

定位生长量子点的金字塔形衬底的制备

李占国¹, 王 勇¹, 尤明慧^{2*}, 高 欣¹, 李再金¹, 李 特¹, 刘国军¹, 曲 轶¹

¹长春理工大学高功率半导体激光国家重点实验室, 吉林 长春 130022;

²吉林农业大学信息技术学院, 吉林 长春 130033

摘要 在理想情况下, 单光子是由量子点单光子源发光产生的。量子点单光子发射器件的制作主要利用自组织生长方法在图形衬底上结合光学微腔结构实现。采用金字塔形衬底制备量子点可实现量子点的高定位生长, 该方法易于制备和隔离单光子源量子点。利用金字塔形衬底不但可以解决多个量子点占据同一个位置的问题, 而且在金字塔形衬底上制备的量子点有利于光子的发射和收集。

关键词 光学设计; 量子点; 定位生长; 金字塔形衬底

中图分类号 O472 **文献标识码** A

doi: 10.3788/CJL201744.0413001

Preparation of Pyramid-Shaped Substrate for Site-Controlled Growth Quantum Dots

Li Zhanguo¹, Wang Yong¹, You Minghui², Gao Xin¹,
Li Zaijin¹, Li Te¹, Liu Guojun¹, Qu Yi¹

¹National Key Laboratory on High Power Semiconductor Laser, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China;

²College of Information Technology, Jilin Agricultural University, Changchun, Jilin 130033, China

Abstract In the ideal situation, a single photon is produced by the emission of quantum dot single photon source. A quantum dot single photon emission device is achieved when we combine the self-organized growth method with optical microcavity structure on patterned substrate. When we adopt a pyramid-shaped substrate to prepare quantum dots, quantum dot growth with a high degree site-controlled is achieved, and single photon source quantum dots are easy to prepare and isolate. The problem of multiple quantum dots occupying the same position can be solved when we use the pyramid-shaped substrate, and the quantum dot preparation in the pyramid-shaped substrate is beneficial to the photon emission and collection.

Key words optical design; quantum dots; site-controlled growth; pyramid-shaped substrate

OCIS codes 220.4241; 220.4000; 230.0250

1 引 言

半导体量子点单光子源在理论和实验上都已取得了突破性的进展, 是半导体纳米微结构方面的研究热点之一, 其主要研究方向包括: 1) 结合图形衬底技术, 采用微腔、微柱、微盘、光子晶体以及表面等离子体增强结构来提高单光子源的发光效率; 2) 提高单光子源的工作温度并实现单光子的稳定发射, 研制能够在室温下工作的单光子发射源; 3) 增大量子点单光子源的发光波长, 抑制多光子的发射率。为克服基本物理因素的限制, 需要设计新颖的

收稿日期: 2016-09-18; **收到修改稿日期:** 2016-12-04

基金项目: 国家自然科学基金(61430037, 11474036)、吉林省科技厅项目(20140520139JH, 20170520157JH, 20170414016GH)、吉林省教育厅基金(2015174)、2014 年度吉林省博士后科研项目(201524)、中国博士后第 60 批资助(2016M601396)

作者简介: 李占国(1980—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事半导体光电材料与器件制备方面的研究。

E-mail: lzhg000@126.com

* 通信联系人。E-mail: mhyou000@126.com

易隔离结构,以提高单光子发射效率,从而将发射波长拓展至通信波段,并提高器件的工作温度^[1-3]。

在理想情况下,量子点单光子源发射的单光子是由单个量子点的发光实现的。当前,量子点单光子发射器件的制作主要是利用自组织生长方法在图形衬底上结合光学微腔来实现的^[4-6]。

图形衬底的制备分为干法刻蚀和湿法腐蚀,得到广泛应用的图形衬底大都采用干法刻蚀。本文采用金字塔形衬底制备量子点,该方法可实现量子点的高定位生长,且易于制备和隔离单光子源量子点。目前报道的绝大多数量子点单光子源是通过在砷化镓(GaAs)[001]图形衬底上制备砷化铟(InAs)量子点实现的,由于制备的孔/坑很容易在[110]方向上变大,因此在图形衬底孔/坑位置处形成了多个量子点占据现象^[5],而理想情况是单个位置单个量子点占据。金字塔形衬底不但可以解决多个量子点占据同一个位置的问题,而且在金字塔形衬底上制备的量子点有利于光子的收集和发射^[7-9]。

2 实 验

利用 GaAs(111)B 衬底基片制作金字塔形衬底的过程如图 1 所示,工艺过程如下。

1) 将 GaAs(111)B 基片相继在丙酮、去离子水和乙醇中进行 15 min 的超声波清洗,用氮气(N₂)吹干基片。

2) 沉积厚度为 50 nm 的二氧化硅(SiO₂),在温度为 160 °C 下对 SiO₂ 进行 5 min 的退火处理,采用 N₂ 对其进行冷却;旋涂聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA),旋涂机的转速为 3500 r/min,旋涂时间为 30 s;旋涂结束后,对衬底进行清洗,并将衬底在 90 °C 下烘烤 5 min。

