

不同盖层对 InAs/GaAs 量子点结构 和光学性质的影响*

田 芃 黄黎蓉[†] 费淑萍 余 奕 潘 彬 徐 巍 黄德修

(华中科技大学武汉光电国家实验室, 光电子科学与工程学院, 武汉 430074)

(2009 年 11 月 3 日收到; 2009 年 11 月 27 日收到修改稿)

利用金属有机化合物气相沉积设备生长了不同盖层结构的 InAs/GaAs 量子点, 采用原子力显微镜和光致发光光谱仪对量子点的结构和光学性质进行了研究. 量子点层之间的盖层由一个低温层和一个高温层组成. 对不同材料结构的低温盖层的对比研究表明, In 组分渐变的 InGaAs 低温盖层有利于改善量子点均匀性、减少结合岛数目、提高光致发光强度; 当组分渐变 InGaAs 低温盖层厚度由 6.8 nm 增加到 12 nm, 发光波长从 1256.0 nm 红移到 1314.4 nm. 另外, 还对不同材料结构的高温盖层进行了对比分析, 发现高温盖层采用 In 组分渐变的 InGaAs 材料有利于光致发光谱强度的提高.

关键词: 半导体量子点, 盖层, 组分渐变

PACC: 7360, 7865K, 6855

1. 引 言

三维载流子量子限制效应使量子点具有独特、优越的性质, 在半导体量子点激光器、量子点光放大器 and 探测器上得到了广泛和深入的研究^[1-5]. InAs/GaAs 量子点的生长主要是利用 InAs 和 GaAs 之间高达 7% 的晶格失配, 通过分子束外延 (MBE) 或者金属有机化合物气相沉积 (MOCVD) 进行自组装生长. 为了达到较大的增益和基态发光, 必须采用量子点迭层结构, 这时下层量子点的应力场、盖层表面的粗糙程度会影响上层量子点的成核, 因此, 盖层结构和生长参数的优化就显得非常重要. 人们尝试了许多方法来改进迭层量子点的特性, 在不同温度下生长两层盖层被证明是一种有效提高量子点结构和光学性质的方法^[6-10]. 与单层盖层相比, 双层盖层中的低温盖层能抑制 In 的解吸附和 In—Ga 原子互混, 高温盖层则能消融大的结合岛, 减小下层量子点的应力场. 而采用 InGaAs^[7-11], GaP^[12], GaSb^[13], GaAsSb^[14] 等应力缓冲层作为盖层, 可以将发光波长拓展到光纤通信的 1.3 μm 或者 1.5 μm 波段. Kim 等人使用 MBE 生长了一种 In

组分渐变的 InGaAs 双盖层结构, 改善了量子点的光学性质^[15]. 但是他们仅研究了两个盖层生长温度相同, 组分渐变层靠近下层量子点的情况. 对于利用 MOCVD 设备在不同温度下生长组分渐变的双盖层结构还未见报道. 本文为了进一步改善量子点的晶体生长质量, 提高发光效率, 同时将发光波长控制在 1.3 μm 附近, 采用 MOCVD 研究了不同结构的低温盖层和高温盖层对 InAs/GaAs 量子点的形貌和光学性质的影响. 通过比较研究不同材料结构的低温盖层发现组分渐变的 InGaAs 低温盖层不仅可以改善量子点形貌、提高光致发光谱 (PL 谱) 的强度, 而且调整其厚度可以控制发光波长; 而通过比较不同材料结构的高温盖层对量子点光学性质的影响, 得到组分渐变 InGaAs 高温盖层能增强量子点发光效率, 提高发光强度的结论.

