

# 不同组分 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) 覆盖层 对自组织 $\text{InAs}$ 量子点的影响\*

王晓东<sup>1)†</sup> 刘会<sup>2)</sup> 牛智川<sup>1)</sup> 封松林<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>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)

<sup>2)</sup>中国科学院半导体研究所半导体材料科学实验室 北京 100083)

(2000 年 1 月 7 日收到 2000 年 5 月 25 日收到修改稿)

研究了不同 In 组分的  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) 覆盖层对自组织  $\text{InAs}$  量子点的结构及发光特性的影响. 透射电子显微镜和原子力显微镜表明,  $\text{InAs}$  量子点在  $\text{InGaAs}$  做盖层时所受应力较  $\text{GaAs}$  盖层时有所减小, 并且  $x = 0.3$  时,  $\text{InGaAs}$  在  $\text{InAs}$  量子点上继续成岛. 随  $x$  值的增大, 量子点的光荧光峰红移, 但随温度的变化发光峰峰位变化不明显. 理论分析表明  $\text{InAs}$  量子点所受应力及其均匀性的变化分别是导致上述现象的主要原因.

关键词: 量子点, 盖层, 应力, 红移

PACC: 6855, 6116, 7855

## 1 引 言

由于量子点具有独特的物理性质和应用价值<sup>[1,2]</sup>, 对它的研究已经持续了十几年. 量子点在三个维度方向都受到限制, 理论预计<sup>[1]</sup>以量子点为有源区的激光器具有很高的特征温度和非常的阈值电流等. 目前实现量子点结构的制备方法中, 利用自组织直接生长量子点是最热门的技术途径. 在  $\text{InAs}/\text{GaAs}$ ,  $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$  自组织量子点结构系列中, 其发光峰主要在红外<sup>[3,4]</sup>. 但我们知道, 重要的波长应用范围为 1.3 到 1.55  $\mu\text{m}$  及可见光等, 因此将量子点的发光波长调整到这些波段成为许多研究者所追求的目标. 目前对发光峰为 1.3  $\mu\text{m}$  等长波长量子点的研究主要用  $\text{InGaAs}$  量子点, 但将  $\text{InAs}$  量子点用  $\text{InGaAs}$  盖住或将  $\text{InAs}$  量子点生长在  $\text{InGaAs}$  量子阱中也可以实现长波长发光<sup>[5,6]</sup>. 用  $\text{InGaAs}$  做盖层的目的是使  $\text{InAs}$  量子点所承受的应变有所减小, 同时抑制了其中 In 的偏析. 另外 In 组分高的  $\text{InGaAs}$  也容易在  $\text{InAs}$  量子点上继续形成尺寸较大的岛状结构. 这些因素都可能使得量子点的发光峰红移而到达长波范围.

本文利用透射电子显微镜 (TEM) 原子力显微

镜 (AFM) 光致发光 (PL) 谱等研究方法系统地研究了  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) 盖层对  $\text{InAs}$  自组织量子点的结构及发光性质的影响, 并对发光谱的实验结果做了理论解释.

## 2 实 验

生长实验系统为 VG 公司的 V80H MKII MBE 系统. 衬底为半绝缘  $\text{GaAs}$  (100) 衬底, 在 600°C 下先生长 0.5  $\mu\text{m}$  的  $\text{GaAs}$  缓冲层, 再将生长温度降至 450°C, 淀积 2.0 ML 的  $\text{InAs}$ , 接着覆盖 3 nm 的  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  层, 最后再覆盖 50 nm 的  $\text{GaAs}$ . 对应于  $x$  值的不同, 分别生长了  $x = 0.0, 0.1, 0.2, 0.3$  四块样品. 为了便于 AFM 观察, 还生长了不加  $\text{GaAs}$  盖层而只有 3 nm  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  盖层的结构. 生长过程中  $\text{GaAs}$  的生长速率为 1  $\mu\text{m}/\text{h}$ ,  $\text{InAs}$  的生长速率为 0.1  $\mu\text{m}/\text{h}$ ,  $V/III$  比约为 15. 四个样品是一个紧接一个连续生长的.

TEM 测量是在 JEM 200 CX 电子显微镜上进行的. 样品先进行机械减薄到 50  $\mu\text{m}$ , 然后用氩离子轰击直到电子束可以穿透为止. 为了得到 TEM 截面像, 样品面对面粘在一起后再进行机械减薄和离子减薄. PL 谱测量采用氦氖离子激光器作为激发光

\* 国家攀登计划 (批准号: 19823001) 和国家自然科学基金 (批准号: 69776016) 资助的课题.

