

# GaAs (311) A 衬底上自组装 InAs 量子点的 结构和光学特性\*

姜卫红 许怀哲 龚 谦 徐 波 王吉政 周 伟 梁基本 王占国

(中国科学院半导体研究所半导体材料开放研究实验室, 北京 100083)

(1998 年 11 月 26 日收到)

报道了 GaAs (311) A 衬底上的自组装 InAs 量子点的结构和光学特性. 原子力显微镜结果表明 (311) A GaAs 衬底上的 InAs 量子点呈箭头状, 箭头方向沿  $\bar{2}33$  方向. 实验发现, 量子点的光致发光 (PL) 强度、峰位、半高宽都与测量温度密切相关. 随着温度的升高, 量子点的发光强度减小, 峰位快速红移, 半高宽单调下降. 可以认为这是由于载流子先被热激活到浸润层势垒后再被俘获到能量较低的量子点中进行复合造成的, 这一模型圆满解释了我们的实验结果.

PACC: 7865; 7855; 8115H

## 1 引 言

近几年来, 对自组装量子点结构的制备及特性的研究引起了人们的极大关注. 由于量子点波函数的局域化效应使得激子的振荡强度提高, 而且量子点具有  $\delta$  函数的分布态密度, 这使得量子点结构在激光器、发光二极管、探测器等光电子器件方面具有诱人的应用前景<sup>[1-3]</sup>. 理论预言, 量子点激光器与量子阱激光器相比, 将具有更低的阈值电流, 更高的微分增益和特征温度. 利用大应变异质结生长过程中的共度或岛效应 (Stranski-Krastanov 生长模式) 自组装量子点是制备器件级量子点结构的一种很有希望的方法<sup>[4,5]</sup>. 该生长模式初始阶段为层状生长, 当层厚度大于临界厚度时, 由于晶格失配引起的应变, 沉积原子开始在表面成核形成三维岛. 由于该方法可直接制备无缺陷、无损伤的量子点结构, 因此已被广泛采用, 其涉及的材料体系包括 In(Ga)As/GaAs, In(Ga)As/InP, Ge/Si 等. 为了使量子点器件达到实用化水平, 研究量子点的光学性质很有必要. 目前这方面的工作已有一些报道<sup>[6-13]</sup>, 主要集中在量子点发光的温度特性的研究, 但对一些现象的认识还存在差异, 而且大多数研究都是针对在 (100) 衬底上生长的量子点结构. 而衬底取向会影响到沉积原子的吸附、迁移、脱附等动力学过程并会影响应变的弛豫路径, 这对量子点的结构和光学性质都将产生很大影响<sup>[14,15]</sup>, 所以对高指数面上生长量子点结构的光学特性的研究是很有意义的. 本文报道了 GaAs (311) A 衬底上生长的 InAs 量子点的结构并主要研究了量子点的发光温度特性及光谱与激发功率之间的关系.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 69736010) 资助的课题.

## 2 实 验

实验所用样品由 Riber 32p 分子束外延 (MBE) 设备生长, 样品的基本结构为: 以 (311)A 半绝缘 GaAs 作为衬底, 在 580 °C 温度下先生长 0.2  $\mu\text{m}$  的 GaAs 缓冲层, 接着沉积 10 个周期的 GaAs/InGaAs 超晶格, 再生长 0.2  $\mu\text{m}$  的 GaAs 层. 将衬底温度降到 480 °C 后, 生长 InAs 量子点层, 在同样温度下先生长 5 nm 的 GaAs, 以防止 In 分凝, 再将温度升高到 580 °C 后分别沉积 2 nm 的 GaAs 和 20 nm 的 AlGaAs, 最后生长 5 nm 的 GaAs 以保护表面. 为了获得平整的界面, 可在沉积 InAs 层前后分别停顿 3—5 s. 量子点的生成由高能电子衍射仪 (RHEED) 原位监控, 由原子力显微镜 (AFM) 测试证实, AFM 测试在常温、常压下进行. AFM 样品的生长条件同上, 只是未加盖帽层. 光学测量在 IFS 120HR 傅里叶变换红外光谱仪上进行, 采用氩离子 514.5 nm 线激发, 低温  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  探测器探测, 样品置于变温装置中, 可在 15—300 K 范围内精确控制温度.