3) 旋涂第一层甲基异丁基酮,甩胶转速为 2000 r/min,将旋涂好的第一层甲基异丁基酮在 150 °C 下烘烤 15 min;在烘干的第一层甲基异丁基酮上旋涂异丙醇,旋涂转速为 2000 r/min,利用电子束光刻机(加速电压为 10 kV,束电流为 0.22 nA)产生的电子束曝光 PMMA(曝光剂量的变化范围为 140~260 μC/cm²,IPA 的显影时间为 80 s,IPA 的定影时间为 30 s,使用 N₂ 将 IPA 吹干)。

4) 利用反应离子刻蚀(RIE)SiO₂。

5) 通过丙酮超生去掉 PMMA。

6) 利用氧等离子体和氩气进行 RIE;

7) 利用氢氟酸(氢氟酸与氢氟酸溶液的体积比为 1:8)腐蚀 SiO₂,反应时间为 22 s,再使用 N₂ 吹干腐蚀后的 SiO₂;

8) 进行 InAs 量子点的气相外延生长时,In 与 InAs 的质量比为 3:25,厚度为 161 nm,生长速率为 0.15 nm/s,温度为 700 °C,V 族元素与 III 族元素的流速比为 500:1。利用扫描电子显微镜(SEM)对衬底样品表面形貌进行表征。

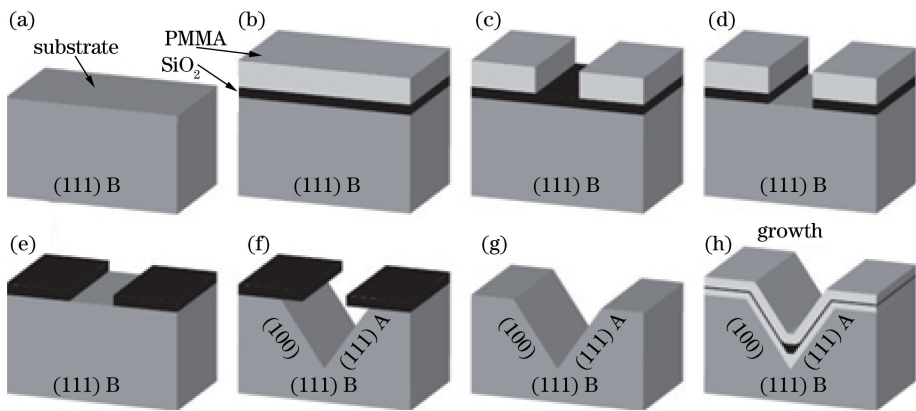


图 1 金字塔形衬底的制备过程

Fig. 1 Preparation process of pyramid-shaped substrate

3 结果与讨论

图 2 是在最佳曝光条件下制备的金字塔形衬底样品表面 SEM 图,结果表明,图案近似为等边三角形,

边长约为 $4\ \mu\text{m}$, 平面角 2θ (2θ 为等边三角形的内角)。刻蚀面平整光滑, 面与面的交接界面清晰且平滑。

图 3 为刻蚀后的剖面 SEM 图, 从图中可以看出, 图形阵列排布非常整齐, 并且所有图形的方向都一致。

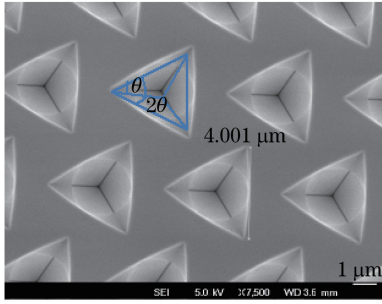


图 2 金字塔形衬底的表面 SEM 图

Fig. 2 Surface SEM image of pyramid-shaped substrate

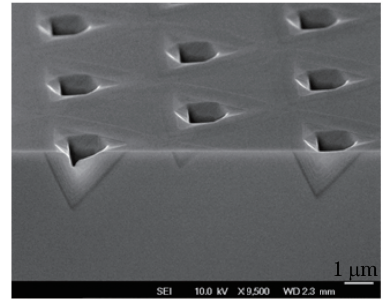


图 3 金字塔形衬底的剖面 SEM 图

Fig. 3 Cross-section SEM image of pyramid-shaped substrate

如图 4 所示, 量子点位于金字塔中心, 形状规则。图形衬底增加的侧面积可以增大实际有效表面积, 降低 In 的平均沉积量, 图形衬底形成的三面结构也可以有效释放 In 沉积层的应变, 使 In 量子点不易于在任何一个面和棱附近形成, 抑制了量子点密度的最低点向 $[110]$ 方向的偏移, 控制了 InAs 量子点在结构重构时 $[110]$ 方向正向和反向的表面原子层结构的不对称以及能量势垒的不对称, 避免了 InAs 量子点各向异性的产生, 抑制了不同方向上生长速度不同的 InAs 量子点的迁移, 同时也抑制了生长速度较慢方向上的 In 液滴逐步向生长速度较快方向的迁移, 从而减小了产生双量子点和多量子点的概率。