2. 实 验

在 Si 掺杂的 n 型 GaAs (001) 衬底上, 利用 Thomas Swan 低压 MOCVD (CCS Thomas Swan) 设备, 采用 Stranski-Krastanov 模式自组装生长了一系列不同盖层结构的 InAs/GaAs 量子点. MOCVD 生

* 国家高技术研究发展计划 (批准号: 2007AA03Z414), 国家自然科学基金 (批准号: 60777019) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: hlr5649@163.com

长使用 H_2 作载气, 三族源包括三甲基铟 (TMIn), 三甲基镓 (TMGa), 五族源为砷烷 (AsH_3). 图 1 给出了样品的结构示意图. 首先在 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 下生长了一层 GaAs 缓冲层, 然后将生长温度降低进行 InAs 量子点的生长. 量子点的生长温度为 $505\text{ }^\circ\text{C}$ — $511\text{ }^\circ\text{C}$, 沉积厚度为 1.8 原子单层. 生长完量子点后, 在同样的温度下生长一层低温盖层; 然后升高温度到 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 生长一层高温盖层, 最后将温度又降至量子点的生长温度进行第二层 InAs 量子点的生长以用于原子力显微镜的观测.

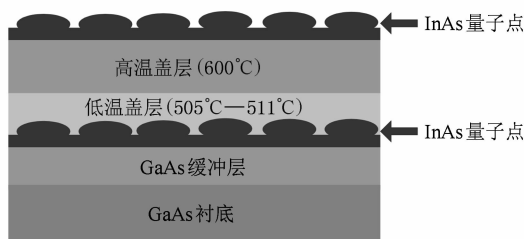


图 1 样品的结构示意图

我们生长了 A, B 两个样品系列来分别研究低温盖层和高温盖层对量子点的影响, 表 1 给出了它们的具体结构参数. 样品 A1—A5 用来研究低温盖层对量子点的结构和光学性质的影响, 除了低温盖层结构不同外, 其余结构和生长参数均相同. 其中样品 A1 采用 GaAs 层作低温盖层, 样品 A2 采用组分固定的 $In_{0.10}Ga_{0.90}As$ 层作低温盖层, 而样品 A3 采用 In 组分渐变的 InGaAs 层 (In 组分由 0.12 线性变化到 0.08, 靠近量子点的低温盖层 In 组分较高) 作低温盖层. 样品 A3—A5 用来研究组分渐变的低温盖层厚度对量子点的影响, 与样品 A3 相比, 样品 A4 的低温盖层厚度增加了 1.2 nm, 而样品 A5 的低温盖层厚度增加了 5.2 nm, 两者的 In 组分渐变范围都和样品 A3 相同.

样品 B1 和样品 B2 研究了高温盖层对量子点光学性质的影响, 除了高温盖层结构不同外, 其余结构和生长参数均相同. 样品 B1 采用 GaAs 层作高温盖层, 而样品 B2 则采用低 In 组分渐变的 InGaAs 层 (In 组分由 0.03 渐变到 0, 靠近下层低温盖层的 In 组分较高) 作高温盖层. 生长以后的样品立即用原子力显微镜进行量子点的形貌观测, 原子力显微镜使用 Digital Instruments 公司的多模扫描探针显微镜. 光致发光光谱采用 HORIBA Jobin 公司的光致发光光谱仪 (LabRAM Spectrometer HR 800 UV) 进行测量, 激发光源采用波长为 514.5 nm 、功率为 25 mW 的 Ar^+ 离子激光器, 探测器采用电致冷的 InGaAs 探测器.

表 1 样品的低温和高温盖层结构参数

	低温盖层	高温盖层
样品 A1	6.8 nm GaAs	20 nm GaAs
样品 A2	6.8 nm $In_{0.10}Ga_{0.90}As$	20 nm GaAs
样品 A3	6.8 nm $In_{0.12-0.08}Ga_{0.88-0.92}As$	20 nm GaAs
样品 A4	8 nm $In_{0.12-0.08}Ga_{0.88-0.92}As$	20 nm GaAs
样品 A5	12 nm $In_{0.12-0.08}Ga_{0.88-0.92}As$	20 nm GaAs
样品 B1	6.8 nm $In_{0.10}Ga_{0.90}As$	47 nm GaAs
样品 B2	6.8 nm $In_{0.10}Ga_{0.90}As$	47 nm $In_{0.03-0}Ga_{0.97-0}As$

3. 结果与讨论

图 2(a)—(c) 分别为样品 A1, A2, A3 的原子力显微镜图.