## 3 结果与讨论

图 1(a) 给出了 GaAs (311)A 衬底上 InAs 量子点的 AFM 图象, 可见量子点的形状不是一般报道的 (100) 衬底上的金字塔形<sup>[2-5]</sup>, 而是呈箭头状, 箭头方向沿  $[\bar{2}33]$  方向, 这与 (311)A 折皱状的表面有关<sup>[16]</sup>. 图 1(b) 给出了对量子点尺寸的统计结果, 可以看到, (311)A 面上量子点的尺寸具有多模分布, 这会增加该样品的光致发光 (PL) 谱的结构.

图 2(a) 是在不同激发功率 (5—200 mW) 下 GaAs (311)A 衬底上 InAs 量子点的低温 (15 K) 光致发光谱. 在所有光谱中, 与 InAs 相关的光谱 (峰值在 1.2 eV 左右) 很宽, 这是由于量子点尺寸分布不均匀造成的. 峰值在 1.515 eV 左右的光谱是 GaAs 带边发光峰. 量子点的积分发光强度远大于与 GaAs 相关的辐射, 这种差异随测量温度的升高而增大. 量子点高效率的复合发光表明, InAs 激子在量子点中处于较好的局域状态, 具有较大的振子强度, 也表明声子瓶颈效应不起很大作用<sup>[17]</sup>. 另外, 我们基本没有观察到浸润层发光, 这很可能是因为浸润层中光激发产生的载流子很快转移到临近的 InAs 量子点并在那儿复合的缘故.

我们还观察到, 所有的光谱都是非高斯型的不对称结构, 有两个峰, 可拟合成两条高斯曲线 (较低能端那个峰称为峰 1 即 peak1, 较高能端那个峰称为峰 2 即 peak2), 这与样品中量子点尺寸的多模分布相一致. 这两条曲线随激发功率的提高很稳定. 峰 2 来自量子点的激发态的可能性可以被排除, 因 PL 谱积分强度与激发功率呈线性依赖关系 (见图 2(b)). 这种线性依赖关系也表明量子点界面处的缺陷密度较低<sup>[6]</sup>.

量子点的 PL 谱强度、峰位和半高宽 (FWHM) 都强烈地依赖于测量温度. 图 3 表示激发功率为 100 mW 时量子点的 PL 光谱随温度的变化情况. 为了更好地说明量子点 PL 谱的温度特性, 在图 4 中画出了拟合的两条曲线的峰位随温度的变化情况. 从图 4 中可看到随温度变化存在两个不同区域, 当温度低于 77 K 时, 两个峰位基本不变; 当温度从 77 K 增加到 200 K 时, 就观察到红移, 红移速率与半高宽 (FWHM) 大致成正比, 即 FWHM 越

