

自组织 InAs/GaAs 量子点 垂直排列生长研究^{*}

王志明 封松林 吕振东 杨小平 陈宗圭 宋春英 徐仲英 郑厚植

(中国科学院半导体研究所超晶格微结构国家重点实验室, 北京 100083)

王凤莲 韩培德 段晓峰

(中国科学院北京电子显微镜实验室, 北京 100080)

(1997 年 4 月 1 日收到)

利用自组织生长 InAs/GaAs 量子点的垂直相关排列机制, 生长了上下两层用 6.5 nm GaAs 间隔的 InAs 结构. 下层 InAs 已成岛, 由于应力传递效应, 上层 InAs 由二维生长向三维成岛生长的转变提前发生, 临界厚度从 1.7 ML 变成小于 1.5 ML. 透射电子显微镜截面象显示形成上下两层高度差别很大的 InAs 量子点, 但是由于两层量子点之间存在强烈的电子耦合, 光致发光谱中只有与包含大量子点的 InAs 层相对应的一个发光峰.

PACC: 6865; 6116D; 7855

1 引 言

现在人们已经充分认识到, 利用高失配的异质外延生长, 可以自组织形成无位错的低维结构. 这些低维结构具有独特的物理性能, 在光电子器件应用方面有广阔的发展前景. InAs 淀积在 GaAs 衬底上, 由于两种材料之间存在较大的晶格失配(7%), 当 InAs 覆盖度超过一定的临界厚度时, 外延生长由二维平面生长变为三维成岛生长, 形成具有纳米尺寸的 InAs 岛^[1,2]. 岛中载流子在空间三个维度都受到限制, 可以看作是量子点. 自组织生长的 InAs/GaAs 量子点是强应变体系, 不仅在 InAs 岛中, 而且在 GaAs 衬底中和岛上随后生长的 GaAs 覆盖层中都存在应变^[3]. 当生长多层 InAs 量子点结构时, 如果量子点之间的 GaAs 层不是很厚(小于 20 nm), 由于 GaAs 间隔层中的应变影响, 量子点将在垂直方向, 也就是生长方向, 成对进而成串排列, 形成量子点超晶格^[4-7]. 简单的理论预计^[8], 这种结构会使量子点的尺寸和分布都趋向均匀. 目前自组织生长的量子点尺寸和分布不均匀已经成为这一领域进一步发展的最大障碍.

我们利用分子束外延(MBE)技术生长了 4 种样品结构, 每种结构都包含两层 InAs, 下层 2.5 ML 厚度不变, 上层 InAs 覆盖度分别为 1.0, 1.5, 1.8 和 3.0 ML, 中间层 GaAs 厚为 6.5 nm. 下层 InAs 从二维生长向三维成岛生长转变的临界厚度为 1.7 ML, 而透射

^{*} 国家自然科学基金和国家攀登计划资助的课题.

电子显微镜(TEM)照片显示上层 InAs 覆盖度小于 1.5 ML 就已开始三维成岛生长. 尽管每种样品结构中都包含不同厚度的 InAs 层, 光致发光(PL)谱中只有一个与 InAs 相关的发光峰, 这是由于两层 InAs 之间存在强烈的电子耦合.

2 实 验

实验所用样品由 VG 公司的 MBE 系统 V80H MKII 生长. GaAs(100) 衬底在 MBE 系统中 580 ℃ 脱氧后, 温度升至 610 ℃ 除气 5 min, 然后在 600 ℃ 先生长 0.5 μm GaAs 缓冲层, 再将生长温度降至 450 ℃, 淀积 2.5 ML 的 InAs, 接着覆盖 6.5 nm 的 GaAs 层. 随后淀积具有 4 种不同覆盖度的第二层 InAs, 最后生长 20 nm 的 GaAs 完成结构. 其中 GaAs 的生长速率为 1 $\mu\text{m}/\text{h}$, InAs 的生长速率为 0.11 $\mu\text{m}/\text{h}$. 为了尽可能地减少由于生长条件波动带来的影响, 保持不同结构之间的可比性, 4 种样品一个紧接一个连续生长. 为了便于讨论, 将 4 种样品按其结构标记为 1.0/2.5, 1.5/2.5, 1.8/2.5 和 3.0/2.5.

TEM 测量是在 Philips CM200 FEG 电子显微镜上进行的. 为了得到 TEM 截面象, 样品面对面粘在一起, 先进行机械减薄, 然后用氩离子轰击直到电子束可以穿透. PL 谱测量采用氩离子激光器作为激发光源, 激发光波长为 514.5 nm, 激发功率约为 4 mW. 样品放在液氮闭循环制冷装置中, 温度保持在 12 K. 输出信号用低温锗探测器测量.

