

InGaAs/GaAs 自组织量子点光致发光特性研究*

牛智川 王晓东 苗振华 封松林

(中国科学院半导体研究所, 半导体超晶格国家重点实验室, 北京, 100083)

摘要 用 PL 谱测试研究了 GaAs 和不同 In 组份 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x=0.1, 0.2, 0.3$) 覆盖层对分子束外延生长的 InAs/GaAs 自组织量子点发光特性的影响. 用 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 外延层覆盖 InAs/GaAs 量子点, 比用 GaAs 做覆盖层其发光峰能量向低能端移动, 发光峰半高宽变窄, 量子点发光峰能量随温度的红移幅度变小. 理论计算证实这是由于覆盖层 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 减小了 InAs 表面应力导致发光峰红移, 而 In 元素有效抑制了 InAs/GaAs 界面组份的混杂, 量子点的均匀性得到改善, PL 谱半高宽变窄. 用 InGaAs 覆盖的 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点实现了 $1.3\mu\text{m}$ 发光, 室温下 PL 谱半高宽为 19.2meV , 是目前最好的实验结果.

关键词 InAs/GaAs 自组织量子点, 光致发光, 分子束外延, InGaAs 覆盖层.

PHOTOLUMINESCENCE PROPERTIES OF SELF-ORGANIZED InGaAs/GaAs QUANTUM DOT STRUCTURES*

NIU Zhi-Chuan WANG Xiao-Dong MIAO Zhen-Hua FENG Song-Lin

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract Optical properties of InGaAs/GaAs self-organized quantum dots (QDs) structures covered by $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ capping layers with different In contents x ranging from 0.0 (i.e., GaAs) to 0.3 were investigated systematically by photoluminescence (PL) measurements. Red-shift of the PL peak energies of the InAs QDs covered by $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers with narrower linewidth and less shifts of the PL emissions via variations of the measurement temperatures were observed compared with that covered by GaAs layers. Calculation and structural measurements confirm that the red-shift of the PL peaks are mainly due to strain reduction and suppression of the In/Ga intermixing due to the $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ cover layer, leading to better size uniformity and thus narrowing the PL linewidth of the QDs. $1.3\mu\text{m}$ wavelength emission with very narrow linewidth of only 19.2meV at room temperature was successfully obtained from the $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ QDs covered by the $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ layer.

Key words InAs/GaAs self-organized quantum dots, photoluminescence, molecular beam epitaxy, InGaAs capping layer.

引言

在目前多种量子点结构制备中, 自组织量子点生长方法已经成为最热门的技术途径之一. 近年来, 人们发现 In(Ga)As/GaAs 材料自组织量子点可以在红外波段(如 $1.3\mu\text{m}$ 等)发光, 这恰是可以满足光纤通信广泛需要的重要波段, 实现量子点 $1.3\mu\text{m}$ 激光器成为受到国内外广泛重视的新一轮研究课题.

如何进一步提高自组织量子点的生长质量、获得高发光效率的长波长自组织量子点结构是目前的研究重点之一. 人们发现将 InAs/GaAs 自组织量子点用 InGaAs 外延层覆盖或将其直接生长在 InGaAs 外延层中也可以实现长波长发光^[1]. InAs/GaAs 自组织量子点被 InGaAs 覆盖后, 用其它方法如停顿、退火以及在低温外延层上生长等^[2,3,4]所产生的发光波长调节现象, 存在多种物理机制, 有可能是覆盖层

* 国家自然科学基金(编号 69876036 和 19823001), 攀登计划基金和教育部留学回国经费资助项目
稿件收到日期 2000-08-14, 修改稿收到日期 2000-11-03

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 69876036 and 19823001) and the State Climbing Research Project
Received 2000-08-14, revised 2000-11-03

使量子点界面应力减小,或抑制了其中In的偏析.另外In组分高的InGaAs也容易在InAs量子点上形成尺寸较大的岛状结构,这诸多因素都可能使量子点的发光波长变化.

本文系统地研究了分子束外延生长的一系列InAs/GaAs以及InGaAs/GaAs自组织量子点结构的发光特性,利用光致发光(PL)谱,系统地对比研究了不同In组份 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 \leq x \leq 0.3$)覆盖层对自组织量子点结构发光波长的影响,并从理论上解释了覆盖层导致的发光波长红移现象.最终在 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点结构中,成功地实现了室温下 $1.3\mu\text{m}$ 发光,其PL谱半高宽仅仅为 19.2meV ,是目前国际最好的实验结果.

