

InAs/GaAs 柱形岛的制备及特性研究^{*}

朱天伟^{1)2)†} 徐 波¹⁾ 何 军¹⁾ 赵凤璠¹⁾ 张春玲¹⁾ 谢二庆²⁾ 刘峰奇¹⁾ 王占国¹⁾

¹⁾ (中国科学院半导体研究所半导体材料科学重点实验室, 北京 100083)

²⁾ (兰州大学物理科学与技术学院, 兰州 730000)

(2003 年 2 月 21 日收到 2003 年 4 月 17 日收到修改稿)

利用固源分子束外延(MBE)的方法经 SK 模式自组装生长由多层 InAs/GaAs 量子点组成的柱形岛. 具体分析了 GaAs 间隔层厚度, 生长停顿时间以及 InAs 淀积量对发光峰波长的影响. 原子力显微镜(AFM)结果显示柱形岛表面的形状和尺寸都比较均匀. 室温下不同高度的柱形岛样品的发光波长分别达到 1.32 和 1.4 μm , 而单层量子点的发光波长仅为 1.1 μm , 充分说明了量子点高度对发光波长的决定性影响, 这为调节量子点发光波长提供了一种直观且行之有效的方法.

关键词: 柱形岛, 生长停顿, 间隔层厚度, PL 谱

PACC: 7865K, 7280E, 7360F

1. 引 言

由于量子点具有 δ 函数的态密度, 在光电子器件领域有着潜在的广泛应用, 应变自组装量子点的研究引起了人们的极大兴趣, 研究得最为深入的是 InAs/GaAs 量子点^[1-5]. 但是自组装生长的没有位错的 InAs/GaAs 量子点其发光波长只能在 1—1.24 μm 之间, 且面密度较低 (10^{10} cm^{-2}), 尺寸涨落在 10% 以上, 为了扩展 InAs/GaAs 量子点发光波长到光纤通讯领域有重要应用的 1.3 μm 波段, 必须采用特殊的调制方法^[6-9], 同时叠加多层量子点以增加量子点的体密度. 在多层 InAs/GaAs 量子点中, 由于底层量子点在间隔层中诱导的应变场的作用, 后续生长的量子点将在底层量子点的正上方优先成核. 在强耦合量子点结构中, 电子-空穴波函数的交叠即耦合将使量子点的发光波长红移, 并能得到比单层量子点更窄的光谱半高宽. 但是强耦合量子点发光效率明显降低, 发光强度随温度升高快速淬灭, 到室温时基本上观测不到发光. 究其原因可能是在强耦合量子点结构中, 上下层点之间依然存在很薄间隔层的影响. 为了克服强耦合量子点中的上述不足, 人们想到进一步减小间隔层厚度到同量子点的高度相当甚或更小, 使得上下层中的

量子点直接接触, 形成高度很高的柱形结构的岛(简称柱形岛). 柱形岛的优点是其有效高度可以通过生长参数如 InAs 淀积量、GaAs 间隔层厚, 以及叠加层数等自由控制, 从而实现对发光波长的自由调节^[10,11].

我们先研究了主要的生长因素, 具体包括 GaAs 间隔层厚度、生长停顿时间以及 InAs 淀积量对发光波长的影响. 然后在适宜的条件下生长了由 3 层 InAs 量子点形成的柱形岛样品 A 和 B, 样品 A 和 B 的 GaAs 间隔层厚度分别为 2nm 和 1.5nm, 室温下其发光波长分别达到了 1.4 和 1.32 μm . 据已有的文献报道, 这是利用 InAs/GaAs 柱形岛得到的最长发光波长. 说明了通过增加柱形岛的有效高度, 可以实现柱形岛发光波长的红移, 证实了量子点的量子化效应主要由其高度决定. 这为利用现有的材料体系得到需要的发光波长提供了一种很好的方法.

