

GaSb/GaAs 复合应力缓冲层上 自组装 InAs 量子点的生长

蒋中伟 王文新[†] 高汉超 李 辉 何 涛 杨成良 陈 弘 周均铭

(北京凝聚态物理国家实验室,中国科学院物理研究所,北京 100190)

(2008 年 5 月 21 日收到,2008 年 7 月 5 日收到修改稿)

研究了 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层上自组装生长的 InAs 量子点.在 2 ML GaSb/1ML GaAs 复合应力缓冲层上获得了高密度的、沿 [100] 方向择优分布量子点.随着复合应力缓冲层中 GaAs 层厚度的不同,量子点的密度可以在 $1.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 和 $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 进行调控.适当增加 GaAs 层的厚度至 5 ML,量子点的发光波长红移了约 25 nm,室温下 PL 光谱波长接近 1300 nm.

关键词:自组装量子点,分子束外延,III-V 族化合物半导体

PACC:7155F,8240D,6322,7855E

1. 引 言

近十年来,对于自组装量子点结构的制备及其特性的研究一直受到人们的极大关注.量子点具有 δ 函数的分布态密度,并且波函数的局域化效应使得激子的振荡强度提高,这使得量子点结构在激光器、发光二极管、红外探测器等光电子器件方面具有广泛的应用前景^[1-3].高质量量子点材料的制备是量子点光电器件应用的基础,如何实现对无缺陷量子点的形状、尺寸、密度和空间分布等的控制,一直是人们关注和研究的热点.InAs 量子点由于其优越的光电性能,尤其受到人们的关注.InAs 量子点利用大应变异质结生长过程中的 Stranski-Krastanow(SK)生长模式,通过应变自组装的方式在晶格失配的 GaAs 衬底上制备.通过改变 InAs 量子点的生长条件(包括生长温度、生长速率和 V/III 比等),可以显著影响量子点的尺寸、形状和密度等,从而影响量子点的光学性质^[4-6].

有效的控制量子点的位置和排列对于量子点的应用有很重要的意义.量子点的成核位置与其底层材料的表面应力有很大关系,在多层量子点超晶格结构中,量子点沿生长方向呈现垂直对准,从而可以获得有序排列的量子点结构^[7].人们也在高指数的

GaAs 衬底尝试获得有序的量子点结构^[8].然而,利用 SK 生长模式在传统的 GaAs(100)衬底上生长单层量子点结构中,量子点通常是随机分布的,很难获得有序的量子点.近年来,人们采用 InGaAs 或 InAlAs 应变缓冲层上淀积 InAs 量子点的方法,用于延长量子点的发光波长.文献 [6,9]报道了在 GaAs/InGaAs/GaAs 复合应力缓冲层上淀积 InAs 量子点,可以有效的提高了量子点的密度,并且获得了具有一维有序排列的 InAs 量子点链,但应力的积累作用也导致了量子点光致发光(PL)强度的恶化.在 GaSb 应力缓冲层上也成功制备了高密度 InAs 量子点,并且 GaSb 缓冲层的引入压制了量子点间的合并,可以提高量子点的均匀性^[10,11].而基于 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层的 InAs 量子点生长很少有文献报道,由于 Sb 的表面活化作用有望获得更好的量子点发光性能.本文利用原子力显微镜(AFM)和 PL 方法,研究了 GaAs/GaSb 复合应力缓冲层对自组装 InAs 量子点的表面形貌和发光特性的影响,比较了不同 GaAs 厚度对量子点的分布和 PL 发光波长的影响.

2. 实 验

利用 VG V80H 固源分子束外延设备在 GaAs(100)衬底上生长 InAs 量子点.衬底在 As₂ 保护下进

[†] E-mail: wxwang@aphy.iphy.ac.cn

行脱膜后,在 580°C 下生长 500 nm 的 GaAs 缓冲层,然后将衬底温度降至 510°C ,先生长 2 ML GaSb 和 x ($x = 0, 1, 2, 5$) ML GaAs,接着淀积 2.7 ML InAs 量子

点,中断 30 s 后,在 InAs 量子点上采用迁移增强外延(migration enhanced epitaxy, MEE)的方法生长 50 ML GaAs 覆盖层.最后衬底升高到 580°C ,生长 40 nm

