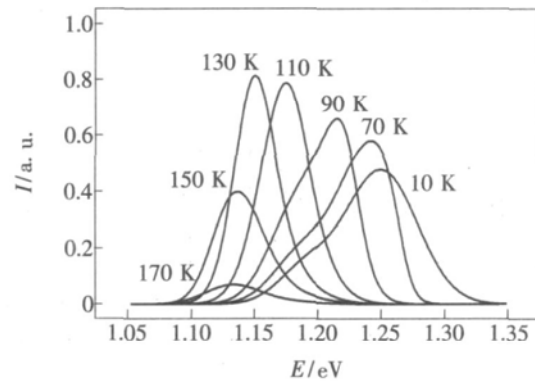


图 3 不同温度下, 双模自组织量子点的光致发光谱

Fig 3 Simulated PL spectra for self-assembled QDs at different temperatures

如图所示, 温度较低时 ($< 90 \text{ K}$), 可看到 A 组量子点分布的光强明显大于 B 组量子点分布的光强; 随着温度的升高 ($90 \text{ K} < T < 130 \text{ K}$), A 组量子点分布的光强逐渐减弱, 而 B 组量子点分布的光强则不断增强; 当温度继续升高时, B 组量子点分布的光强也发生明显的减弱, 最终两组量子点分布的光致发光都将发生热猝灭。

此外, 为了进一步研究双模自组织量子点的光致荧光的温度依赖性, 我们考察了两组量子点分布的光致荧光强度比 $R(I_B/I_A)$ 随温度的变化关系, 如图 4 所示。

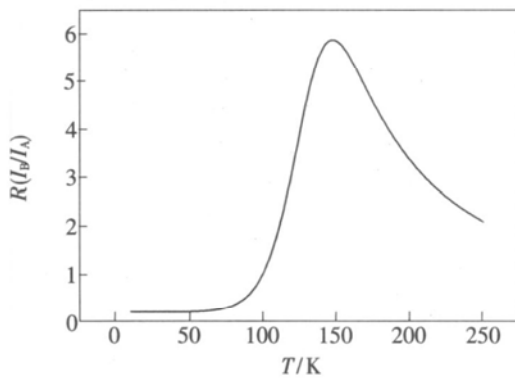


图 4 两组量子点的光致发光强度比的温度依赖性

Fig 4 The temperature dependence of PL intensity ratio for QDs A and B

在低温下 ($< 75 \text{ K}$), A、B 两组量子点分布的光致发光强度比基本保持不变, 这是由于低温下量子点中的载流子被热激发的可能性小, 载流子在量子点中呈随机分布, 光强与量子点数目成正比。

随着温度的升高 ($75 \text{ K} < T < 150 \text{ K}$), 基态能量高的量子点中的载流子将被热激发到浸润层中, 并被基态能量低的量子点再俘获, 载流子在具有不同基态能量的量子点之间发生热迁移。因此, A 组量子点的光致发光强度开始衰减, 同时 B

组量子点的光致发光强度逐渐增强, 使得两组量子点的光致荧光强度比持续增大, 当温度为 150 K 时达到峰值。

当温度继续升高 ($> 150 \text{ K}$), 两组量子点的光致发光强度比开始显著减小。这是由于当温度高于 150 K 时, 基态能量低的 B 组量子点中的载流子也显著发生热激发, 最终 A、B 两组量子点的光致发光都将发生猝灭。

以上结果与实验报道符合得很好, 这表明本文所采用的稳态速率方程模型能够很好地模拟双模自组织量子点中载流子的动力学过程。

4 结 论

采用稳态速率方程模型, 对双模自组织量子点光致发光的温度依赖性进行研究, 模拟获得了不同温度下双模自组织量子点的光致荧光光谱, 并进一步研究了量子点分布的发光强度比的温度依赖性。研究表明: 低温下 ($< 75 \text{ K}$), 两组量子点的发光强度比基本保持不变; 随着温度的升高 ($75 \text{ K} < T < 150 \text{ K}$) 发光强度比持续增大且达到峰值; 当温度高于转折温度 (150 K) 后, 发光强度比显著减小。

参 考 文 献:

- [1] Xu Z Y, Lu Z D, Yang X P, *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**(16): 11528-11531.
- [2] Brusaferrri L, Sanguinetti S, Grilli E, *et al* Thermally activated carrier transfer and luminescence line shape in self-organized InAs quantum dots [J]. *Appl Phys Lett*, 1996, **69**(22): 3354-3356.
- [3] Lee H, Yang W D, Serce P C. Temperature and excitation dependence of photoluminescence line shape in InAs/GaAs quantum-dot structures [J]. *Phys Rev B*, 1997, **55**(15): 9757-9762.
- [4] Sanguinetti S, Henini M, Alessi M G, *et al* Carrier thermal escape and retrapping in self-assembled quantum dots [J]. *Phys Rev B*, 1999, **60**(11): 8276-8283.
- [5] Park Y M, Park Y J, Kim K M, *et al* Carrier dynamics in an InGaAs dots in a well structures formed by atomic-layer epitaxy [J]. *Phys Rev B*, 2004, **70**(3): 035322-1-7.
- [6] Deng Haoliang, Yao Jianghong. Temperature dependence of photoluminescence in self-assembled quantum dots [J]. *Chin. J. Lum in.* (发光学报), 2007, **28**(1): 109-113 (in Chinese).
- [7] Li M ei, Li H ui, Wang Y u x i a, *et al* Research on material characteristics of GaAs/GaAs superluminescence diodes [J]. *Chin. J. Lum in.* (发光学报), 2007, **28**(6): 885-889 (in Chinese).
- [8] Varshni Y P. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors [J]. *Phys*, 1967, **34**(1): 149-154.
- [9] Fafard S, Raymond S, Wang G, *et al* Temperature effects on the radiative recombination in self-assembled quantum dots [J]. *Surf. Sci*, 1996, **361/362**: 778-782.
- [10] Zhang Y C, Huang C J, Liu F Q, *et al* Thermal redistribution of photocarriers between bimodal quantum dots [J]. *J. Appl Phys*, 2001, **90**(4): 1973-1976.

Temperature Dependence of Photoluminescence in Self-assembled Bimodal Quantum Dots

DENG Hao-liang¹, YAO Jiang-hong²

(1 *Department of Mathematics and Physics, Tianjin University of Technology and Education, Tianjin 300222, China;*

2 *The Key Laboratory of Weak Light Nonlinear Photonics, Ministry of Education, Nankai University, Tianjin 300457, China*)

Abstract The study on the temperature dependence of photoluminescence (PL) is essentially important for clarifying the processes of energy relaxation and energy transfer in the self-assembled quantum dots (QDs). The unusual dependence on temperature of both the peak energy position and the width of the PL bands has been reported. The fast redshift of PL energy and the anomalous decrease of linewidth with increasing temperature have been attributed to thermally enhanced carrier relaxation between quantum dots due to carrier thermal emission and carrier transport through the wetting layer. The PL intensity quenches with temperature due to carrier thermal escape from the dot ground states to the states of the matrix material and/or nonradiative recombination centers.

In this paper, the temperature dependence of the PL of self-assembled bimodal QDs was simulated by using a steady-state rate equation model. The temperature dependence of PL intensity ratio of two QDs populations was emphatically investigated. The results showed that the intensity ratio remains constant at low temperature (< 75 K) and increases continuously at intermediate temperature (75 K $< T < 150$ K); when the temperature is raised above 150 K, the intensity ratio has an abnormal decrease.

Key words self-assembled bimodal quantum dots; photoluminescence; thermal excitation