

双层堆垛长波长 InAs/GaAs 量子点发光性质研究

魏全香¹ 吴兵朋² 任正伟² 贺振宏² 牛智川²

(¹ 山西大学物理电子工程学院, 山西 太原 030006)
(² 中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要 研究了双层堆垛 InAs/GaAs/InAs 自组织量子点的生长和光致发光(PL)的物理性质。通过优化 InAs 淀积量、中间 GaAs 层厚度以及 InAs 量子点生长温度等生长条件,获得了室温光致发光 1391~1438 nm 的高质量 InAs 量子点。研究发现对量子点 GaAs 间隔层实施原位退火、采用 Sb 辅助生长 InGaAs 盖层等方法可以增强高密度 ($2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) InAs 量子点的发光强度,减小光谱线宽,改善均匀性和红移发光波长。

关键词 材料; 双层堆垛; InAs 量子点; 光致发光; 分子束外延

中图分类号 O436; O433.4; O472+.3; O485 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0125001

Photoluminescence Study of Two Layer Stacked InAs/GaAs Quantum Dots

Wei Quanxiang¹ Wu Bingpeng² Ren Zhengwei² He Zhenhong² Niu Zhichuan²

(¹ Department of Physics, Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China)
(² Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract The molecular beam epitaxy growth and physical property of photoluminescence (PL) of two layer stacked InAs/GaAs quantum dots have been investigated. The emission wavelengths of the InAs quantum dots (QD) are extended to 1391 ~ 1438 nm through optimizations of growth conditions including InAs deposition amounts, thicknesses of GaAs space layers and growth temperatures. It is found that the PL intensities, wavelengths, line widths and uniformities of the high density ($2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) InAs QD are improved by using in-situ annealing of GaAs interval layers and Sb assisted growth of InGaAs cover layers.

Key words materials; bilayer stacked; InAs quantum dots; photoluminescence (PL); molecular beam epitaxy

OCIS codes 250.5230; 310.6628; 230.4170; 120.6780

1 引 言

GaAs 基 InAs 自组织量子点材料是多年来 1.3~1.5 μm 近红外光电材料器件研究方向的重要课题。研究表明单层 InAs 量子点的最佳发光波段集中在 1.3 μm 波段。近年来多层堆垛 InAs/GaAs 自组织量子点研究引起更多重视,这是由于多层堆垛量子点结构中下层点产生的应力场直接影响上层点的成核位置,导致沿生长方向量子点的垂直排列生长,和沿面内方向量子点的有序化改善,还可以增加量子点密度使量子点激光器阈值电流减小^[1]。特别重要的是:多层堆垛量子点的层数^[2~5]、中间隔离

层的厚度^[6,7]对其上层量子点的排列、量子点的尺寸^[4,5]有非常明显的控制作用。量子点层数增加可以使得量子点尺寸增加^[8]从而使其发光波长红移。多层堆垛量子点超过临界尺寸时量子点结构的应力通过失配位错来释放^[9~11]。通过精细控制生长过程可以获得垂直方向有序排列无位错量子点^[2,4,5,12,13]。

双层堆垛量子点(QD)是堆垛量子点结构中最简单典型结构。通过调节两层点之间的 GaAs 隔离层厚度,不仅可以使 InAs/GaAs 量子点在生长方向有序排列^[14],还可以有效调控上层量子点的密度和

收稿日期: 2011-06-15; 收到修改稿日期: 2011-08-25

基金项目: 国家自然科学基金(90921015,60625405)资助课题。

作者简介: 魏全香(1962—),女,副教授,主要从事物理电子学方面的研究。E-mail: qx.wei@163.com

大小并改善上层量子点的均匀性^[15,16],从而可以实现较高密度下的量子点尺寸更均匀的目的。量子点尺寸分布均匀性的提高能够减小光谱的线宽,有助于改善量子点器件性能;而量子点尺度增大可以使量子点发光波长红移,有利于实现长波长器件。因此双层量子点材料生长和性能研究是制备堆垛多层量子点器件的重要基础。有报道实现室温光致发光谱线宽仅 10.5 meV 的高质量双层 InAs/GaAs 量子点但发光波长较短^[17]。更重要的研究目标是如何利用双层量子点来实现发光波长的红移^[18~20]。2006 年 Wei 等^[20]生长制备了双层 InAs/GaAs 量子点室温激射激光器,其工作波长为 1430 nm,这些研究为进一步实现更长发光波长提供了重要的基础。