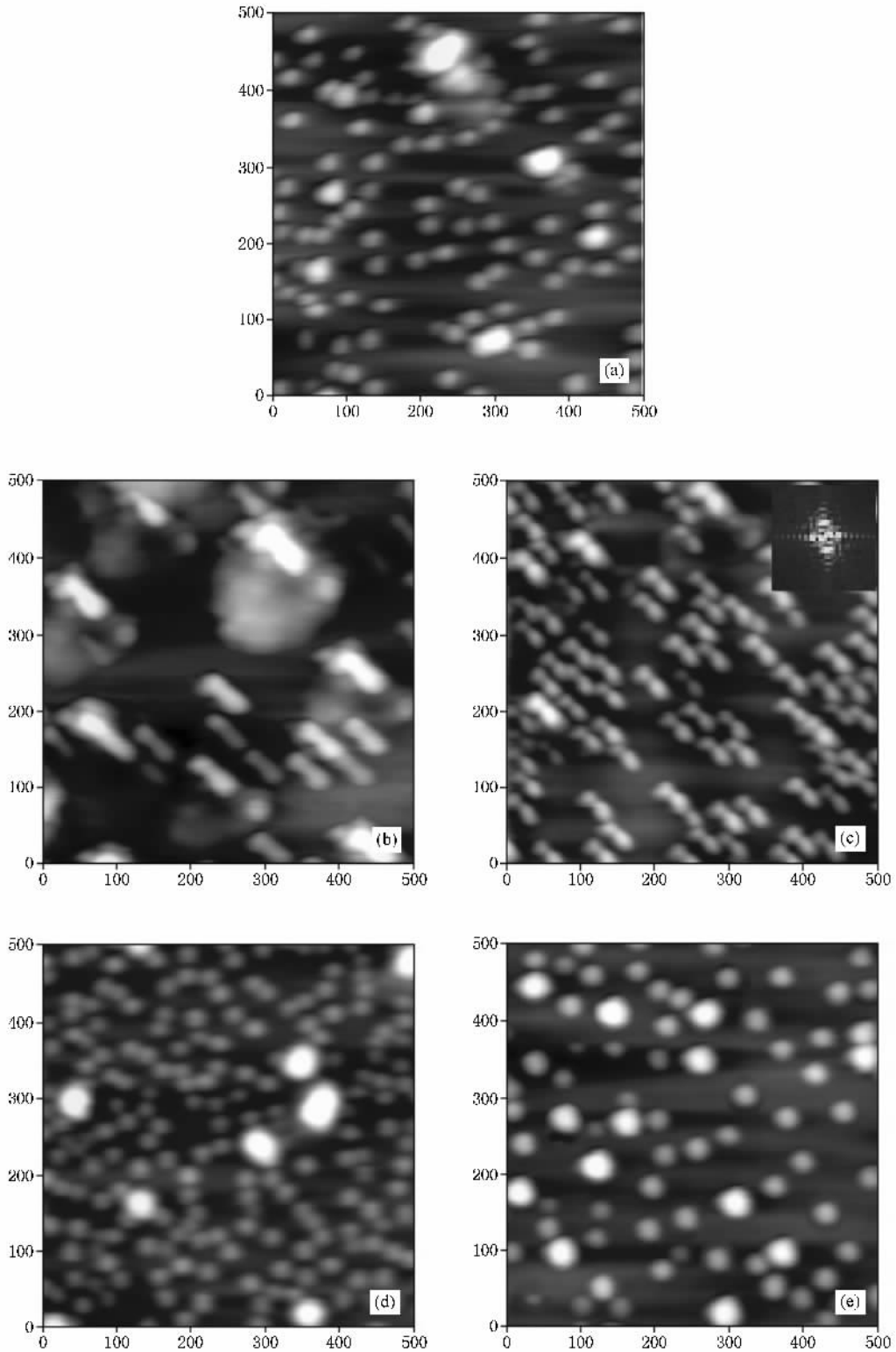


图 1 不同缓冲层上 InAs 量子点 $500\text{ nm} \times 500\text{ nm}$ 原子力显微镜图 (a) GaAs (b) 2 ML GaSb (c) 2 ML GaSb/ 1 ML GaAs (d) 2 ML GaSb/ 2 ML GaAs (e) 2 ML GaSb/ 5 ML GaAs

GaAs 盖层. 在相同条件下生长了未盖帽的 InAs 量子点, 以观察量子点的形貌和密度. InAs 量子点的生长速率为 0.015 ML/s. 量子点生长时, 利用反射式高能电子衍射 (RHEED) 进行原位监测. 原子力显微镜测量采用接触模式. 光致发光采用 632.8 nm 的 He-Ne 激光器作为光源, 用电子致冷的 InGaAs 探测器进行测量.