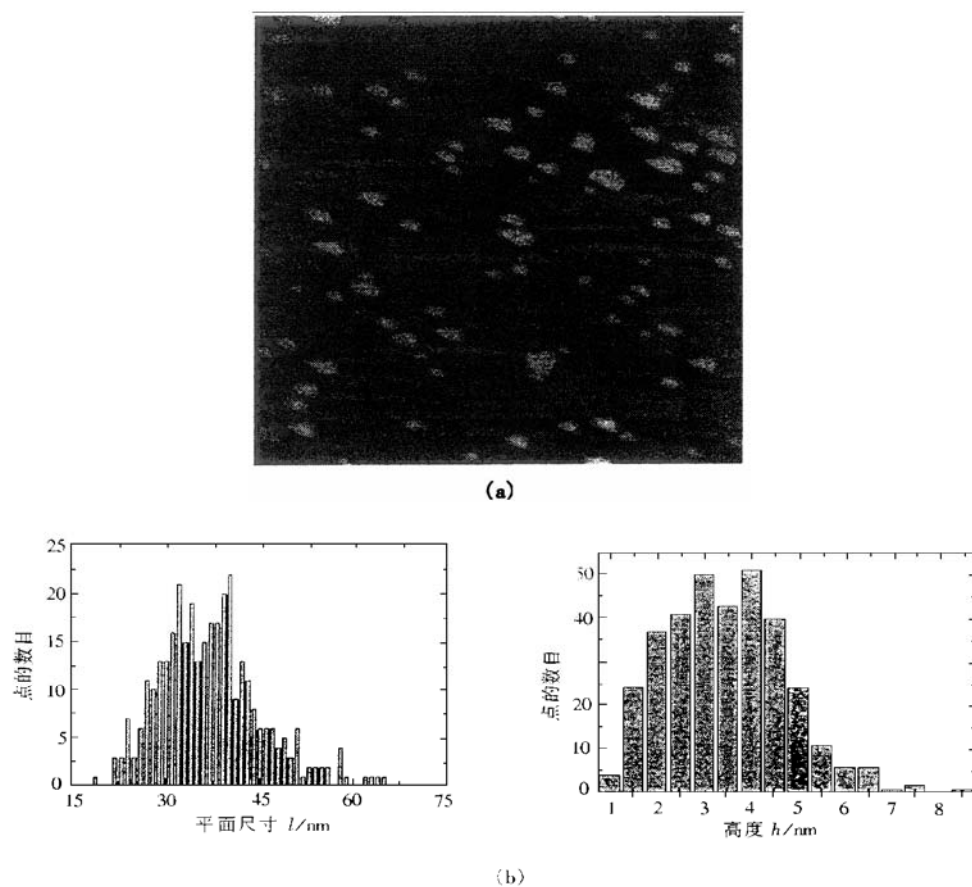


图1 (a)为(311)A衬底上InAs量子点AFM( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ )图象, (b)为(311)A衬底上InAs量子点的尺寸统计结果

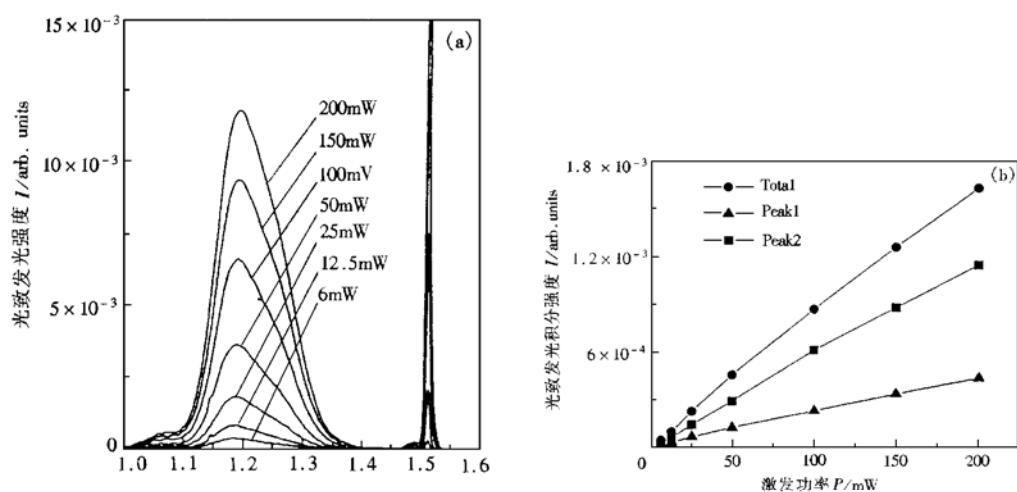


图2 (a)为不同激发功率下量子点的低温(15 K)光致发光光谱; (b)为光致发光谱(Total)及其两条拟合曲线(Peak 1, Peak 2)波长积分强度  $I$  随激发功率  $P$  的变化

大, 红移速率越快. 曲线 2 的半高宽大于曲线 1, 其红移速率约为 InAs 带边能隙变化(虚线所示)的 3 倍, 曲线 1 峰位变化在该温度范围内仅为 InAs 带隙变化的两倍. 结果高能端红移量为 65 meV, 而低能端仅为 35 meV. 这种反常的温度依赖关系是自组装量子点的一个典型特征, 仅仅用温度引起带隙变化是无法解释的, 因峰值能量比应变 InAs 带隙按 Varshni<sup>[18]</sup>关系随温度变化下降快得多.