为制备长波长高质量量子点材料,需要仔细优化这类复杂堆垛结构量子点的生长参数。通常情况下双层 InAs 量子点中的上、下层量子点需要采用不同生长条件:如下层 InAs 量子点采用高温、高速生长,以获得较高的面密度;上层 InAs 量子点采用低温、低速生长,以获得较大的尺寸以红移发光波长。本论文在 1.3 μm 波段单层 InAs 量子点研究基础上^[21],研究了 GaAs 基 InAs 双层量子点的外延生长,通过优化生长条件实现了室温光致发光 1391~1438 nm 的 InAs 量子点。

2 实验方法

量子点样品使用 Veeco Mod Gen II 固源分子束外延设备生长,衬底为 n^+ GaAs (100)。在 580 $^{\circ}\text{C}$ 脱氧后在 615 $^{\circ}\text{C}$ 下先生长 300 nm 的 GaAs 缓冲层,然后生长两层 InAs 量子点。其外延结构如图 1 所示。设定下层 InAs 量子点淀积量为 θ_1 ,生长速率为 0.1 ML/s (ML 表示单原子层),生长温度为 T_1 ;上层量子点淀积量为 θ_2 ,生长速率为 0.016 ML/s,生长温度为 T_2 ;中间层 GaAs 厚度为 d 。其中的量子点退火样品采用对 GaAs 中间层生长完后 610 $^{\circ}\text{C}$ 快速退火 10 min 的处理方法。在淀积完上层 InAs 量子点后,在 T_2 温度下依次生长 5 nm 的 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}(\text{Sb})$ 盖层,40 nm 的 GaAs 和第二层 InAs 量子点。第二层 InAs 量子点生长条件与第一层相同但没有盖层以进行表面形貌分析。实验中通过改变生长温度 T 、淀积量 θ 以及是否在盖层中引入 Sb 等研究了量子点形貌、大小和光学性质的变化。量子点表面形貌采用 Nanoscope IV (Digital Instruments) 原子力显微镜测试;发光性质采用傅里叶光谱测试。

InAs QDs θ_2
GaAs d nm
InAs QDs θ_1
GaAs 40 nm
$\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}(\text{Sb})$ 5 nm
InAs QDs θ_2
GaAs d nm
InAs QDs θ_1
GaAs buffer 300 nm
n^+ GaAs (100)

图 1 双层 InAs 量子点的外延结构

Fig. 1 Epitaxial structures of the bilayer InAS QD

3 实验结果与讨论

首先对退火和未退火的两个量子点样品进行了对比测试。其上、下两层淀积量均为 2.4 ML,生长温度分别为 510 $^{\circ}\text{C}$ 和 480 $^{\circ}\text{C}$,中间层 GaAs 厚度 d 为 8 nm,上层量子点盖层为 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 。其中一个样品在生长完 GaAs 中间层后进行 610 $^{\circ}\text{C}$ 原位快速退火 10 min,降温后生长上层 InAs 量子点。第二个样品无退火处理直接生长上层 InAs 量子点。图 2 为两个样品室温发光(PL)谱,由图 2 可见:盖层退火样品 PL 谱(实线)强度是未退火样品(虚线)的 5.5 倍左右。图 3(a),(b)分别为中间层未退火样品和退火样品的原子力显微镜(AFM)图。可以看出未退火样品表面粗糙度大,出现较大尺寸量子点,大部分主要量子点高度较小,尺寸均匀性较差;而退火样品表面平整度较好,基本上没有大量子点,均匀性更好,而且大部分量子点的高度较高(导致其 PL 谱峰值波长更长)。由此可见,对 GaAs 中间层进行快速退火可以有效消除生长面起伏,改善上层 InAs 量子点均匀性,抑制缺陷密度。同时由于量子点密