3. 结果与讨论

图 1(a) 为直接在 GaAs 缓冲层上生长的 InAs 量子点样品的 $500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$ 原子力显微镜图. 量子点的密度约为 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 高度约为 7 nm, 宽度约为 20 nm, 量子点在 GaAs 缓冲层上的分布是随机的.

当 InAs 量子点直接在 2 ML GaSb 层上成长时, 原子力显微镜图表明缓冲层表面极不平整, 量子点的密度降低为 $1.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 高度约为 7 nm, 宽度约为 35 nm, 如图 1(b) 所示. 当在 GaAs 缓冲层表面存在 Sb 原子, 可以获得的更高密度的量子点, 这是因为 Sb 的引入可以在表面形成类似二维量子线的结构^[10,12]. 在这样的结构中, 量子线周围大量存在的台阶, 可以为 InAs 量子点生长时的形核中心, 从而提高量子点的密度. 但在我们的实验中, 量子点的密度却由于 Sb 的引入而急剧下降, 这主要是因为发生了量子点的合并造成的. 在生长量子点前引入的 2 ML GaSb 缓冲层, 在外延生长时虽然可以通过形变保持二维层状生长, 但也同时在外延层中引入了应力. GaSb ($a = 6.09 \text{ \AA}$) 和 InAs ($a = 6.05 \text{ \AA}$) 的晶格常数相近, 继续在应变的 GaSb 层上生长 InAs 量子点, 由于应力积累, 使得在 InAs 沉积的初期就会超越其临界厚度 ($\sim 1.7 \text{ ML}$), 从而较早的开始岛状生长. 当 InAs 量子点达到一定的某一临界尺寸后, 继续生长, 较大的量子点会吞掉周围的小岛^[13,14], 导致形成了具有更大尺寸的岛, 量子点的密度也因此降低. 同时这种应力积累也会导致量子点中形成缺陷, 缺陷的存在会在电子-空穴复合过程中形成损耗通道, 使得其 PL 强度较低, 后文的 PL 测量也证明了这一点.

同时注意到, 直接在 GaSb 层上生长 InAs 量子点时, 量子点的分布不是随机的, 而是沿 [100] 方向有序分布的. 量子点分布形式的差异, 表明采用 GaSb 缓冲层对于 InAs 量子点的生长有着很大的影响. 已有研究表明在 GaAsSb 层上生长 InAs 量子点

时, 由于 GaAsSb 层中应力的存在, 会很不稳定, 容易发生 Sb 的脱附, 导致在 GaAsSb 缓冲层中存在纳米尺寸的空洞或凹槽^[12]. Sb 的脱附在形成纳米空洞的同时, 在空洞周围也形成了含有 Sb 的一些较小尺寸的岛, 这些岛会成为三维岛状生长时的形核中心, 这样也导致了量子点沿空洞边缘择优分布, 从而沿台阶边缘形成了 [100] 方向一维的量子点链.

文献 15 报道的用原子力显微镜研究的不同厚度 InAs 量子点在 10 ML GaAsSb/2 ML GaAs 复合应力缓冲层的生长过程, 清楚的解释量子点沿 [100] 方向分布的过程. 沉积 1.45 ML InAs 后, 沿 $[1\bar{1}0]$ 方向出现一定数量的小岛, 同时出现了一些 [100] 方向的台阶. 这些沿 [100] 方向分布台阶的出现可能与 GaSb 层引入的应力有关, 具体的机理还不是很清楚. 当 InAs 厚度超过 1.5 ML 时, 生长模式发生了二维生长到三维生长的转变. InAs 达到 1.6 ML 后, 量子点在这些台阶的边缘出现, 同时出现了纳米尺度的空洞或凹槽, 大多数的量子点出现在空洞附近, 并且沿 [100] 方向分布.