2. 实 验

用于观测的 InAs/GaAs 柱形岛样品是在半绝缘 (100) GaAs 衬底上用固源 MBE (Riber 32P) 的方法经 SK 模式自组装生长而成. 整个生长过程用 10kV 的反射高能电子衍射仪 (RHEED) 原位监控, 生长过程中衬底保持旋转, 并维持恒定的 $7.3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ ($1 \text{ Torr} =$

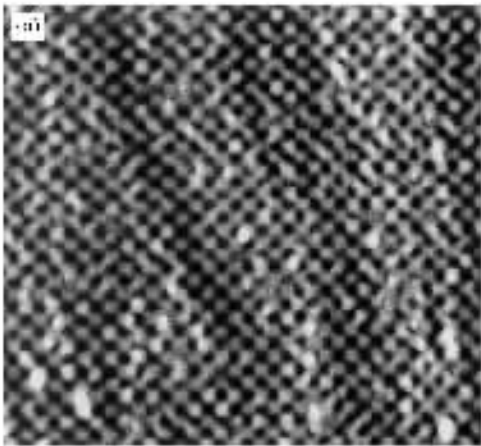
^{*} 国家重点基础研究发展规划项目(批准号 G2000068303)、国家自然科学基金(批准号 60076024、90101002、90201033)、国家高技术研究发展计划项目(批准号 2002AA311070)和中国科学院知识创新重大项目(批准号 KJCX1-06-06)资助的课题.

[†] E-mail: zhutw@red.semi.ac.cn

133.322Pa)的砷压.衬底在 580℃脱氧后,以 0.6μm/h 的速度生长 200nm 的 GaAs 缓冲层,为了增强对有源区载流子的限制作用,在 GaAs 缓冲层的中间位置 600℃下生长了 100nm Al_{0.5}Ga_{0.5}As 势垒限制层.将衬底温度降到 480℃从下往上三层依次淀积 1.9,1.7 和 1.5ML(原子单层)的 InAs 形成量子点,每层点的形成都从 RHEED 衍射图样由条状到点状的转变得得到证实.样品 A 和 B 的 GaAs 间隔层厚度分别为 2nm 和 1.5nm.为了使吸附到衬底上的 In 原子充分的弛豫,在间隔层生长的前后各停顿 120s.用于测原子力的样品生长过程至此结束.用于测光致发光(PL)谱的样品继续生长 GaAs/Al_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs 的复合限制层后结束生长.

3. 结果与讨论

图 1(a)为没有生长复合限制层的样品 A 表面



1.0μm×1.0μm 典型的原子力显微图片.从 AFM 图片上可以观察到柱形岛表面的尺寸比较均匀,没有出现所谓的双模或多模分布,仅出现了极个别较大的点.对 AFM 原始数据的统计结果显示柱形岛表面平均高度为 2.3nm,底面直径为 24.2nm,表面密度为 $5.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. 样品 B 的表面形貌和 A 类似,没有明显变化.在样品的制备过程中,通过 RHEED 观察发现第一层量子点由二维层状生长向三维岛状生长转变的临界厚度为 1.6ML,第二层和第三层的临界厚度分别为 1.3ML 和 1.1ML.临界厚度减小的可能原因是由于底层量子点诱导应变场的影响,或者由于底层 InAs 点中 In 的偏析^[10,12].如果保持 InAs 的淀积量相同,后续生长的量子点尺寸会逐步增大^[13].因此为了控制柱形岛的形状,使组成柱形岛的三部分的宽度趋于一致,在第二层和第三层量子点中依次减小了 0.2ML 和 0.4ML 的 InAs 淀积量.

在 GaAs 缓冲层上淀积 InAs 经 SK 模式形成量子

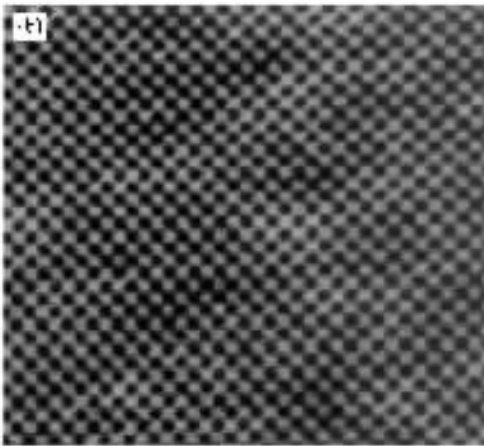


图 1 AFM 图片 (a)样品 A 的上表面;(b)先淀积 2ML InAs 形成量子点,再用 2nm 的 GaAs 覆盖并经过 120s 生长停顿后形成的平坦表面