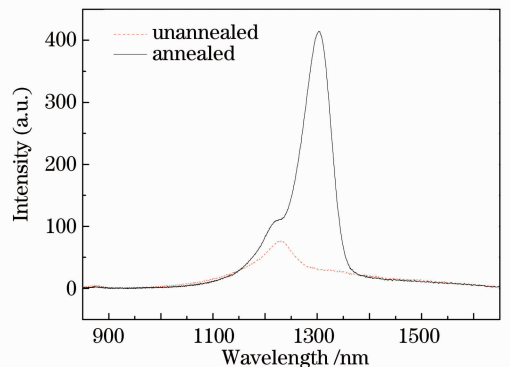


图 2 中间层 GaAs 退火与未退火量子点样品室温 PL 谱
Fig. 2 Room temperature PL spectra of the QD samples with and without GaAs space layer annealings

度增大,使量子点 PL 谱发光强度变强^[18,22]。同时,量子点尺寸增大,能带带隙的变小导致其发光峰红

移。后面样品生长均采用快速退火处理。

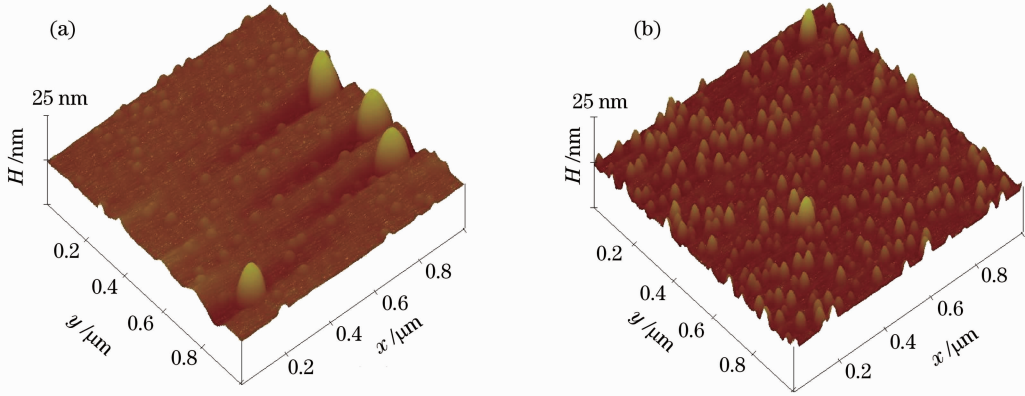


图 3 中间 GaAs 层(a)未退火和(b)退火量子点样品 AFM 表面图(扫描范围: $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$)

Fig. 3 AFM surface images of the QDs samples (a) without and (b) with GaAs space layer annealing (scanning size: $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$)

为研究 InAs 淀积量的影响分别研究了固定上层或下层量子点淀积量的两组样品。固定下层 InAs 量子点淀积量为 $\theta_1 = 2.4 \text{ ML}$, 仅改变上层量子点淀积量 θ_2 , GaAs 中间层厚度 8 nm 。其他生长条件为上下层 InAs 量子点生长温度分别为 $510 \text{ }^\circ\text{C}$ 和 $480 \text{ }^\circ\text{C}$, 上层量子点盖层 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 。另一组样品固定上层 InAs 量子点淀积量 $\theta_2 = 3.04 \text{ ML}$, 仅改变下层 InAs 量子点的淀积量 θ_1 , GaAs 中间层 10 nm 。其他条件与上面相同。图 4(a)是上层 InAs 淀积量量子点样品组的室温 PL 谱。随淀积量从 2.4 ML 到 2.7 ML , 再到 3.04 ML , PL 谱峰值波长从 1301 nm 到 1327 nm 再到 1359 nm 。PL 谱峰值波长随着淀积量的增加而