† E-mail: wangxd@red.semi.ac.cn

源, 激发光波长为 632.8 nm, 激光功率约为 1 mW. 样品放在液氮闭循环制冷装置中, 温度在 10 到 300 K 之间可调. 输出信号用液氮冷却的锗探测器测量.

### 3 结果与讨论

#### 3.1 TEM 与 AFM

图 1(a) 为  $x=0.1$  样品的截面 TEM 像, 示意图如图 1(b) 所示. 由此可估算出量子点的平均大小约为 20 nm. 从图 1 可以看出, 对应于  $\text{InAs}$  量子点的起伏并不是很明显, 而且量子点附近的应变也没有过多地延伸到  $\text{GaAs}$  缓冲层及盖层中. 这与普通的用  $\text{GaAs}$  做盖层的  $\text{InAs}$  量子点的截面像有区别. 普通的  $\text{GaAs}$  盖层下的  $\text{InAs}$  量子点在 TEM 下会观察到有明显的起伏, 而且应变场分布往往会沿生长方向延伸到  $\text{GaAs}$  的缓冲层以及盖层中<sup>[7]</sup>. 可见  $\text{In-GaAs}$  盖层的存在影响了  $\text{InAs}$  岛周围应变场的分布,  $\text{InAs}$  岛在生长方向承受的应力减小. 可以想象, 随  $\text{In}$  组分的增加, 这种影响会更明显.

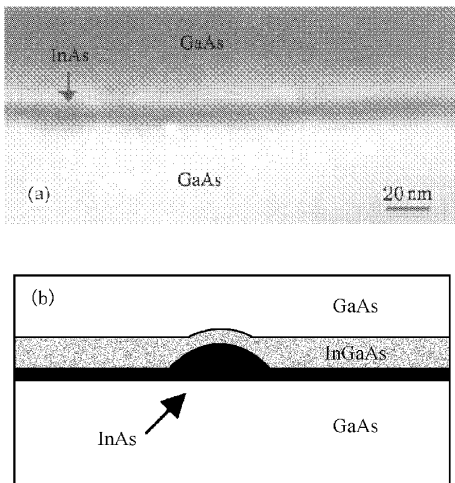


图 1 含有 3 nm  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  覆盖层的自组织  $\text{InAs}$  量子点结构的 TEM 像 (a) 和 TEM 像的示意图 (b)

但随  $x$  值的增大, 发现淀积在  $\text{InAs}$  上的  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  容易继续成岛. 图 2 为  $x=0.2$  和  $0.3$  样品的  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$  AFM 图. 从图 2 可以看出,  $x=0.2$  样品的表面几乎是平的, 平均起伏小于 1 nm, 而  $x=0.3$  样品的表面却是明显的岛, 平均大小约为 60 nm, 高度超过 10 nm. 这表明  $x=0.3$  时,  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  在原来的  $\text{InAs}$  量子点上继续成岛, 岛的尺寸变大. 淀积在  $\text{InAs}$  上的  $\text{InGaAs}$  必然对应变场

的分布产生影响. 本文的 PL 谱测量证明了这一点.

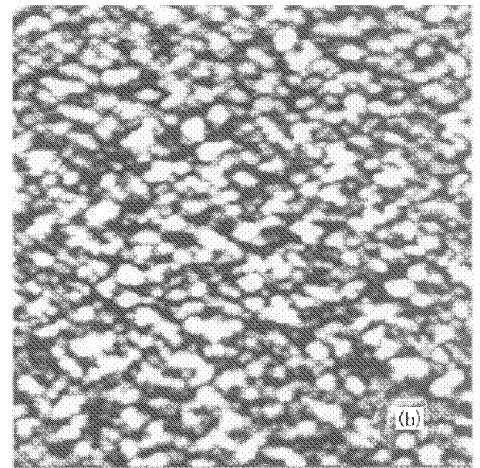
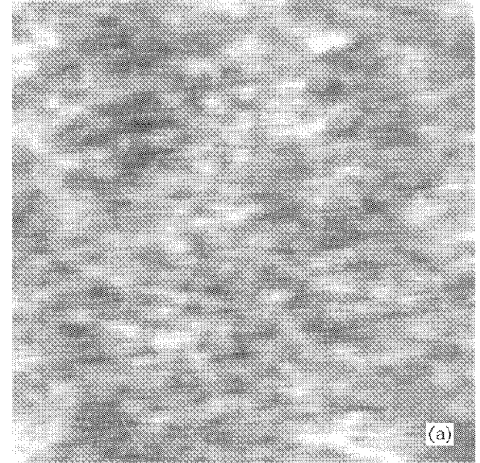