在 GaSb 层上引入 GaAs 薄层, 如图 1(c) 和图 1(d) 所示, 1 ML GaAs 的引入, 导致量子点的尺寸变小、密度增加. 量子点密度随薄层 GaAs 厚度的增加而降低. 当 GaAs 层较薄时 ($\sim 1 \text{ ML}$ 时), InAs 量子点仍然呈现沿 [100] 方向的有序分布, 如图 1(c) 所示. 随着 GaAs 层厚度的增加, GaSb 层引入的应力被 GaAs 层释放, InAs 量子点呈现随机分布. 这种量子点密度的变化在 InGaAs/GaAs 复合应力缓冲层中同样被观察到, 主要是由于量子点优先在应变层的应力释放区成核.

这些结果可以用不同厚度 GaAs 晶格常数的变化来解释. 因为不同化合物半导体间晶格常数 (a) 存在差异, InAs ($a = 6.05 \text{ \AA}$) 在 GaAs ($a = 5.64 \text{ \AA}$) 上生长时会产生压应变; 相反, 当 GaAs 在 GaSb ($a = 6.09 \text{ \AA}$) 生长时则会产生张应变. 较薄的 GaAs 层受张应力影响大, 膨胀较多, 而较厚的 GaAs 层膨胀较少, 更多的补偿了由 GaSb 缓冲层引入的应变. 结果, 薄的 GaAs 层有较大的晶格尺寸, 和 InAs 更加匹配. 量子点和缓冲层之间的应力引起的相互作用和晶格失配度的平方成正比^[16], 这种相互作用会随着失配的减小而迅速减小, 从而导致量子点密度的增加.

在 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层生长时, 不仅要考虑薄层 GaAs 引入对于应力的补偿, 同时也要考虑

到上文所述的 Sb 引入对于所形成的二维量子线结构,它能给 InAs 量子点提供了更多的成核中心作用.采用 GaAs/GaSb 复合应力缓冲层,当薄层 GaAs 只有一单原子层厚度,由于太薄,不足以覆盖整个 GaSb 表面,同时在 GaSb 生长时,很容易发生 Sb 原子的表面分凝现象,导致 InAs 量子点生长时,缓冲层表面仍然存在着部分 Sb 原子^[15].Sb 的存在 GaAs 表面引入一系列类似二维纳米线结构,这些可以提供大量的台阶位置,而量子点优先在这些地方成核.对于在 2 ML GaSb/1 ML GaAs 上生长的样品,量子点的密度约为 $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$,量子点的分布也不是随机的,量子点沿 100 方向排布.图 1(c)的插图为 AFM 图像的二维傅里叶变换,也揭示了量子点在 100 方向的二维排列^[17].

进一步增加第二层 GaAs 薄膜的厚度,由 GaAs 缓冲层所引入的应力被逐渐释放,量子点的形貌和密度和直接在 GaAs 缓冲层上生长趋于一致.

图 2 给出了 2 ML GaSb 和 x ML GaAs 复合应力缓冲层上 InAs 量子点的高宽比随 GaAs 厚度 x 的变化.由于薄层 GaAs 的引入,量子点的高宽比有所增加.这一结果也导致了量子点发光峰位的不同,后文的 PL 谱测量也证明了这一点.

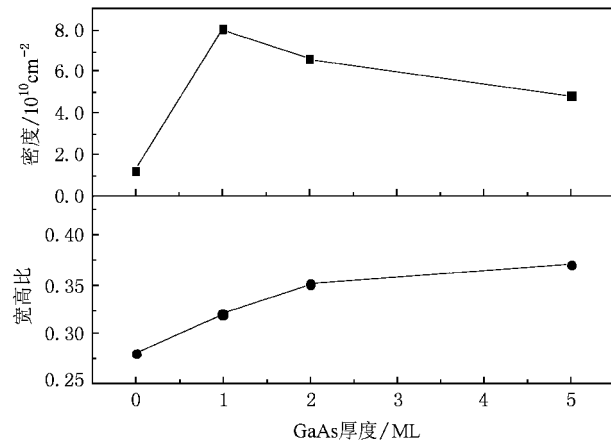


图 2 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层中 GaAs 厚度对 InAs 量子点密度和宽高比的影响