样品 A1—A3 的低温盖层厚度均为 6.8 nm, 足够盖住下层中绝大部分的量子点. 在随后的升温 and 高温盖层的生长过程中, 由于温度的提高, 增加了 Ga 原子的表面迁移率, 促进了下层大的结合岛的消融. 这样高温盖层生长完以后, 盖层表面比较平整

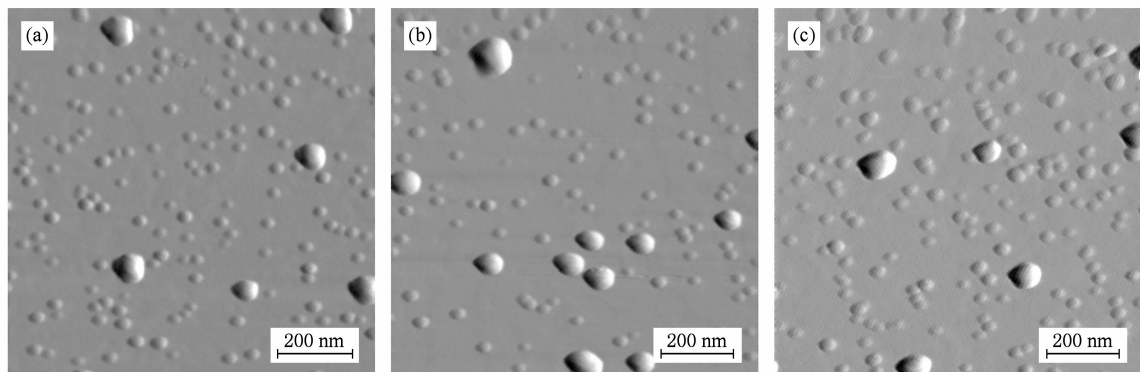


图 2 原子力显微镜图 ($1\text{ }\mu\text{m} \times 1\text{ }\mu\text{m}$) (a)—(c) 分别对应样品 A1, A2, A3

和光滑. 样品 A1 采用 GaAs 低温盖层, 从图 2(a) 可以得到样品 A1 的量子点密度为 $2.01 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 量子点的平均高度和直径为 1.71 nm 和 21.89 nm. 结合岛数目为 8 个, 占总的量子点个数比例为 3.98%. 这些结合岛引起盖层表面粗糙度增大和应力增加, 同时作为非辐射复合中心使发光效率降低.

样品 A2 的低温盖层为组分固定的 $\text{In}_{0.10}\text{Ga}_{0.90}\text{As}$ 层. 从图 2(b) 可以看到量子点平均高度和直径分别为 2.15 nm, 21.95 nm. 和样品 A1 相比, 高度和直径有所增加. 这是由于 InGaAs 低温盖层缓解了 InAs 量子点和低温盖层间的晶格失配, 应力得到部分释放所导致. 量子点的密度为 $1.90 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 结合岛的数目为 11 个.

样品 A3 采用 In 组分渐变的 InGaAs 低温盖层. 量子点的密度为 $2.55 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 平均高度和直径分别为 1.62 nm 和 21.50 nm. 通过对三个样品的量子点尺寸分析, 发现样品 A3 的均匀性较前两种结构有明显提高, 大小分布范围比较集中, 结合岛的数目也仅有 6 个, 得到了较大幅度减少. 这是采用组分渐变的 InGaAs 作为低温盖层, 使量子点的应力逐步得到释放, 而且 In 的组分是从高到底进行渐变, 靠近量子点的 In 组分较高, 对 InAs 量子点应力的缓冲和 In 的解吸附抑制作用更强; 而靠近高温盖层的 In 组分较低, 低温和高温盖层间的晶格失配较小, 这有利于改善高温盖层的晶体生长质量和平滑盖层表面, 所以结合岛的数目得到了大幅度的降低, 而且量子点的均匀性也得到了提高. 这表明样品 A3 有更好的晶体生长质量, 较前两个样品更适合器件的制作.