点,再用厚度小于 InAs 点高度的 GaAs 层将 InAs 点部分覆盖,如果此时引入生长停顿,In 原子从 InAs 岛表面脱附迁移到 GaAs 表面可以使系统能量降低.图 2 为生长停顿时间, GaAs 间隔层厚度以及 InAs 淀积量对样品 77K 时发光峰位的影响.由图可以看出,在停顿刚开始的 30s 内,发光峰能量增加了 70meV.随着停顿时间的延长,峰位蓝移的速度明显变慢,在 30s 到 180s 的停顿时间内,发光峰能量仅增加了 25meV.我们知道在 In 原子的表面化学势中有一项为 $\gamma\Omega\kappa(r)$, 其中 γ 为表面能, $\kappa(r)$ 为表面曲率^[14], 这表明 In 原子所在处的表面曲率 $\kappa(r)$ 越大, In 原子所具有的化学势就越高.停顿刚开始时,金字塔形的量子点顶部

非常尖,有着大的表面曲率,因而此时的 In 具有很高的化学势,大的 In 原子化学势梯度驱动着 In 原子朝着低化学势区域快速迁移,所以停顿刚开始时量子点高度降低非常快.随着停顿时间的延长,量子点的上端逐步变为表面曲率越来越小的平台, In 原子具有的化学势随之越来越低,因此高度降低的速度随之变慢.当停顿时间超过 180s 时,整个系统基本达到稳定状态,再延长停顿时间,发光峰能量近乎不再变化.图 1(b)为在 GaAs 衬底上淀积 2.0ML InAs 后,覆盖 2nm 的 GaAs 间隔层并经过 120s 生长停顿后形成的平坦表面. PL 谱峰位随停顿时间的大范围移动有很大的应用潜力,可以非常方便地得到不同发光波长的量子

点材料.图 2(b)中还总结了 InAs 淀积量与未经生长停顿的量子点高度的关系.另外,由于 InAs 量子点的底部被 GaAs 盖层限制住,因此只要量子点是在相同条件下生长,其底部的横向尺寸几乎不受 GaAs 盖层厚度和生长停顿时间的影响.

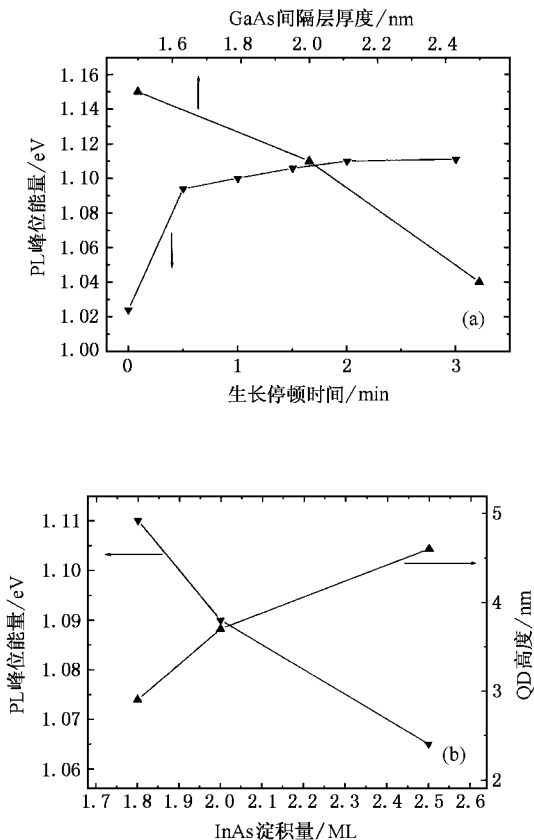


图 2 (a) InAs 淀积量为 1.8ML 时量子点发光峰位能量和 GaAs 间隔层厚度的关系以及发光峰位能量和生长停顿时间的关系;(b) 经 120s 生长停顿后 InAs 点发光峰位能量和淀积量的关系以及未经生长停顿的量子点的高度和淀积量的关系

光致发光谱采用 Ar^+ 514.5nm 线激发,采用液氮冷却的傅里叶变换红外 InGaAs 探测器.图 3(a)和(b)分别为样品 A,B 在室温下的 PL 谱.样品 A 的发光峰中心波长在 $1.4\mu\text{m}$,半高宽为 157meV.样品 B 的发光峰中心波长在 $1.32\mu\text{m}$,半高宽为 143meV.作为对比,单层量子点室温下的发光峰波长为 $1.1\mu\text{m}$,见图 3(c).我们注意到样品 B 中主峰的左侧有一很弱的发光峰,波长仅为 $1.08\mu\text{m}$.