图 2 覆盖层为 3 nm  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  (a) 和 3 nm  $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  (b) 的自组织  $\text{InAs}$  量子点的 AFM 图

#### 3.2 PL 谱测量

图 3 为 10 K 时所有 4 块样品的 PL 谱. 在图 3 没有观察到激发态发光. 很明显, 随  $x$  值的增大, 量子点的发光峰明显红移, 对  $x=0.3$  的样品, 其发光峰已经红移到  $1.1 \mu\text{m}$  附近. 从图 3 得出的另一个重要信息是各光谱的积分荧光强度和半高宽随  $x$  值的变化. 结果如图 3 内插图所示. 可以看出, 随  $x$  值的增大, 光谱的积分强度总的趋势是增加, 而半高宽却减小. 如对  $x=0.0$  样品, 10 K 下其发光峰半高宽为 62 meV, 但  $x=0.2$  样品的发光峰半高宽却已经减小到了 36 meV. 另外, 对于  $x=0.3$  样品, 其发光峰半高宽较  $x=0.2$  样品略有增大 (约为 40 meV).

随  $\text{In}$  组分的增加, 量子点发光峰红移的主要原因因为  $\text{InGaAs}$  盖层减小了  $\text{InAs}$  岛所承受的应力, 从

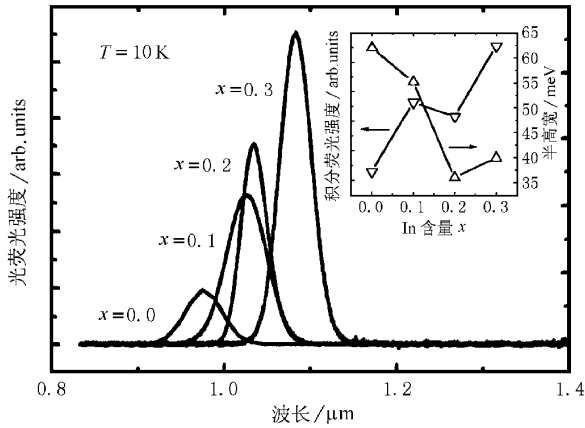


图3 含有3 nm  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) 覆盖层自组织 InAs 量子点结构的 PL 谱 内插图示出各光谱积分荧光强度及半高宽随 In 组分的变化

而影响了 InAs 的能带位置<sup>[8]</sup>, 而半高宽减小主要是由于 InGaAs 盖层阻止了 InAs 岛中 In 的偏析, 保持了 InAs 量子点的形状<sup>[5]</sup>, 使得量子点尺寸分布更加均匀. 因为 In 向 GaAs 盖层及缓冲层的扩散是破坏量子点均匀性的一个重要因素, 同时 In 的偏析也影响了量子点的能带位置, 造成量子点发光峰的红移. 此外, 从  $x=0.2$  到  $x=0.3$  发光峰半高宽有所增加的原因我们认为主要是量子点的不均匀性引起的, 因为从图 2(b) AFM 的结果可以看出, 继续淀积的 InGaAs 主要分布在 InAs 岛的上面, 这会造成 InAs 岛所受应力不均匀, 导致量子点的不均匀性.

利用一个简单的模型来计算应变所产生的影响, 先计算  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  盖层 ( $x \geq 0.1$ ) 引起的量子点的能量移动, 然后减掉 GaAs 盖层 (即  $x=0.0$ ) 引起的量子点的能量移动, 便可得出  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \geq 0.1$ ) 盖层引起的量子点发光峰相对 GaAs ( $x=0.0$ ) 盖层时的移动. 计算以  $x=0.2$  为例, 假设量子点是球形, 根据 Nishi 等人的结果<sup>[9]</sup>, 球内应变分量和压强分别为