1 实验

生长实验设备为VG V80H MK I型分子束外延(MBE)系统.外延样品所用基片为半绝缘GaAs(100)衬底.首先生长InAs/GaAs量子点结构;外延层包括 $0.5\mu\text{m}$ GaAs缓冲层,生长温度 600°C .然后温度降至 450°C ,淀积 2.0ML 的InAs(形成自组织量子点),再覆盖 3nm 的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 层,其中In组分 x 值分别为 $0.0, 0.1, 0.2, 0.3$ (1~4号样品),最后生长 50nm 的GaAs保护层.随后生长3个 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点结构,分别采用 $(\text{InAs})_n/(\text{GaAs})_n$ 原子层交替生长的方法($n=1\text{ML}, 1.5\text{ML}, 2.0\text{ML}$),总厚度为 16ML .覆盖层采

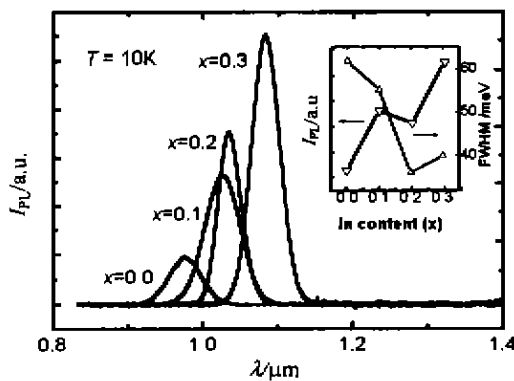


图1 覆盖 3nm $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3$)外延层的InAs/GaAs自组织量子点光致发光谱,插图给出各荧光峰积分强度及半高宽随In组分的变化

Fig. 1 PL spectra taken at 10K from the InAs dots covered by 3nm -thick $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layer with different $x=0.0, 0.1, 0.2$, and 0.3 . The spectra of the integrated intensity and linewidth of the PL peak versus In mole fraction (x) of the $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers are shown in the inset

用 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$.其它外延层结构与1~4号样品相同,所有样品GaAs的生长速率为 $1\mu\text{m}/\text{h}$,InAs为 $0.1\mu\text{m}/\text{h}$,As压维持在 $1/10^{-3}\text{Pa}$ 左右.

光致发光谱测量采用激发波长为 514.5nm 的氩离子激光器作为激发光源,激发功率约为 1mW .荧光信号用Ge探测器收集记录.样品架安装于液氮闭循环系统中,使得测试温度可以从 10K 以下到室温之间变化.

2 结果与讨论

图1给出了 10K 温度下1~4号量子点样品荧光峰强度随波长的变化.随 x 值的增大,量子点的发光峰明显红移,特别对 $x=0.3$ 的样品,发光峰红移到 $1.1\mu\text{m}$ 附近.图1中的插图还给出了另一个重要信息,即各样品发光谱积分强度和半高宽随 x 值的变化.可以看出,随 x 值增大,光谱的积分强度总的趋势是增加,而半高宽却减小.如对 $x=0.0$ (即用GaAs作为覆盖层)的样品,其发光峰半高宽是 62meV ,而用 $x=0.2$ 的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 作覆盖层的量子点样品发光峰半高宽已经减小到了 36meV .此外还注意到,对于 $x=0.3$ 的样品,其发光峰半高宽较 $x=0.2$ 样品略有增加(约为 40meV).

以上结果首先证实了用InGaAs外延层覆盖InAs/GaAs自组织量子点后,其发光峰产生了明显的红移现象.主要原因是由于InGaAs覆盖层减小了InAs岛所承受的应力,从而改变了InAs量子点能级的位置^[4].我们利用了一个简单的模型来计算应变的变化对量子点能级所产生的影响:先计算 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 盖层($x \geq 0.1$)引起的量子点的能量移动,然后减掉GaAs盖层(即 $x=0.0$)引起的量子点的能量移动,便可得出 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 盖层引起的量子点发光峰相对GaAs($x=0.0$)盖层的移动.计算以 $x=0.2$ 为例,假设量子点是球形,根据Hideaki Saito等人的结果^[5],量子点(球)内应变分量和压强分别是

$$e_{rr} = -\frac{P}{3\lambda + 2\mu}, \quad e_{\theta\theta} = e_{\phi\phi} = e_{\varphi\varphi} = 0 \quad (1)$$