图 3 为样品 A1—A3 的室温 PL 谱. 样品 A2 的 PL 谱峰值强度比样品 A1 提高了 36%, 而样品 A3 的 PL 谱峰值强度比样品 A1 提高了 73%. 这是由于 InGaAs 势垒增加了载流子被量子点俘获的概率, 另外也意味着 InGaAs 的低温盖层能改善量子点晶体生长质量, 降低非辐射复合. 组分渐变的 InGaAs 低温盖层比组分固定的 InGaAs 低温盖层的 PL 谱峰值强度更强, 这可以解释为组分渐变引起势垒高度渐变, 降低了界面势垒尖峰, 平滑了势垒的带边, 从而进一步提高了载流子被量子点俘获的效率; 另一方面是组分渐变可以减少失配引起的缺陷, 改善晶体生长质量, 降低非辐射复合, 提高发光效率.

图 3 中三个样品都清晰可见基态和激发态发光峰. 通过高斯曲线拟合, 样品 A1—A3 的基态发光波

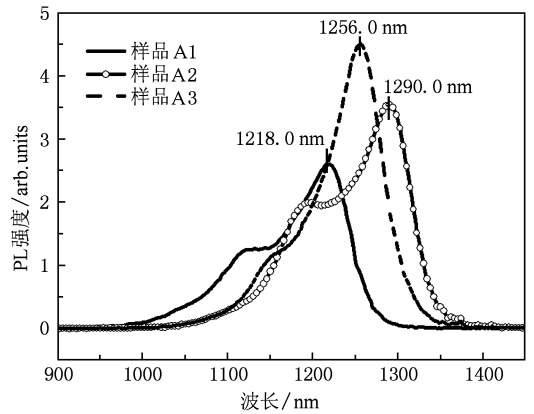


图 3 样品 A1—A3 的室温 PL 谱

长分别为 1218.0, 1290.0, 1256.0 nm 和样品 A1 相比, 采用组分固定 InGaAs 低温盖层的样品 A2 波长红移了 72 nm, 而采用组分渐变 InGaAs 低温盖层的样品 A3 波长红移了 38 nm. 样品 A2 波长红移是由于 InGaAs 低温盖层的应力缓冲作用减低了 InAs 量子点带隙宽度, 以及增加了量子点的直径和高度的原因. 而样品 A3 波长红移量较少, 是由于组分渐变层势垒的导带可以简单看作是在组分固定层的势垒导带基础上增加一个附加的线性势场, 线性势场的变化与低温盖层的组分渐变都是沿生长方向增大, 导致导带能级向上发生移动, 故发光波长较短.

上述结果表明, 组分渐变的 InGaAs 低温盖层增加了 PL 谱的强度、改善了量子点的均匀性、提高了量子点晶体生长质量. 为了进一步将量子点发光波长红移到 1.3 μm 附近, 又保持较强的 PL 发光强度, 我们在样品 A3 的基础上, 增加组分渐变层的厚度生长了样品 A4 和 A5. 和样品 A3 相比, 样品 A4 的组分渐变 InGaAs 低温盖层厚度为 8 nm, 而样品 A5 的厚度为 12 nm. 样品 A4 和 A5 的量子点密度分别为 $2.14 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 和 $2.06 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 样品 A3—A5 的量子点密度随低温盖层的厚度增加有所下降, 但下降幅度较小, 说明低温盖层的厚度对上层量子点密度影响不大. 样品 A4 和 A5 的量子点的平均高度和直径分别为 2.29 nm, 2.24 nm, 21.71 nm 和 22.41 nm, 结合岛的数目分别为 7 个和 10 个, 较样品 A3 都有所增加. 较厚的低温盖层导致下层的量子点和结合岛一起被覆盖, 在高温盖层生长时结合岛得不到消融和蒸发, 应力场的影响依然存在, 从而引起第二层量子点的结合岛数目增加.