3 实验结果及讨论

在文献[9]中, 我们曾经系统地研究了单层 InAs 量子点的物理特性. 高能电子衍射(RHEED)图形转变、TEM 分析和 PL 谱的变化, 都表明在我们的生长条件下, InAs 在 GaAs(100) 衬底上从二维生长向三维成岛生长转变的临界厚度为 1.7 ML, 这与其他研究人员的实验结果一致. 现在的双层 InAs 结构中下层覆盖度为 2.5 ML, 由一层浸润层和其上分布的岛状结构组成, 从 TEM 平面象可以清楚地看到岛状结构底部横向尺寸分布很集中, 平均约为 10 nm, 面密度约为 $5 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ [9]. 图 1 是 1.5/2.5 结构的 TEM 截面象. 由于 InAs 量子点在平面上分布不均匀, 截面象切割量子点的位置不一样, 导致在截面象里量子点尺寸更加离散. 估算下层 InAs 量子点的高度约为 5 nm.

一旦出现了 InAs 量子点, 不仅在量子点中间, 而且在量子点附近, GaAs 衬底和覆盖层中都会发生弹性形变, 使 GaAs 和 InAs 之间高达 7% 的失配得到部分弛豫. 靠近量子点顶部上端的 GaAs 晶格发生横向伸长形变, 因而同晶格常数比 GaAs 大的 InAs 晶格更加接近. 当 GaAs 覆盖层上再生长 InAs 层时, 沉落在量子点正上方的 InAs 材料应变较小, 根据自由能最低的原则, 更多的 InAs 材料将倾向于淀积在应变较小的区域. 这种倾向性会导致量子点成对成串纵向排列, 也会造成 InAs 提前开始从二维平面生长转变到三维成岛生长. 图 1 清楚地显示由于下层量子点的影响, 上面覆盖度为 1.5 ML 的 InAs 层已经出现厚度起伏, 说明二维生长向三维成岛生长转变的临界厚度小于 1.5 ML. 上下两层量子点大都成对垂直对齐, 横向尺寸基本一致, 但上面量子点的高度显然比下面小很多.

1.0/2.5 结构中上面的 1.0 ML InAs 层没有成岛生长, TEM 照片显示依然是超薄量

子阱. $1.8/2.5$ 结构与 $1.5/2.5$ 结构一样, 会形成上矮下高的量子点对, 而 $3.0/2.5$ 结构中则会出现上高下矮的量子点对. 图 2 是这 4 种样品的结构示意图. 文献[4]中有类似的 TEM 照片分析.

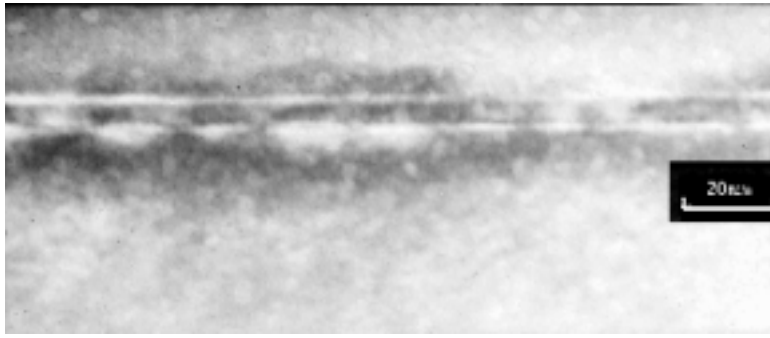


图 1 $1.5/2.5$ 结构的 TEM 截面象

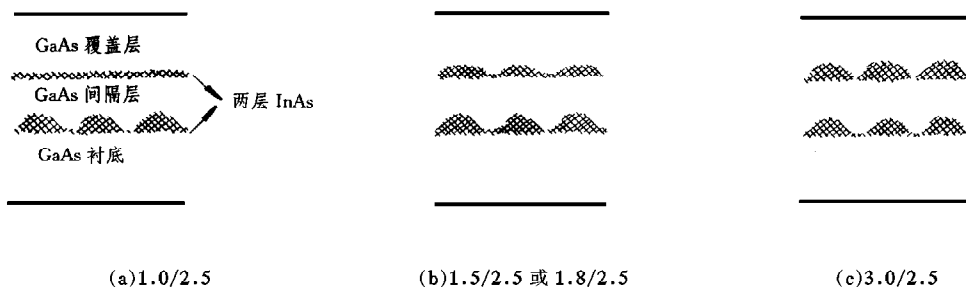


图 2 4 种样品的结构示意图

1.0 ML 的 InAs 超薄层量子阱比 2.5 ML 的 InAs 量子点 PL 峰能量位置高出 200 meV ^[9]. 在 $1.5/2.5$, $1.8/2.5$ 和 $3.0/2.5$ 结构中, 尽管上下两层量子点的底部横向尺寸一致, 但高度差别很大, 简单的理论计算表明, 由于纵向量子限制程度不同, 基态电子和空穴跃迁发光能量也有较大差别. 但是如图 3 所示, 这 4 种结构的低温 PL 谱都只有一个与 InAs 相关的发光峰. 这是因为 GaAs 间隔层较薄, 只有 6.5 nm , 两层 InAs 之间存在强烈的电子耦合. 我们曾经研究了单层 InAs 结构, 由于平面内量子点的耦合引起的 PL 谱的变化^[10]. 在 $1.0/2.5$ 结构中超薄层量子阱和量子点中的激子波函数、其他三种结构中上下两层大小量子点的激子波函数都发生较大的交叠. 高能级的载流子向低能级转移, 导致 $1.0/2.5$, $1.5/2.5$ 和 $1.8/2.5$ 结构的 PL 谱中, 只有与 2.5 ML 的 InAs 量子点相关的发光峰, 所以这三种结构的发光峰能量位置很接近, 都在 1.22 eV 附近. $3.0/2.5$ 结构的发光峰位是 1.18 eV , 与 3.0 ML InAs 量子点直接相关. 自组织生长的量子点尺寸分布不均匀, 使得 4 条发光谱线宽都较大.