$$P = \frac{4(3\lambda + 2\mu)(\alpha - 1)}{4\alpha + 8} \quad (2)$$

其中 λ 和 μ 是Lame's常数,对计算没有影响, α 是InAs与 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 的晶格常数之比(1.0565).因此,对应于导带和价带的能量改变 δE_c 和 δE_v 值分别是

$$\delta E_{c,v} = a_{c,v}(3e_{rr}) = -0.055a_{c,v}eV. \quad (3)$$

式(3)中 $a_{c,v}$ 是 InAs 的形变势. 取 $a_c = -5.08\text{eV}$, $a_v = 1.00\text{eV}$ ^[6], 则得到 $a = (a_c - a_v) = -6.08\text{eV}$, 于是求得覆盖层材料引起的量子点(球)内能级的移动是

$$\delta E = \delta E_c - \delta E_v = 0.337\text{eV}. \quad (4)$$

注意式(4)的 δE 是 InAs 岛周围由 InGaAs 覆盖层产生应变场后引起的能量移动. 同样的方法计算 GaAs 覆盖层引起的能量移动, 得到

$$\delta E' = 0.425\text{eV}. \quad (5)$$

于是由式(4)和(5)得出量子点发光峰能量的红移幅度约为 88meV . 由 PL 谱的测量结果已经知: $x=0.2$ 的样品, 其 PL 峰相对 $x=0.0$ 样品移动了约 71meV , 这与上面的计算结果是基本相符的. 亦可对 $x=0.1$ 的样品和 $x=0.3$ 的样品作类似估算, 结果如图 2 所示. 由此看出, 理论值与实验值存在一些误差, 这是由于存在其他因素的影响, 如 InGaAs 抑制了 In 的偏析, 造成量子点发光峰红移; 另外, 在我们的样品中, InGaAs 的厚度只有 3nm , 有些量子点未被完全盖住, 这也会造成一定误差. 但可以肯定, 在该结构中, 应力的改变是引起能量移动的一个主要原因.

众所周知, 在 InAs/GaAs 量子点结构生长中, 总存在 In 向 GaAs 盖层的扩散问题, 这是破坏其均匀性的重要因素. 同时 In 的偏析也改变了量子点的能级分布. 对于用 InGaAs 外延层覆盖 InAs 量子点, 由于生长过程中, In 元素直接来自源炉, 抑制了 In 的偏析现象, 而 PL 谱测试结果所显示的半高宽的减小, 其主要原因就是 InGaAs 盖层阻止了 InAs 岛中 In 的偏析, 保持了 InAs 量子点的形状^[1].

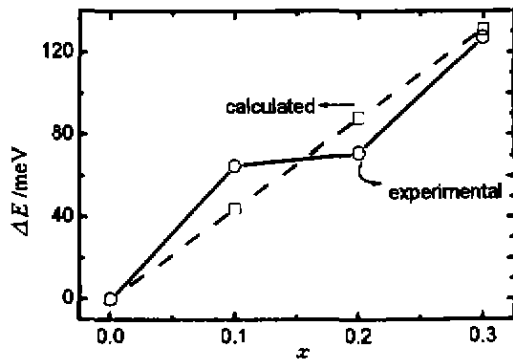


图 2 各样品 PL 峰值红移幅度与覆盖层中 In 含量的变化关系(理论与实验数据对比)

Fig. 2 Comparison of the calculated and experimental values of the red-shifts of the PL peak energy of the QDs according to different In content of the $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layer

此外, $x=0.3$ 的量子点发光峰半高宽比 $x=0.2$ 的样品发光峰半高宽有所增加, 可以认为这主要是由于用较大 In 组份的 InGaAs 外延层覆盖 InAs/GaAs 量子点, 导致了量子点结构的不均匀性所致. 继续淀积 InGaAs 外延层, 将在 InAs 岛的上面形成加大的岛状结构, 同时造成 InAs 岛所受应力不均匀, 导致量子点的不均匀性.

为全面了解所生长的自组织量子点发光性能, 我们对样品还进行了变温 PL 谱测量. 图 3 是不同温度下各样品的 PL 峰值变化. 显然, 随着温度的升高, $x=0.1, 0.2, 0.3$ 的 3 种量子点样品其发光峰红移的幅度比 $x=0.0$ 的量子点样品有所减小, 特别是对于 $x=0.2, 0.3$ 的样品, 这种变化较为明显, 而 $x=0.2, 0.3$ 样品发光峰红移的幅度近似相同.