Xie 等^[14]指出在多层 InAs/GaAs 结构中,当 GaAs 间隔层厚度小于 46ML (13nm) 时,上下层量子点垂直对准率达到饱和值 90%,也就是说每层中还有 10% 左右的点依然是高度较小的单层量子点.据此我们认为 $1.08\mu\text{m}$ 处的发光正是来源于这些没有垂直对准的

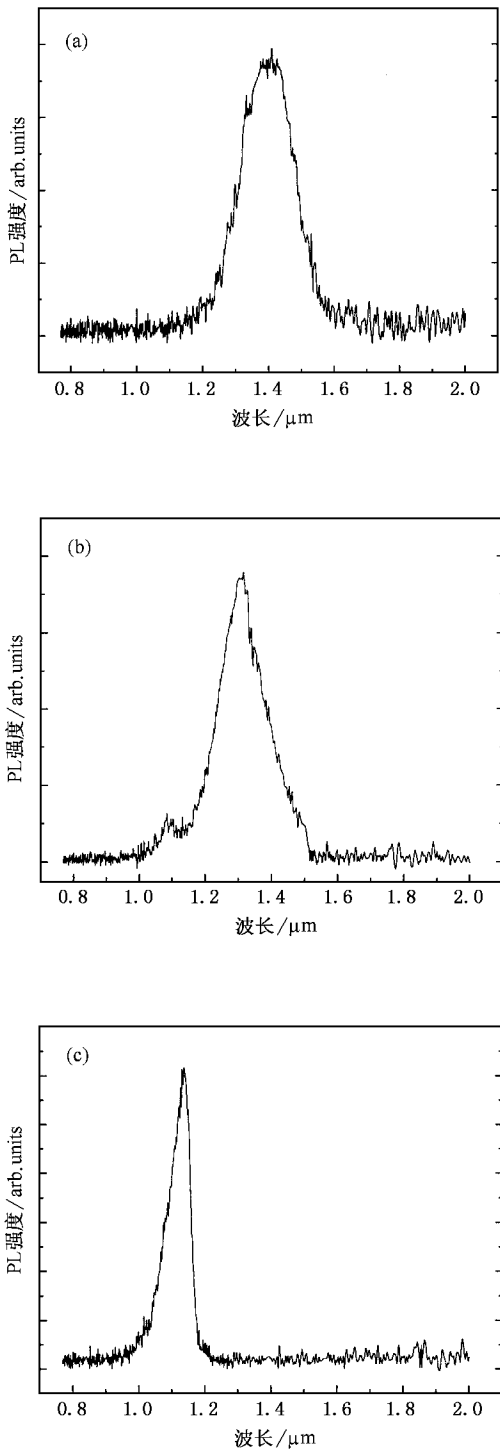


图 3 间隔层厚度分别为 2nm(a)和 1.5nm(b)的三层量子点形成的柱形岛的 PL 谱;(c)经过 120s 生长停顿后单层量子点的 PL 谱

单层小量子点.这从一个侧面说明了长波长的发光来自多层量子点叠加形成的柱形岛.通常量子点的横向尺寸同纵向尺寸相比约为 10:1,简单的理论推算可知两者对量子点分立能级的影响之比为 1:100,因此量

子点纵向尺寸对能级的影响是决定性的^[15]. 正因为如此,近年来有关量子点能级的理论计算都是把量子点作量子阱近似,而量子点的纵向尺寸作为阱宽^[16],计算的结果和测试结果能很好地吻合^[15]. 由于样品 A 的间隔层厚度为 2nm,比未经停顿的量子点的高度(2.95nm)要小,在每一层量子点的生长过程中,淀积 InAs 后的生长停顿,足以使系统达到稳定的平衡状态,可以认为样品 A 的柱形岛高度为 6nm,由三部分组成,每一部分的高度都是 2nm. 同理认为样品 B 中柱形岛的有效高度为 4.5nm,这和 PL 谱结果完全一致,表明了柱形点的高度越高,发光峰波长越长. 样品 B 同样品 A 相比,半高宽要小,表明减小间隔层的厚度,能够提高柱形点的尺寸均匀性,降低光谱的非均匀展宽.