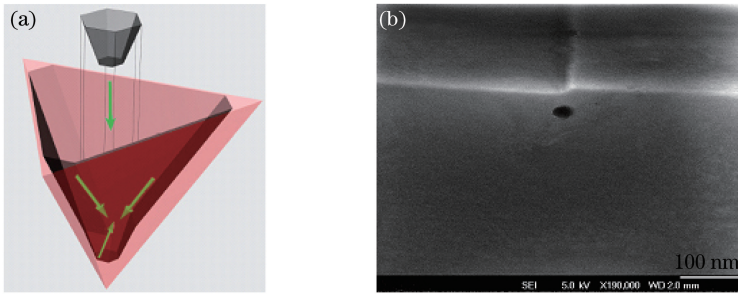


图 4 (a) 金字塔形内外延量子点示意图; (b) 金字塔形基底内 InAs 量子点的 SEM 图

Fig. 4 (a) Schematic of pyramid-shaped epitaxial quantum dot; (b) SEM image of InAs quantum dot in pyramid-shaped substrate

能够发射单光子是量子点的共性。量子点是一种具有很强三维量子限制作用的人工原子, 这种特性使得半导体量子点具有原子所具有的特性。电子在量子点中各个能级的分布基本满足泡利不相容原理、能量最低原理和洪特规则。

通过分析发光强度随激发功率的变化, 可确定量子点样品的发光是否为单量子点单光子发射。普通单量子点的单光子谱线宽约为 $56\ \mu\text{eV}$ ^[9], 类似于当前的实验结果。图 5 中两个峰的发射波长约为 $972.1\ \text{nm}$

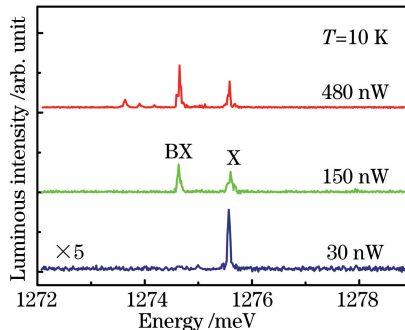


图 5 金字塔形衬底中 InAs 量子点的弱发光光谱

Fig. 5 Weak luminescence spectra of InAs quantum dots in pyramid-shaped substrate

和 972.7 nm。在低温 10 K 下测量的两个发光峰位置都集中在 972.4 nm 附近,因此可以确定这些峰是同一量子点发光产生的。图中 X 和 BX 分别表示第一激发态和第二激发态。

4 结 论

采用金字塔形衬底制备量子点可实现量子点的高定位生长,且易于制备和隔离单光子源量子点。实验测量是在低温 10 K 下进行的,三个发光峰位置都集中在 972.4 nm 附近,推断这三个发光峰应为同一量子点发光产生的。金字塔形衬底不仅可以解决多个量子点占据同一个位置的问题,而且在金字塔形衬底上制备的量子点有利于光子的收集和发射。

参 考 文 献

- [1] Zhao Jian, Chen Yonghai, Wang Zhanguo, *et al.* Growth of InAs/GaAs quantum dots and quantum rings by droplet epitaxy based on patterned substrate[J]. Chinese Journal of Semiconductors, 2008, 29(10): 2003-2008.
赵 瞰, 陈涌海, 王占国, 等. 基于图形衬底的 InAs/GaAs 量子点和量子环液滴外延[J]. 半导体学报, 2008, 29(10): 2003-2008.
- [2] Ding X, He Y, Duan Z C, *et al.* On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar[J]. Physical Review Letters, 2016, 116(2): 020401.
- [3] Lodahl P, Mahmoodian S, Stobbe S. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures [J]. Reviews of Modern Physics, 2015, 87(2): 347.
- [4] Notzel R, Sritirawisarn N, Selcuk E, *et al.* Lateral ordering, position, and number control of self-organized quantum dots: The key to future functional nanophotonic devices[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2008, 14(4): 1140-1149.
- [5] Mayer C J, Helfrich M F, Schaadt D M, *et al.* Influence of hole shape/size on the growth of site-selective quantum dots [J]. Nanoscale Research Letters, 2013, 8: 504.
- [6] Aoki K, Guimard D, Nishioka M, *et al.* Coupling of quantum-dot light emission with a three-dimensional photonic-crystal nanocavity[J]. Nature Photonics, 2008, 2(11): 688-692.
- [7] Baier M H, Pelucchi E, Kapon E, *et al.* Single photon emission from site-controlled pyramidal quantum dots [J]. Applied Physics Letters, 2004, 84(5): 648-650.
- [8] Juska G, Murray E, Dimastrodonato V, *et al.* Conditions for entangled photon emission from (111) B site-controlled pyramidal quantum dots[J]. Journal of Applied Physics, 2015, 117(13): 134302.
- [9] Nishi K, Saito H, Sugou S, *et al.* A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μm from strain-reduced InAs quantum dots covered by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates[J]. Applied Physics Letters, 1999, 74(8): 1111-1113.