还有一点值得提出的是, 生长单层 InAs 结构, 一旦开始三维成岛生长, 继续淀积 InAs 材料, 量子点的尺寸变化不大, 而是面密度增大^[11]. 基于量子点垂直成串排列机制生长的多层 InAs 结构, 能够保持层与层之间量子点面密度变化不大, 通过控制 InAs 材料

的覆盖度,可以在一定范围内控制量子点的尺寸.这就为进一步研究自组织生长量子点的物理特性提供了新的途径.

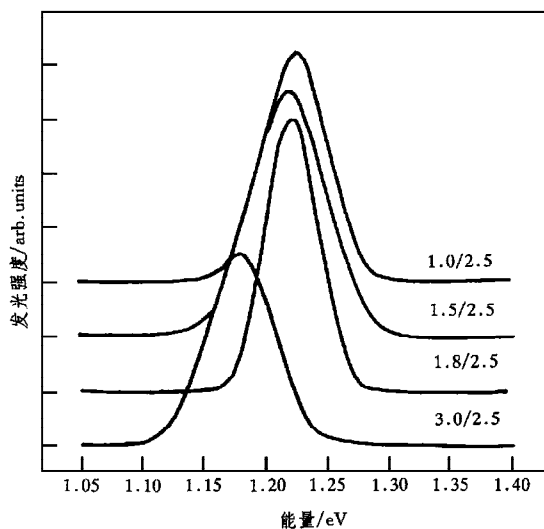


图3 4种样品结构的低温 PL 谱

4 结 论

利用 PL 技术和 TEM 分析,系统研究了 InAs 量子点垂直生长机制.当 GaAs 间隔层不很厚时,随后淀积的 InAs 材料倾向于淀积在下层量子点的正上方,从而形成量子点垂直成对排列,也导致上层 InAs 由二维生长向三维成岛生长转变的临界厚度变小.由于 InAs 层之间存在强烈的电子耦合,高能级的载流子向低能级转移,PL 谱测量只能观察到一个与 InAs 量子点相关的发光峰.

- [1] J.M.Moison, F.Houzay, F.Barthe *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994),196.
- [2] J.Y.Marzin, J.M.Gerard, A.Izrael *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **73**(1994),716.
- [3] Q.H.Xie, P.Chen, A.Madhukar, *Appl. Phys. Lett.*, **65**(1994),2051.
- [4] J.Y.Yao, T.G.Anderson, G.L.Dunlop, *J. Appl. Phys.*, **69**(1991),2224.
- [5] Q.H.Xie, A.Madhukar, P.Chen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **75**(1995),2542.
- [6] G.S.Solomon, J.A.Trezza, A.F.Marshall *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996),952.
- [7] 王志明、邓元明、封松林等, *半导体学报*, **18**(1997),550.
- [8] J.Tersoff, C.Teichert, M.G.Lagally, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996),1675.
- [9] 杨小平、张 伟、陈宗圭等, *半导体学报*, **17**(1996),869.
- [10] Z.Y.Xu, Z.D.Lu, X.P.Yang *et al.*, *Phys. Rev.*, **B54**(1996),11528.
- [11] Y.Sugiyama, Y.Nakata, K.Imamura *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**(1996),1320.

STUDY OF VERTICALLY ALIGNING GROWTH OF SELF-ASSEMBLED InAs/GaAs QUANTUM DOTS

WANG ZHI-MING FENG SONG-LIN 李 ZHEN-DONG YANG XIAO-PING

CHEN ZONG-GUI SONG CHUN-YING XU ZHONG-YING ZHENG HOU-ZHI

(*State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,*

Academia Sinica, Beijing 100083)

WANG FENG-LIAN HAN PAI-DE DUAN XIAO-FENG

(*Laboratory of Electron Microscopy, Academia Sinica, Beijing 100080*)

(Received 1 April 1997)

ABSTRACT

We have grown two-layer InAs structures spaced by 6.5 nm GaAs. Self-assembled InAs quantum dots (QDs) occur in the first layer with 2.5 ML InAs coverage due to S-K growth mode. The second layer changes from 2D to 3D growth when the thickness of InAs is 1.5 ML, which is obviously smaller than the critical thickness (1.7 ML) of single InAs layer structures. Transmission electron microscopy shows that two-layer QDs with different heights have been obtained according to the mechanism of a vertically correlated arrangement. But only one photoluminescence peak related with large QD ensemble has been observed as a result of strong electronic coupling in InAs QD pairs.

PACC: 6865; 6116D; 7855