图 4 给出组分渐变 InGaAs 低温盖层厚度对基

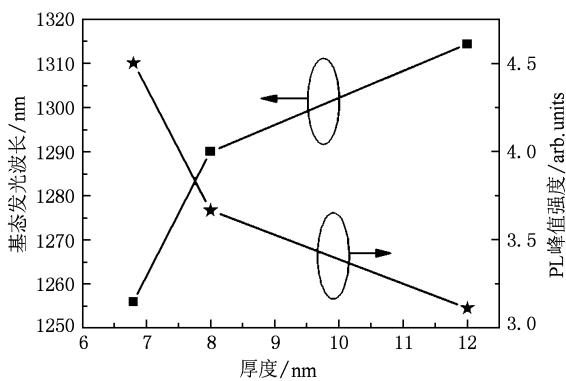


图 4 组分渐变 InGaAs 低温盖层厚度对发光波长和 PL 谱峰值强度的影响

态发光波长和 PL 谱峰值强度的影响曲线. 当厚度从 6.8 nm 增加到 12 nm, 基态发光波长从 1256.0 nm 红移到 1314.4 nm, 红移了 58.4 nm. 而且, 低温盖层厚度从 6.8 nm 到 8 nm, 仅增加了 1.2 nm, 但基态发光波长红移了 32 nm, 红移量明显多于 8 nm 到 12 nm 的 26.4 nm 红移. 因此, 调整低温盖层的厚度可以控制量子点基态发光波长在 1.3 μm 附近. PL 的最大强度随样品厚度增加有所下降, 这现象进一步证明了随着低温厚度的增加, 下层结合岛被覆盖而得到保护, 导致结合岛增加、PL 强度下降这一推断.

低温盖层可以降低 In 的解吸附, 合适的低温层厚度可以使大的结合岛露出低温层, 在高温盖层生长时, 露出的结合岛在高温下消融蒸发, 得到平滑的盖层表面. 因此, 高温盖层对迭层量子点同样具有重要的作用. 样品 B1 和样品 B2 研究了高温盖层对量子点光学性质的影响. 样品 B1 的高温盖层采用 47 nm 的 GaAs 层, 样品 B2 的高温盖层采用同样厚度的低 In 组分渐变 $\text{In}_{0.03-0}\text{Ga}_{0.97-0}\text{As}$ 层. 图 5 为样品 B1 和 B2 的室温 PL 谱. 从图上可以发现, 与样

品 B1 相比, 样品 B2 的 PL 强度得到了较大的提高, PL 谱的积分强度也明显提高, 基态和激发态发光波长都红移了 1.5 nm. 主要原因是 In 组分渐变的高温盖层结构进一步减小了两个盖层间的晶格失配和下层量子点的应力, 平滑了盖层表面, 这样有利于结合岛的消融和非辐射复合的抑制, 使 PL 谱强度得以提高.

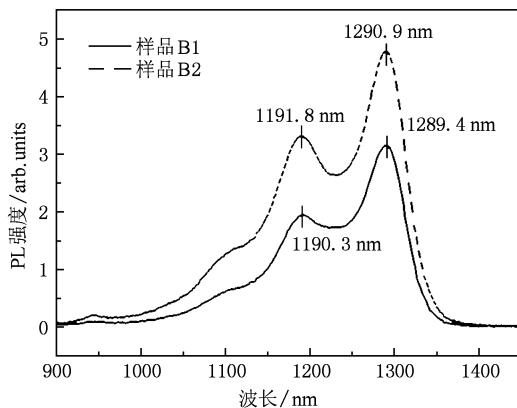


图 5 样品 B1 和样品 B2 的室温 PL 谱

4. 结 论

利用 MOCVD 生长了一系列具有低温和高温双盖层结构的 InAs/GaAs 量子点, 比较研究了不同的低温盖层和高温盖层结构对量子点结构和光学性质的影响. 发现在低温盖层中, In 组分渐变的 InGaAs 低温盖层有利于增加量子点的均匀性、减少结合岛的数目, 提高 PL 谱强度. 而增加低温盖层的厚度, 可以控制 PL 发光波长. 高温盖层的研究表明 In 组分渐变的高温盖层结构有利于 PL 谱强度的提高. 这样, 通过设计盖层结构和调整盖层生长参数, 可得到晶体生长质量优良、发光波长在 1.3 μm 左右的 InAs/GaAs 量子点.