变长, 归结于淀积量的增加使量子点的尺寸增大^[23]。继续将淀积量从 3.04 ML 增加到 3.36 ML , PL 峰值波长仅增加 7 nm 至 1366 nm , 而 PL 谱强度约下降为最初的 $1/6$, 这说明不能单纯依靠增加 InAs 量子点的淀积量来进一步红移 InAs 量子点的发光波长。图 4(b)为下层 InAs 淀积量不同量子点样品组的室温 PL 谱。随着淀积量从 2.8 ML 至 3.0 ML , PL 谱峰值波长只发生微小红移, 这与上组样品有明显区别。主要是因为双层量子点之间存在电子耦合作用 PL 谱发光峰主要来自上层 InAs 量子点^[19]。因此增加下层量子点淀积量对红移量子点发光波长不明显。

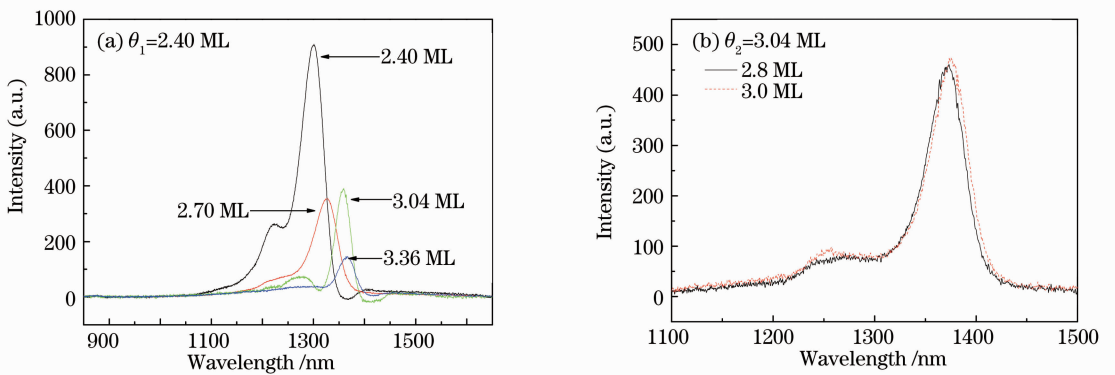


图 4 (a)上层和(b)下层 InAs 量子点淀积量不同样品的室温 PL 谱

Fig. 4 Room temperature PL spectra of the QDs samples with different depositions for (a) upper layer and (b) lower layer InAs QDs

进一步研究了 GaAs 中间层厚度 d 对量子点发光性质的影响。图 5 为上下层量子点淀积量均为 2.4 ML , 生长温度分别为 $510 \text{ }^\circ\text{C}$ 和 $480 \text{ }^\circ\text{C}$, 上层量子点盖层为 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$, 而中间层厚度不同的量

子点样品的室温 PL 谱。当 GaAs 中间层厚度由 8 nm 减小至 6 nm 时, PL 谱峰值波长出现蓝移, 并且强度大幅度下降(为 8 nm 样品的 $1/8$)。PL 峰值波长的蓝移可能与紧密堆垛量子点间复杂的应力场

有关^[24]。PL 谱强度的减弱可能与 GaAs 中间层的厚度起伏(中间层厚度越薄,这个影响越明显),以及量子点堆垛造成的 GaAs 中间层材料质量的恶化有关^[25]。

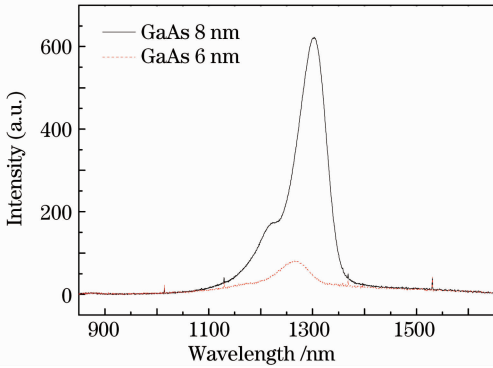


图 5 不同厚度中间层量子点样品室温 PL 谱

Fig. 5 Room temperature PL spectra of the QD samples of space layers with different thicknesses