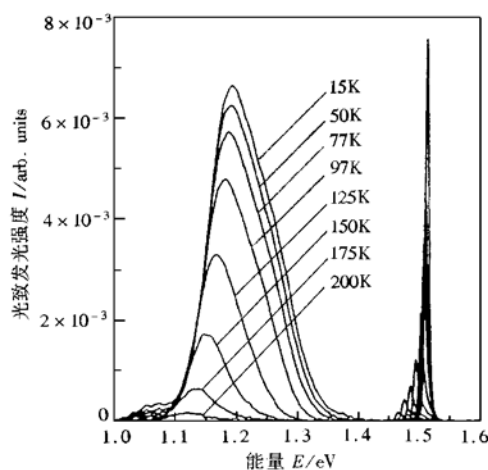


图 3 不同温度下 InAs 量子点结构的光致发光光谱 (PL 激光功率为 100 mW)

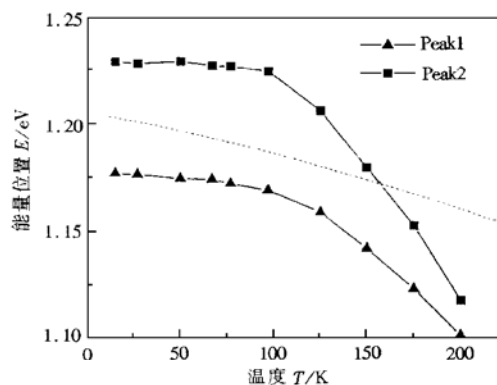


图 4 两条拟合曲线的峰值能量  $E$  随温度  $T$  的变化  
Peak 2 曲线向上平移了 15 meV; 虚线表示 InAs 体材料带隙随温度的变化

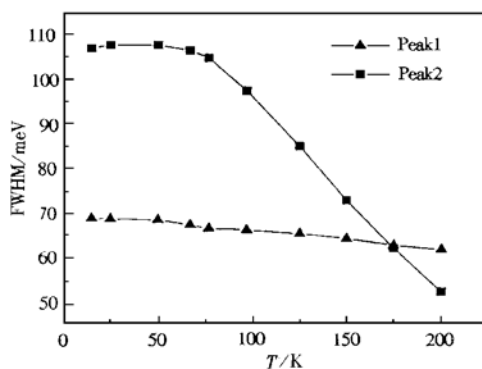


图 5 两条拟合曲线的半高宽 (FWHM) 随温度的变化

图 5 画出了两条拟合曲线的半高宽随温度的变化. 低于 77 K 时, FWHM 随温度升高几乎不变或略有增加, 但在  $T$  从 77 K 增加到 200 K 的范围内, FWHM 单调下降. 两条曲线的下降速率是不同的, 这种差别主要与量子点的尺寸均匀性有关. 对于具有较宽 FWHM 的曲线 2, FWHM 下降速率快得多, 但具有较小 FWHM 的曲线 1 的半高宽随温度升高下降缓慢. FWHM 在高温区的变化趋势与以前报道结果不同, 一般认为随着温度的升高, 电声子散射和载流子热布居作用加强, 光谱会展宽, 而这里光谱半高宽在高温区仍随温度升高而减小, 我们认为这是由于在