[1] Huffaker D L, Park G, Zou Z, Shchekin O B, Deppe D G 1998 *App. Phys. Lett.* **73** 2564
 [2] Ji H M, Cao Y L, Yang T, Ma W Q, Cao Q, Chen L H 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1896 (in Chinese) [季海铭、曹玉莲、杨涛、马文全、曹青、陈良惠 2009 物理学报 **58** 1896]
 [3] Caroff P, Paranthoen C, Platz C, Dehaese O, Folliot H, Bertru N, Labbe C, Piron R, Homeyer E, Le Corre A, Loualiche S 2005 *App. Phys. Lett.* **87** 243107

[4] Huang L R, Yu Y, Tian P, Huang D X 2009 *Semicond. Sci. Technol.* **24** 015009
 [5] Wang C, Liu Z L, Li T X, Chen P P, Cui H Y, Xiao J, Zhang S, Yang Y, Lu W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1155 (in Chinese) [王芑、刘昭麟、李天信、陈平平、崔昊杨、肖军、张曙、杨宇、陆卫 2008 物理学报 **55** 1155]
 [6] Lian G D, Yuan J, Brown L M, Kim G H, Itchie D A 1998 *App. Phys. Lett.* **73** 49

- [7] Liu H Y, Sellers I R, Badcock T J, Mowbray D J, Skolnick M S, Groom K M, Gutierrez M, Hopkinson M, Ng J S, David J P R, Beanland R 2004 *App. Phys. Lett.* **85** 704
- [8] Kong L M, Feng Z C, Wu Z Y, Lu W J 2008 *Semicond. Sci. Tech* **23** 075044
- [9] Sears K, Mokkapatil S, Buda M, TanHH, Jagadish C 2006 *Proceedings of The SPIE International Symposium on Smart Materials, Nano- and Micro-Smart Systems* Adelaide, Australia, 2006, 6415 641506
- [10] Yang T, Tatebayashi J, Nishioka M, Arakawa Y 2006 *App. Phys. Lett.* **89** 081902
- [11] Stintz A, Liu G T, Gray A L, Spillers R, Delgado S M, Malloy K J 2000 *J. Vac. Sci. Technol. B* **18** 1496
- [12] Laghumavarapu R B, El-Emawy M, Nuntawong N, Moscho A, Lester L F, Huffaker D L 2007 *App. Phys. Lett.* **91** 243115
- [13] Jiang Z W, Wang W X, Gao H C, Li H, He T, Yang C L, Chen H, Zhou J M 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 471 (in Chinese) [蒋中伟、王文新、高汉超、李辉、何涛、杨成良、陈弘、周均铭 2009 物理学报 **58** 471]
- [14] Liu H Y, Steer M J, Badcock T J, Mowbray D J, Skolnick M S, Navaretti P, Groom K M, Hopkinson M, Hogg R A 2005 *App. Phys. Lett.* **86** 143108
- [15] Kim J S, Lee J H, Hong S U, Han W S, Kwack H S, Lee C W, Oh D K 2003 *J. App. Phys.* **94** 6603

Effect of different cap layers on the structure and optical properties of InAs/GaAs self-assembled quantum dot^{*}

Tian Peng Huang Li-Rong[†] Fei Shu-Ping Yu Yi Pan Bin Xu Wei Huang De-Xiu

(Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, College of Optoelectronic Science and Engineering,

Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

(Received 3 November 2009; revised manuscript received 27 November 2009)

Abstract

Self-assembled InAs/GaAs quantum dot structures with different cap layers are grown by metal-organic chemical vapor deposition. The structure and optical properties of quantum dots are investigated using atomic force microscopy and photoluminescence. The cap layers sandwiched between quantum dots are composed of a low-temperature layer and a high-temperature layer. The comparative studies on low-temperature cap layer show that In graded InGaAs layer structure improves the uniformity of quantum dots, decreases coalescent islands and enhances photoluminescence intensity. Emission wavelength shifts from 1256.0 nm to 1314.4 nm when the thickness of graded InGaAs low-temperature cap layer increases from 6.8 nm to 12 nm. The research on high-temperature cap layer structure indicates that In graded InGaAs layer can increase photoluminescence intensity.

Keywords: semiconductor quantum dots, cap layer, graded composition

PACC: 7360, 7865K, 6855

* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2007AA03Z414), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60777019).

† Corresponding author. E-mail: hlr5649@163.com