由于 PL 谱的发光峰主要来自上层 InAs 量子点,仅改变上层 InAs 量子点的生长温度可以研究量子点生长温度对光学性质的影响。图 6 为下层 InAs 量子点生长温度 510 °C、GaAs 中间层厚度 10 nm、覆盖层为 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 在不同生长温度下生长的量子点的室温 PL 谱。当生长温度由 480 °C 降至 470 °C 时,PL 谱峰值波长由 1373 nm 红移至 1391 nm,而且 PL 谱强度约增强 1 倍;半峰全宽 (WHM) 从 30.0 meV 减小为 26.9 meV。PL 谱红移的主要原因是生长温度降低使量子点高与直径比增大,同时减小了 In/Ga 互混和应变弛豫^[18]。应变弛豫减小能够减少量子点周围位错使 PL 谱强度增加。FWHM 的减小说明量子点均匀性得到提高。

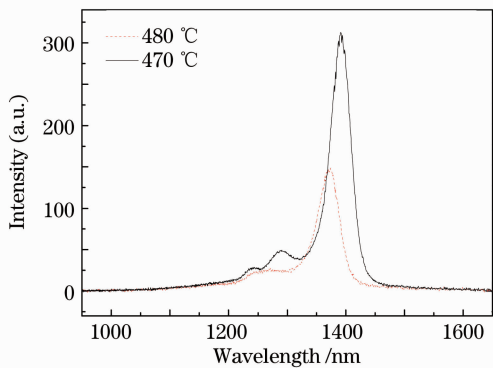


图 6 上层 InAs 量子点生长温度不同的样品的室温 PL 谱

Fig. 6 Room temperature PL spectra of the QDs samples with different growth temperatures for the upper layer InAs QDs

为研究 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 盖层中引入 Sb 元素后对量子点发光性能的影响,生长了掺 Sb 与不掺 Sb 的两个对比样品,其他条件为上、下两层 InAs 量子点生长温度分别为 510 °C 和 470 °C, GaAs 中间层 10 nm。掺 Sb 时 Sb 的束流值约 133.32×10^{-7} Pa。从图 7 所示的量子点室温 PL 谱可以看出,掺 Sb 后量子点 PL 谱峰值波长由 1391 nm 红移至 1438 nm,且 PL 谱强度增强 3 倍。

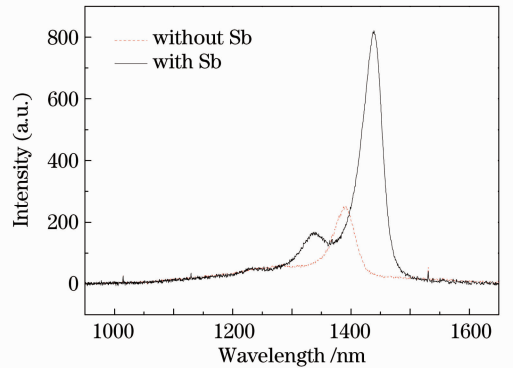


图 7 InGaAs(不含 Sb)与 InGaAsSb(含 Sb)盖层量子点样品室温 PL 谱

Fig. 7 Room temperature PL spectra of the QD samples with InGaAs (without Sb) and InGaAsSb (with Sb) cap layers

图 8(a),(b)为盖层不含 Sb 与含 Sb 样品 AFM 图。根据 AFM 软件处理结果,(a),(b)样品量子点平均高度分别为 7.7 nm 和 7.5 nm。量子点密度约为 $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。平均高度小的量子点 PL 谱峰值波长更长说明 Sb 引入使量子点应变减小波长红移。这是因为掺 Sb 后形成的 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}:\text{Sb}$ 盖层可能对载流子尤其是空穴具有更好的量子限制作用^[26],而 Sb 作为活性剂可以有效抑制位错和缺陷。此外,InGaAs 盖层作为量子点应变减小层,引入 Sb 后其晶格常数与 InAs 更接近进一步减小了量子点应变,使 PL 谱峰值波长出现红移^[27]。InGaAs 盖层中引入 Sb 可以抑制量子点尺寸的起伏。盖层引入 Sb 后 FWHM 从 30.0 meV 减小至 24.8 meV 说明 Sb 的引入增强了量子点尺寸的均匀性。

4 结 论

研究了 GaAs 衬底上双层 InAs/GaAs/InAs 自组织量子点的生长和发光物理性质。通过优化 InAs 淀积量、中间 GaAs 层厚度、以及生长温度等,获得了长波长发光(1391~1438 nm)的 GaAs 基 InAs 量子点。对双层 InAs 量子点中间的 GaAs 层