图 3 为不同缓冲层生长的 InAs 量子点的低温 (20 K) PL 光谱图,在 2 ML GaSb/1 ML GaAs 复合应力缓冲层上生长的有序排列量子点样品,高的量子点密度获得了强的 PL 发光强度.PL 峰的波长在 20 K 时为 1120 nm,这比直接在 GaAs 缓冲层上生长的量子点波长要短些,蓝移可以归因于所获得量子点具

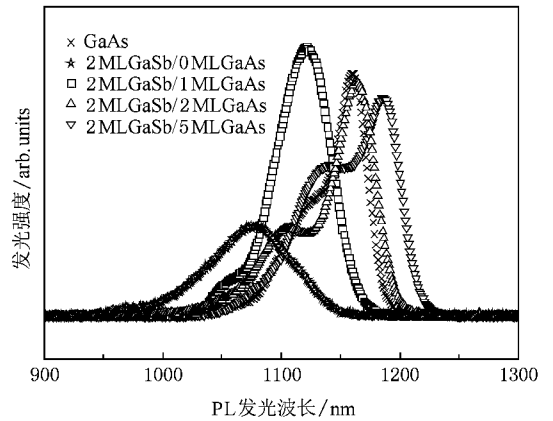


图 3 不同缓冲层上 InAs 量子点低温 PL 光谱

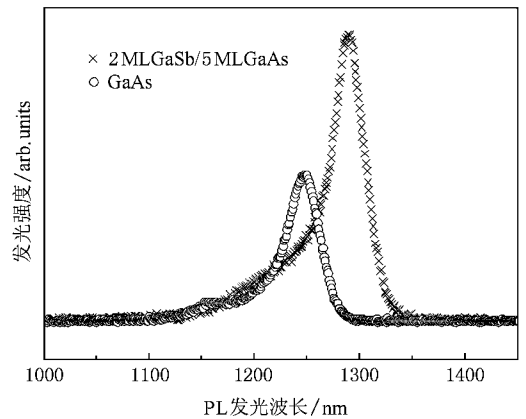


图 4 GaAs 衬底和 2 ML GaSb/5 ML GaAs 缓冲层上 InAs 量子点室温 PL 光谱

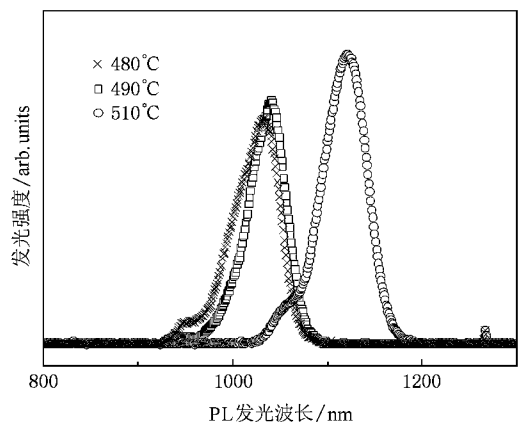


图 5 GaSb/GaAs 缓冲层中 GaSb 生长温度对上 InAs 量子点 PL 光谱的影响

有小的宽高比.通过调整 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层中 GaAs 薄层的厚度,也可以适当的延长量子点的

发光波长,如图 4 所示,当采用 5 ML GaAs 薄层时,量子点的发光波长红移了约 25 nm,室温下 PL 光谱波长接近 1300 nm. 发光峰的红移是因为失配度的减少,使量子点中 In 组分增加,量子点的宽高比有所增加. 值得注意的是,采用合适的 GaSb/GaAs 复合应力缓冲层,量子点的发光强度在室温下不但没有下降,反而有所提高.

研究发现, GaSb 层的生长温度对 InAs 量子点的 PL 强度和波长也有显著的影响,如图 5 所示. 主要原因是 GaSb 层在低温下生长时,晶体质量比较差,增加了缺陷的密度,使得量子点的强度降低,PL 强度变弱^[18].