对 InGaAs 抑制红移的原因, 目前还不是很清楚, 有些文献认为 InGaAs 引起的晶格常数的变化应是解释这种现象的一个重要理由^[7]. 借助对 $x=0.0$ 样品所提出的热激活与热迁移模型^[8], 对此可作以下解释: 在量子点系统中, 量子点中的激子波函数有较大的交迭, 使得整个系统成为一个耦合系统, 量子点中的载流子可发生相互扩散和转移. 当温度升高时, 载流子的热运动和电声子相互作用, 使不同量子点之间载流子相互转移的几率大大增加, 促使高能级的载流子向低能级转移, 这便是 $x=0.0$ 样品发光峰随温度超常红移的主要原因. 基于以上分析, 当量子点的尺寸均匀性较好时, 其发光能量随温度的变化亦将明显减小. 在 $x \geq 0.1$ 的样品中, 由于 InGaAs 抑制了 In 的偏析而使得 InAs 量子点的尺寸趋于均匀, 根据热激活与热迁移模型, 不难理解这

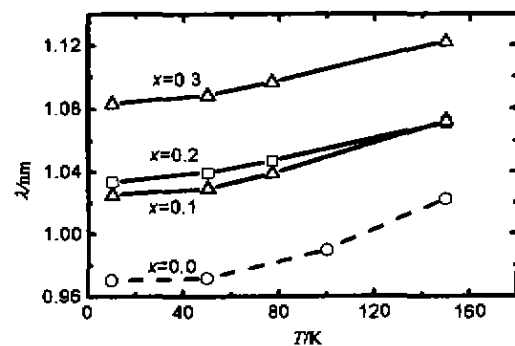


图 3 不同 In 组分覆盖层量子点样品 PL 峰值随温度的变化

Fig. 3 Temperature-dependent spectra of the PL peak energy of the QDs corresponding to different In mole fraction from 0.0 to 0.3

必然使得发光能量随温度的变化减小,可见量子点均匀性的变化是上述实验现象的主要原因。

而对于 $x=0.2, 0.3$ 样品受温度的影响基本一样的原因,可以这样分析:仅从 InGaAs 抑制 In 偏析来看, $x=0.3$ 的样品量子点应该比 $x=0.2$ 时均匀,但 InGaAs 在原来的 InAs 量子点上成岛而不是均匀覆盖,使得量子点所受应力不是均匀分布。整体看来, $x=0.3$ 时量子点的均匀性较 $x=0.2$ 时并没有很大改观,导致二者 PL 峰值随温度变化基本一致,这也与前面 PL 谱测量中 $x=0.3$ 样品比 $x=0.2$ 样品的发光峰半高宽略有增加一致。因此,根据热激活与热迁移模型,可以认为量子点尺寸均匀性的变化是导致 InGaAs 抑制量子点发光峰红移的主要原因。

从以上的实验结果的分析我们可以得出结论: $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 覆盖层不仅使自组织量子点结构发光波长红移,而且还改善了均匀性。其中用 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 做覆盖层效果最佳,但也看出其红移幅度还没有达到理想的 $1.3\mu\text{m}$ 波段,因此必须结合其他方法来

增加发光波长的红移幅度。我们采用进一步减小自组织量子点的 In 组分的方法,即直接生长 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 量子点,同时选用 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 做覆盖层。5~7 号样品的室温 PL 谱测试结果如图 4 所示,可以看出按照不同单原子层厚度 ($n=1, 0, 1, 5, 2, 0$) 交替生长的 $(\text{InAs})_n/(\text{GaAs})_n$ 量子点样品均实现了 $1.3\mu\text{m}$ 波长发光,这首先说明这种方法具有很好的稳定重复性,而其中采用 $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$ 交替生长方法获得的量子点其发光效率最高,半峰宽仅为 19.2meV ,是目前国内外最好的实验结果。图 4 中的插图即 10K 温度下变激发强度 PL 谱,从中还可以看出:在一定范围内增加激发功率,半峰宽没有增加,可以清晰地分辨出量子点的激发态。由此可以证明该量子点结构具有较强的量子限制效应,充分说明这种量子点结构满足了进一步制备激光器的基本要求。有关详细讨论将另文发表^[9,10]。