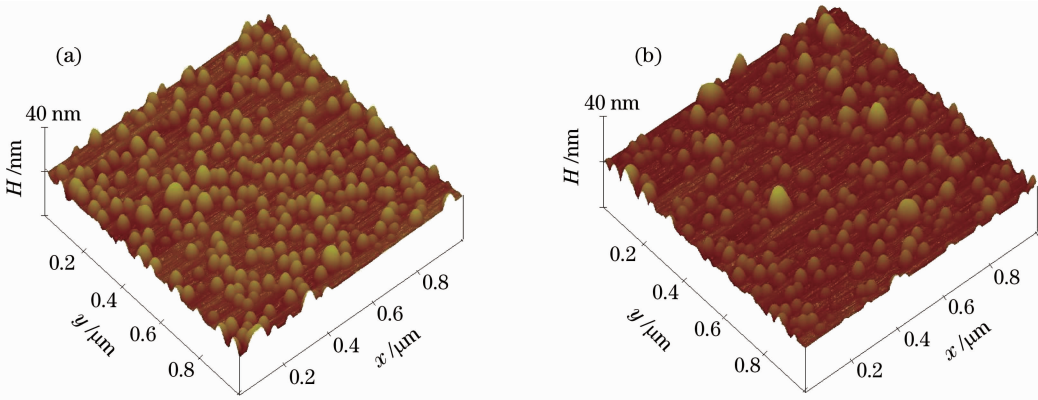


图 8 InGaAs 盖层(a)与 InGaAsSb(b)盖层量子点样品的 AFM 表面视图(扫描范围: $1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$)

Fig. 8 AFM surface images of the QD samples with (a) InGaAs and (b) InGaAsSb cap layer (scanning size $1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$)

进行原位退火可以显著增强量子点的发光强度并改善上层量子点的均匀性。在上层 InAs 量子点的 InGaAs 盖层的生长中采用 Sb 辅助方法,显著增强了量子点的发光强度,而谱线线宽减小到 24.8 meV ,同时保持了量子点的高密度为 $2\times 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ 。结果表明双层堆垛量子点可以实现高密度和长波长发光性质,这为 GaAs 基近红外长波长器件制备提供了新的材料结构。

参 考 文 献

- 1 N. N. Ledentsov, V. A. Shchukin, M. Grundmann *et al.*. Direct formation of vertically coupled quantum dots in Stranski-Krastanov growth [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **54**(12): 8743~8746
- 2 J. Tersoff, C. Teichert, M. G. Lagally. Self-organization in growth of quantum dot superlattices [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(10): 1675~1678
- 3 D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves *et al.*. Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **63**(23): 3203~3205
- 4 Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen *et al.*. Vertically self-organized InAs quantum box islands on GaAs [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**(13): 2542~2544
- 5 G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall *et al.*. Other stacked quantum dot systems include Ge/Si [J]. *Thin Solid Films*, 1997, **294**(1-2): 296~299
- 6 B. Ilahi, L. Sfaxi, F. Hassen *et al.*. Optimizing the spacer layer thickness of vertically stacked InAs/GaAs quantum dots [J]. *Mater. Sci. Engng. C*, 2006, **26**(2-3): 374~376
- 7 Y. Furukawa, S. Noda, M. Ishii *et al.*. Stacking number dependence of size distribution of vertically stacked InAs/GaAs quantum dots [J]. *Electron. Mater.*, 1999, **28**(5): 452~454
- 8 Y. Chen, X. W. Lin, Z. L. -Weber *et al.*. Dislocation formation mechanism in strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ islands grown on GaAs(001) substrates [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(1): 111~113
- 9 J. Y. Yao, T. G. Andersson, G. L. Dunlop. The interfacial morphology of strained epitaxial $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ /GaAs [J]. *Appl. Phys.*, 1991, **69**(4): 2224~2226
- 10 C. H. Roh, Y. J. Park, K. M. Kim *et al.*. Defect generation in multi-stacked InAs quantum dot/GaAs structures [J]. *J. Crystal Growth*, 2001, **226**(1): 1~4