4. 结 论

利用 MBE 技术在 2 ML GaSb/*x* ML GaAs 复合应力缓冲层上生长了 InAs 量子点,研究了不同 GaAs 厚度对量子点分布和 PL 发光的影响. 在 2ML GaAs/1 ML GaSb 复合应力缓冲层上获得了高密度的、沿 [100] 方向择优分布量子点. 随着复合应力缓冲层中 GaAs 层厚度的不同,量子点的密度可以在 $1.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 和 $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 进行调控. 适当的增加薄层 GaAs 的厚度,使得量子点的宽高比增加,PL 测量表明可以获得室温接近 1.3 μm 的发光.

-
- [1] Liu H Y ,Hopkinton M ,Harrison C N ,Steer M J ,Firth R ,Sellers I R ,Mowbray D J ,Skolnick M S 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 2931
- [2] Ustinov V M ,Maleev N A ,Zhukov A E ,Kovsh A R ,Egorov A Yu , Lunev A V ,Volovik B V ,Krestnikov I L ,Musikhin Yu G ,Bert N A , Kopev P S ,Alferov Zh I ,Ledentsov N N ,Bimberg D 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2815
- [3] Chen J X ,Oesterle U ,Fiore A ,Stanley R P ,Ilegems M ,Todaró T 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3681
- [4] Stintz A ,Liu G T ,Gray A L ,Spillers R ,Delgado S M ,Malloy K J 2000 *J. Vac. Sci. Technol. B* **18** 1496
- [5] Park G ,Shchekin O B ,Huffaker D L ,Deppe D G 2000 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **13** 230
- [6] Chung T ,Walter W ,Holonyak N 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 4500
- [7] Tersoff J ,Teichert C ,Lagally M G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1675
- [8] Akahane K ,Kawamura T ,Okino K ,Koyama H ,Lan S ,Okada Y , Kawabe M ,Tosa M 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 3411
- [9] Yamaguchi K ,Kawaguchi K ,Kanto T 2002 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* **41** 1996
- [10] Yamaguchi K ,Kanto T 2005 *J. Crystal Growth* **275** e2269
- [11] Geller M ,Kapteyn C ,Müller-Kirsch L ,Heitz R ,Bimberg D 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2706
- [12] Ohta M ,Kanto T ,Yamaguchi K 2006 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1* **45** 3427
- [13] Leonard D ,Pond K ,Petroff P M 1994 *Phys. Rev. B* **50** 11687
- [14] Drucker J 1993 *Phys. Rev. B* **48** 18203
- [15] Kanto T ,Yamaguchi K 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 094901
- [16] Li H ,Zhuang Q ,Wang Z ,Daniels-Race T 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 188
- [17] Fumito H ,Koichi Y 1998 *Appl. Surf. Sci.* **130-132** 737
- [18] Ripalda J M ,Alonso-Alvarez D ,Alen B ,Taboada A G ,García J M , Gonzalez Y ,Gonzalez L 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 012111

Effect of the GaAs/GaSb combination strain-buffer layer on self-assembled InAs quantum dots

Jiang Zhong-Wei Wang Wen-Xin[†] Gao Han-Chao Li Hui He Tao

Yang Cheng-Liang Chen Hong Zhou Jun-Ming

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics ,Institute of Physics ,Chinese Academy of Sciences ,Beijing 100190 ,China)

(Received 21 May 2008 ; revised manuscript received 5 July 2008)

Abstract

Optical properties and surface structures of InAs/GaAs self-assembled QDs grown on 2 ML GaSb and x -ML GaAs combined strain-buffer layer are investigated systematically by photoluminescence (PL) and atomic force microscopy (AFM). The QD density varies from $1.2 \times 10 \text{ cm}^{-2}$ to $8.0 \times 10 \text{ cm}^{-2}$ due to the influence of the lattice mismatch. The combined layer favors the increasing of In incorporated into dots and the average height-to-width ratio ,which resulted in the red-shift of the emission peaks. For the sample of 5 ML GaAs thin film the ground state transition is shifted to nearly 1300 nm at room temperature.

Keywords : self-assembled quantum dots , molecular beam epitaxy , semiconductor III - V material

PACC : 7155F , 8240D , 6322 , 7855E

[†] E-mail : wxwang@aphy. iphy. ac. cn