$$e_{rr} = -\frac{P}{3\lambda + 2\mu}, \quad e_{r\theta} = e_{\theta\theta} = e_{\phi\phi} = 0, \quad (1)$$

$$P = \frac{4(3\lambda + 2\mu)(\alpha - 1)}{4\alpha + 8}, \quad (2)$$

式中  $\lambda$  和  $\mu$  为 Lamé 常数, 对本文的计算没有影响.  $\alpha$  在此为 InAs 与  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  的晶格常数之比 (1.0565). 因此对应的导带和价带的改变  $\delta E_c$  和  $\delta E_v$  分别为

$$\delta E_{c_n} = a_{c_n}(3r_{rr}) = -0.055a_{c_n} \text{ (eV)}, \quad (3)$$

式中  $a_{c_n}$  分别为 InAs 的形变势. 取  $a_c = -5.08 \text{ eV}$ ,

$a_v = 1.00 \text{ eV}$ <sup>[10]</sup>, 则得出  $a = (a_c - a_v) = -6.08 \text{ eV}$ , 于是能量的移动为

$$\delta E = \delta E_c - \delta E_v = 0.337 \text{ eV}. \quad (4)$$

注意上式的  $\delta E$  为 InAs 岛周围由 InGaAs 产生应变场后引起的能量移动. 同样的方法计算 GaAs 引起的能量移动, 得出

$$\delta E' = 0.425 \text{ eV}, \quad (5)$$

于是由 (4) 和 (5) 式得出能量的红移为 88 meV; 而由 PL 谱的测量结果 (图 3) 可知,  $x=0.2$  样品的 PL 峰相对  $x=0.0$  样品移动了约 71 meV, 这与上面的计算基本相符. 对  $x=0.1$  和 0.3 样品亦作类似估算, 结果如图 4 所示. 由图 4 可以看出, 理论值与实验值存在一些误差, 这是由于存在其他因素的影响, 如 InGaAs 抑制了 In 的偏析, 造成量子点发光峰红移. 另外, 在我们的样品中 InGaAs 的厚度只有 3 nm, 有些量子点未被完全盖住, 这也会造成一定误差. 但可以肯定在该结构中, 应力的改变是引起能量移动的一个主要原因.

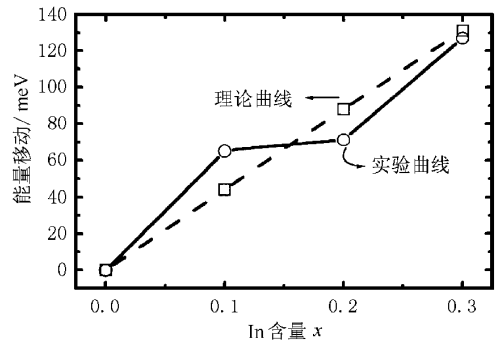


图4 应力引起的各样品的 PL 峰值的变化与实验数据的对比

### 3.3 变温 PL 谱测量

对样品进行了变温 PL 谱测量. 图 5 为不同温度下各样品的 PL 峰值变化. 从图 5 看出, 随温度的升高,  $x=0.1, 0.2, 0.3$  样品发光峰红移的幅度比  $x=0.0$  样品有所减小, 特别是对于  $x=0.2, 0.3$  这种变化较为明显. 图 5 另一个特征是  $x=0.2$  和 0.3 样品发光峰红移的幅度接近, 说明二者受温度的影响基本一样.

对于 InGaAs 抑制红移的原因, 目前还不是很清楚, 有些文献认为 InGaAs 引起的晶格常数的变化应是解释这种现象的一个原因<sup>[11]</sup>. 我们知道对于  $x=0.0$  样品超常红移的解释主要基于载流子的热

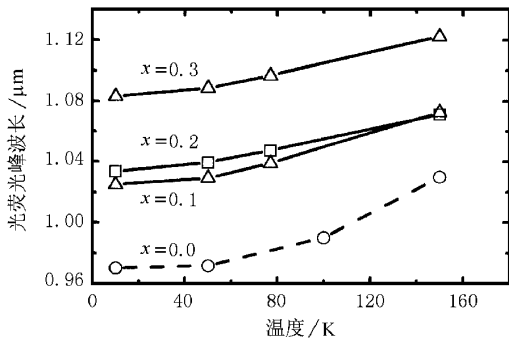


图5 4块样品的PL峰值随温度的变化

激活与热迁移模型<sup>[12]</sup>,也就是不同尺寸的量子点之间可发生载流子的相互扩散和转移.而对于本文的样品,在  $x \geq 0.1$  的样品中,由于  $\text{InGaAs}$  抑制了  $\text{In}$  的偏析而使得  $\text{InAs}$  量子点的尺寸趋于均匀,这使得不同量子点的能级差别有所减小,不难理解这必然使得发光能量随温度的超常变化减小.可见量子点均匀性的变化也是上述实验现象的可能原因.更详细的解释有待进一步探讨.