我们的样品中量子点尺寸不均匀, 造成较宽的 PL 谱, 结果随温度升高热载流子弛豫造成光谱变窄的趋势超过由于电声子散射和载流子热布居而造成的光谱展宽效应. Lubyshv 等<sup>[7]</sup>提出半高宽的降低主要是由于随温度的升高局域在小岛上的激子热离化然后隧穿转移到大量子点中造成的, 然而在我们的样品中由于量子点之间的距离很大(在 30—100

nm 的范围), 这种隧穿过程可以忽略, 所以也不能用该观点解释我们的结果。

图 6 给出了两条拟合曲线的波长积分强度随温度的变化, 也发现有两个不同的变化区域. 在 15–17 K 之间, 积分强度基本不变, 当高于 77 K 时则迅速下降. 在中间温度区可看到高能端的载流子向低能端转移(即载流子从小点向大点转移), 而总的发光强度几乎不变, 结果大量子点相对来讲对光谱贡献逐渐增大, 于是在约 77 K 处两条曲线交叉。

我们从高温区的积分强度随温度的变化可得到相应的载流子热激活能, 温度较高时 PL 谱会出现热淬灭现象(这主要与量子点中的电子空穴对逃逸到相应的热势垒这一过程有关), 此时荧光强度可表示为  $I = C \exp(E_a/kT)$ , 由此我们得到曲线 1 和 2 对应的热激活能( $E_a$ )分别为 110 和 100 meV. 上述数值对应于量子点的发光峰与浸润层发光能量之差 112 和 97 meV<sup>[8]</sup>. 我们的结果表明, 浸润层势垒是 InAs 载流子的热势垒, 也就是说热激活激子在量子点之间的转移涉及了使载流子转移到非局域的浸润层这一过程. 这样我们

就可以提出一模型来解释我们的实验结果: 随着温度的升高, 载流子会逐渐被热激活到浸润层, 接着在复合之前又被低能态的量子点俘获. 可认为浸润层能提供一均匀的势垒, 这样由于点的尺寸不同, 热激活能也各不相同. 具有浅势能的激子很容易被激活到浸润层势垒并被具有低能态的量子点俘获, 结果 PL 谱中高能部分比低能部分衰减快得多, 造成峰值迅速红移和半高宽的降低, 因此在低(高)温下, PL 谱分别主要由小(大)量子点中的载流子复合决定. 由于半高宽可作为量子点尺寸分布的一个衡量标准, 因此具有较大半高宽的样品的 PL 谱随温度升高有较快的红移。

## 4 结 论

我们在 GaAs (311) A 衬底上得到了具有独特的箭头状的量子点, 箭头沿 $\bar{[233]}$ 方向, 这是由(311)A 表面结构决定的. PL 谱与激发功率的线性依赖关系表明样品的结构比较完整. 高温区 PL 谱的淬灭与载流子逃逸量子点有关. 随温度升高 PL 峰位快速红移, 半高宽单调下降, 我们认为这是由于载流子先被热激活到浸润层势垒, 接着又被能量较低的量子点俘获造成的。

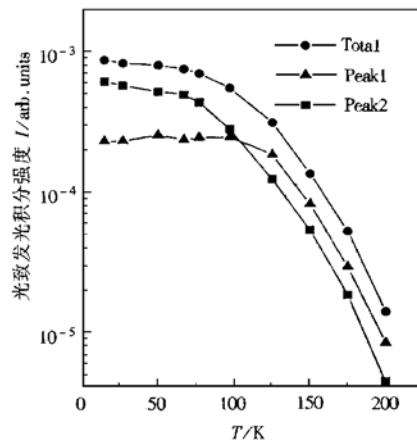


图 6 光致发光谱 (Total) 及其两条拟合曲线 (Peak 1, Peak 2) 波长积分强度  $I$  随温度  $T$  的变化

- [1] K. Y. Cheng *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **60**(1992), 2892.
- [2] J.-Y. Marzin, J.-M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.*, **73**(1994), 716.
- [3] M. Henini, *III Vs Review*, **10**(1997), 25.
- [4] D. Leonard, S. Fafard, K. Pond, Y. H. Zhang, J. L. Merz and P. M. Petroff, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B12**(1994), 2516.
- [5] D. I. Lubyshv, P. P. Gonzalez Borrero, E. Marega, Jr., E. Petiprez and P. Basmaji, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B14**