- 11 B. Lita, R. S. Goldman, J. D. Phillips *et al.*. Nanometer-scale studies of vertical organization and evolution of stacked self-assembled InAs/GaAs quantum dots [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**(19): 2824~2826
- 12 E. Mateeva, P. Sutter, J. C. Bean *et al.*. Mechanism of organization of three-dimensional islands in SiGe/Si multilayers [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(22): 3233~3235
- 13 D. M. Schaadt, S. Krauss, R. Koch *et al.*. Stress evolution during growth of bilayer self-assembled InAs/GaAs quantum dots [J]. *Appl. Phys. A*, 2006, **83**(2): 267~269
- 14 Q. Xie, J. L. Brown, R. L. Jones *et al.*. Growth of vertically self-organized InGaAs quantum dots with narrow inhomogeneous broadening [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **76**(21): 3082~3084
- 15 B. L. Liang, Z. M. Wang, Y. I. Mazur *et al.*. Growth and characterization of bilayer InAs/GaAs quantum dot structures [J]. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 2006, **203**(10): 2403~2406
- 16 Z. Mi, P. Bhattacharya. Molecular-beam epitaxial growth and characteristics of highly uniform InAs/GaAs quantum dot layers [J]. *Appl. Phys.*, 2005, **98**(2): 023510
- 17 E. C. Le Ru, P. Howe, T. S. Jones *et al.*. Indium segregation during multilayer InAs/GaAs(0 0 1) quantum dot formation [J]. *Phys. Rev. B*, 2003, **67**(16): 165303~165306
- 18 P. Howe, E. C. Le Ru, E. Clarke *et al.*. Competition between strain-induced and temperature-controlled nucleation of InAs/GaAs quantum dots [J]. *Appl. Phys.*, 2004, **95**(6): 2998~3001
- 19 L. H. Li, M. Rossetti, A. Fiore *et al.*. $1.43\mu\text{m}$ InAs bilayer quantum dot lasers on GaAs substrate [J]. *Electron. Lett.*, 2006, **42**(11): 638~639
- 20 Quanxiang Wei, Zhengwei Ren, Zhenhong He *et al.*. Evolution of surface morphology and photoluminescence characteristics of $1.3\mu\text{m}$ InGaAs/GaAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2009, **7**(1): 52~54
- 21 H. Y. Liu, I. R. Sellers, T. J. Badcock *et al.*. Improved performance of $1.3\mu\text{m}$ multilayer InAs quantum-dot lasers using a high-growth-temperature GaAs spacer layer [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(5): 704~706
- 22 L. Chu, M. Arzberger, G. Böhm *et al.*. Influence of growth conditions on the photoluminescence of self-assembled InAs/GaAs quantum dots [J]. *Appl. Phys.*, 1999, **85**(4): 2355~2358
- 23 V. Celibert, E. Tranvouez, G. Guillot *et al.*. MBE growth optimization and optical spectroscopy of InAs/GaAs quantum dots emitting at $1.3\mu\text{m}$ in single and stacked layers [J]. *J. Crystal Growth*, 2005, **275**(1-2): 2314~2317

- 24 S. Sanguinetti, M. Padovani, M. Guirlioli *et al.*. Carrier transfer and photoluminescence quenching in InAs/GaAs, multilayer quantum dots[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **77**(9): 1307~1309
- 25 W. Liu, D. M. T. Kuo, J. Chyi *et al.*. Enhanced thermal stability and emission intensity of InAs quantum dots covered by an InGaAsSb strain-reducing layer [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(24): 243103
- 26 Kouichi Akahane, Naokatsu Yamamoto, Shin-ichiro Gozu *et al.*. 1.5 μm emission from InAs quantum dots with InGaAsSb strain-reducing layer grown on GaAs substrates [J]. *Physica E*, 2006, **32**(1-2): 81~84
- 27 T. Matsuura, T. Miyamoto, F. Koyama. Topological characteristics of InAs quantum dot with GaInAs cover using Sb surfactant [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(18): 183109

栏目编辑:何卓铭