## 4 结 论

利用 TEM, AFM, PL 谱等方法,对  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) 覆盖层下的  $\text{InAs}$  量子点结构进行了研究.发现由于  $\text{InGaAs}$  盖层对  $\text{InAs}$  量子点所承受应力的影响,引起了量子点发光峰随  $\text{In}$  组分的增加而红移.并认为  $\text{InGaAs}$  抑制了  $\text{InAs}$  岛中  $\text{In}$  的偏析,保持了  $\text{InAs}$  量子点的形状,使得发光峰半高宽

减小,而这种抑制作用也是发光峰随  $\text{In}$  组分的增加而红移的一个原因.变温 PL 谱上,  $\text{InGaAs}$  抑制了  $\text{InAs}$  量子点发光峰随温度的红移.根据热激活与热迁移模型,这主要是由于量子点均匀性的变化引起的.

- [1] Y. Arakawa, H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.*, **40**(1982), 939.
- [2] Zhi-ming Wang, Song-lin Feng, Zhen-dong Lü *et al.*, *Acta Physica Sinica* **47**(1998) 89 (in Chinese) [王志明、封松林、吕振东等, *物理学报* **47**(1998) 89].
- [3] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**(1993) 3203.
- [4] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **68**(1996) 979.
- [5] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **74**(1999), 1111.
- [6] V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **74**(1999) 2815.
- [7] J. Y. Yao, T. G. Andersson, G. L. Dunlop, *J. Appl. Phys.* **69**(1996) 2224.
- [8] Zhi-ming Wang, Zhen-dong Lü, Song-lin Feng *et al.*, *Chinese J. Semiconductors* **18**(1997), 714 (in Chinese) [王志明、吕振东、封松林等, *半导体学报* **18**(1997), 714].
- [9] H. Saito, K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, *Appl. Phys. Lett.*, **73**(1998) 2742.
- [10] J. B. Xia, B. F. Zhu, K. Huang, *Semiconductor Superlattice Physics* (Shanghai Science and Technology Press, Shanghai, 1995) [in Chinese] [夏建白、朱邦芬、黄昆, *半导体超晶格物理* (上海科学技术出版社, 上海, 1995)].
- [11] K. Mukai, M. Sugawara, *Appl. Phys. Lett.* **74**(1999) 3963.
- [12] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, X. P. Yang *et al.*, *Phys. Rev.* **B54**(1996), 11528.

# STUDY OF SELF-ASSEMBLED InAs QUANTUM DOT STRUCTURE COVERED BY $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) CAPPING LAYER\*

WANG XIAO-DONG<sup>1)</sup> LIU HUI-YUN<sup>2)</sup> NIU ZHI-CHUAN<sup>1)</sup> FENG SONG-LIN<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> *State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*

<sup>2)</sup> *Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*

( Received 7 January 2000 ; revised manuscript received 25 May 2000 )

## ABSTRACT

InAs self-assembled quantum dots (QDs) covered by 3-nm-thick  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 0.3$ ) capping layer have been grown on GaAs (100) substrate. Transmission electron microscopy shows that InGaAs layer reduces the strain in the InAs islands, and atomic force microscopy evidences the deposition of InGaAs on the top of InAs islands when  $x = 0.3$ . The significant redshift of the photoluminescence (PL) peak energy and the reduction of PL linewidth of InAs quantum dots covered by InGaAs are observed. In addition, InGaAs overgrowth layer suppresses the temperature sensitivity of PL peak energy. Based on our analysis, the strain-reduction and the size distribution of the InAs QDs are the main cause of the redshift and temperature insensitivity of the PL respectively.

**Keywords** : quantum dots , cap layer , strain-reducing , redshift

**PACC** : 6855 , 6116 , 7855

\* Project supported by the National "Climb" Program of China ( Grant No. 19823001 ), and the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 69776016 ).