在间隔层为几 nm 的多层强耦合量子点结构中,由于生长方向上不同的量子点之间存在波函数的扩展和交叠,因此被某个量子点俘获的载流子能够在耦合的量子点之间弛豫,在辐射复合前最终到达基态能量最低的某个量子点. 多层量子点结构还可以减小量

子点尺寸的波动,同时量子点间的间距也变得更加均匀. 所以同单层量子点相比,多层强耦合量子点不仅发光峰位出现红移,而且半高宽会变窄^[17,18]. 但是强耦合量子点结构的发光效率明显降低,一般只能在低温下观察到发光,随着温度的升高发光很快淬灭. 其原因可能是量子点间存在很薄(几个 nm)间隔层的影响. 虽然柱形岛也是由几部分组成,但各部分直接接触形成了一个整体,因此发光峰位出现红移,并且室温下有较强的发光.

4. 结 论

我们用 MBE 方法经 SK 模式生长了不同间隔层厚度的柱形岛样品 A 和 B,PL 谱结果显示样品 A 和 B 在常温下发光波长分别达到 1.4 和 1.32 μm . 实验证明样品的发光波长随柱形岛有效高度的增加而增加,同时堆积层数越薄,样品的发光特性越好. 这表明通过密堆积的方法能够得到有效高度可以自由控制的柱形岛,从而实现发光波长的自由控制.

- [1] Park G, Hffaker D L, Zou Z, Shchekin O B and Deppe D G 1999 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **11** 301
- [2] Hffaker D L, Park G, Zou Z, Shchekin O B and Deppe D G 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 2564
- [3] Lester L F, Stintz A, Li H, Newell T C, Pease E A and Fuchs B A 1999 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **11** 931
- [4] Wei Y Q, Liu H Y, Cai C L and Xu B 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 982
- [5] Jiang W H, Xu H Z, Gong Q and Xu B 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1451 (in Chinese) [姜卫红、许怀哲、龚 谦、徐 波 1999 物理学报 **48** 1541]
- [6] Mirin R P, Ibbetson J P, Nishi K, Gossard A C and Bowers J E 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 3795
- [7] Mukhametzanov I, Heitz R, Zeng J, Chen P and Madhukar A 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1841
- [8] Nishi K, Saito H, Sugou S and Jeong-Sik L 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1111
- [9] Bloch, Shah J, Hobson W S, Lopata J and Chu S N G 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 2199
- [10] Mukai K, Otsuka N and Sugawara M 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 2416
- [11] Sugawara M, Mukai K and Shoji H 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 2791
- [12] Garcia J M, Silveira J P and Briones F 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 409
- [13] Wasilewski Z R, Fafard S and McCaffrey J P 1999 *J. Cryst. Growth* **201/02** 21131
- [14] Xie Q, Madhukar A, Chen P and Kobayshi N P 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 2542
- [15] Wang J Z, Yang Z and Yang C L 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2837
- [16] Migliorato, Wilson L R 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 6374
- [17] Darhuber A A, Holy V, Stangl J et al 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 955
- [18] Tersoff J, Teichert C, Lagall 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1675

The fabrication and properties of InAs/GaAs columnal islands^{*}

Zhu Tian-Wei^{1)2)†} Xu Bo¹⁾ He Jun¹⁾ Zhao Feng-Ai¹⁾ Zhang Chun-Ling¹⁾
Xie Er-Qing²⁾ Liu Feng-Qi¹⁾ Wang Zhan-Guo¹⁾

¹⁾ (Key Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

²⁾ (School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

(Received 21 February 2003 ; revised manuscript received 17 April 2003)

Abstract

A columnal islands system, which was composed of three layers of self-assembled InAs/GaAs quantum dots (QDs), has been fabricated by solid-source molecular beam epitaxy (MBE) through S-K mode on a (100) semi-insulating GaAs substrate. The effects of the thickness of GaAs space layer, the growth interruption time and the amount of InAs deposition on the emission wavelength of columnal islands were presented. The image of atomic force microscopy (AFM) indicated the columnal islands with high uniformity in size and shape. At room temperature, the emission wavelength of columnal islands with different effective heights was achieved 1.32 and 1.4 μm ; however, the emission wavelength of single-layer QDs with normal height was just 1.1 μm . It provides a useful and intuitive approach to artificially control the emission wavelength of a QD material system.

Keywords : InAs/GaAs columnal islands, growth interruption, space layer, PL spectra

PACC : 7865K, 7280E, 7360F

^{*} Project supported by the Special Funds for Major State Basic Research Project of China (Grant No. G2000068303), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60076024, 90101002 and 90201033), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2002AA311070), and Major Project of Knowledge Innovation of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. KJCX1-06-06).

[†] E-mail : zhutw@red.semi.ac.cn