- (1996), 2212.
- [6] G. Wang, S. Fafard, D. Leonard, J. E. Bowers, J. L. Merz and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994), 2815.
  - [7] D. I. Lubyshev, P. P. Gonzalez-Borrero, E. Marega, Jr., E. Petiprez, N. La Scala, Jr. and P. Basmaji, *Appl. Phys. Lett.*, **68**(1996), 205.
  - [8] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, X. P. Yang, Z. L. Yuan, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang and L. L. Chang, *Phys. Rev.*, **B54**(1996), 11528.
  - [9] L. Brusaferrri, S. Sanguinetti, E. Grilli, M. Guzzi, A. Bignazzi, F. Bogani, L. Carraresi, M. Colocci, A. Bosacchi, P. Frigeri and S. Franchi, *Appl. Phys. Lett.*, **69**(1996), 3354.
  - [10] Y. T. Dai, J. C. Fan, Y. F. Chen, R. M. Lin, S. C. Lee and H. H. Lin, *J. Appl. Phys.*, **82**(1997), 4489.
  - [11] S. Fafard, S. Raymond, G. Wang, R. Leon, D. Leonard, S. Charbonneau, J. L. Merz, P. M. Petroff and J. E. Bowers, *Surf. Science*, **361/362**(1996), 778.
  - [12] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, Z. L. Yuan, X. P. Yang, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang and L. L. Chang, *Superlatt. Microstruct.*, **23**(1998), 381.
  - [13] D. Leonard, S. Fafard, K. Pond, Y. H. Zhang, J. L. Merz, and P. M. Petroff, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B12**(1994), 2516.
  - [14] P. P. Gonzalez-Borrero, E. Marega, Jr., D. I. Lubyshev, E. Petitprez, P. Basmaji, *J. Crystal. Growth*, **175/176**(1997), 765.
  - [15] K. Nishi, R. Mirin, D. Leonard, G. Medeiros-Riberiro, P., M. Petroff and A. C. Gossard, *J. Appl. Phys.*, **80**(1996), 3466.
  - [16] M. Henini, S. Sanguinetti, S. C. Fortina, E. Grilli, M. Guzzi, G. Panzarini, L. C. Andreani, M. D. Upword, P. Moriarty, P. H. Beton and L. Eaves, *Phys. Rev.*, **B57**(1998), R6815.
  - [17] G. Bacher, C. Hartmann, H. Schweizer, F. Held, G. Maher and H. Nickel, *Phys. Rev.*, **B47**(1993), 9545.
  - [18] Y. P. Varshni, *Physica (Amsterdam)*, **34**(1967), 149.

## STRUCTURAL AND OPTICAL PROPERTIES OF SELF-ASSEMBLED InAs QUANTUM DOTS GROWN ON GaAs (311)A SUBSTRATE\*

JIANG WEFHONG XU HUAIZHE GONG QIAN XU BO

WANG JIZHENG ZHOU WEI LIANG JIBEN WANG ZHAN-GUO

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

(Received 26 November 1998)

### ABSTRACT

We report the structural and optical characteristics of InAs quantum dots (QDs) grown on GaAs (311)A substrates. Atomic force microscopic result shows that QDs on (311)A surface exhibit a nonconventional, faceted, arrowhead-like shapes aligned in the [233] direction. The photoluminescence (PL) intensity, peak position and the full width at half maximum (FWHM) are all closely related to the measurement temperature. The fast redshift of PL energy and monotonous decrease of linewidth with increasing temperature were observed and explained by carriers being thermally activated to the barrier produced by the wetting layer and then being retrapped and recombined in energetically lower-lying QDs states. This model explains our results well.

**PACC:** 7865; 7855; 8115H

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 69736010).