3 结论

利用 PL 谱测试并结合理论计算方法研究了用 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 \leq x \leq 0.3$) 覆盖的 InAs/GaAs 量子点结构的发光特性,发现 InGaAs 覆盖层减小了 InAs/GaAs 量子点的应力,导致量子点发光峰的红移现象。量子点发光峰半高宽的减小则是由于 InGaAs 抑制了 InAs 岛中 In 的偏析,保持了 InAs 量子点的形状,改善了量子点的均匀性,抑制了 InAs 量子点发光峰随温度升高而红移的幅度。同时,调低自组织量子点的 In 组分,最终可以进一步将发光峰红移至 $1.3\mu\text{m}$ 波段,以获得高发光效率的 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点,为激光器等应用奠定基础。

REFERENCES

- [1] Kenichi Nishi, Hideaki Saito, Shigeo Sugou, *et al.* A narrow photoluminescence linewidth of 21meV at $1.3\mu\text{m}$ from strain-reduced InAs quantum dots by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates, *Appl. Phys. Lett.*, 1999, 74(8):1111
- [2] WANG Zhi-Ming, LU Zheng-Dong, FENG Song-Ling, *et al.* The study of growth interruption of self-assembled InAs/GaAs islands, *J. Infrared Millim. Waves* (王志明, 吕震东, 封松林, 等. 自组织 InAs/GaAs 岛状结构生长停顿研究, *红外与毫米波学报*), 1997, 16(5):335
- [3] WANG Zhi-Ming, LU Zheng-Dong, FENG Song-Ling, *et al.* Annealing effects of self-assembled InAs quantum dots with different thick GaAs cap layers, *Chin. J. Semiconductors* (王志明, 吕震东, 封松林, 等. 不同厚度覆盖层对自组织生长 InAs 量子点退火效应的影响, *半导体学报*), 1997, 18(9):714

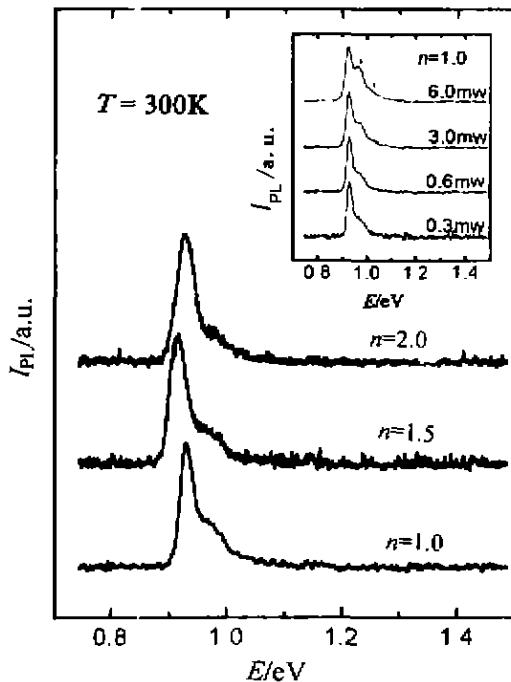


图 4 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ 自组织量子点结构的室温 (300K) 光致发光谱, 其中 $n=1.0\text{ML}$ 的量子点样品 PL 峰半高宽为 19.2meV , 内插图为 10K 温度下 $n=1.0\text{ML}$ 的变激发功率光致发光谱

Fig. 4 Room temperature PL spectra taken from $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ QDs. FWHM of PL from the QDs ($n=1.0\text{ML}$) shows the narrowest linewidth of 19.2meV . The spectra in the inset give excitation power-dependent PL spectra at 10K

- [4] WANG Xiao-Dong, WANG Hui, WANG Hai-Long, *et al.* Study of self-assembled InAs quantum dots grown on low temperature GaAs epilayers, *J. Infrared Millim. Waves* (王晓东, 汪辉, 王海龙, 等. 低温 GaAs 外延层上生长的 InAs 量子点研究, *红外与毫米波学报*), 2000, **19**(3): 177
- [5] Hideaki Saito, Kenichi Nishi. Influence of GaAs capping on the optical properties of InGaAs/GaAs surface quantum dots with 1.5 μ m emission, *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(19): 2742
- [6] XIA Jiang-Bai, ZHU Bang-Fen, HUANG Kun. *Physics of Semiconductor Superlattices*. Shanghai: Shanghai Science and Technology Press (夏建白, 朱邦芬, 黄昆. 半导体超晶格物理, 上海: 上海科学技术出版社), 1995: 31
- [7] Kohki Mukai, Mitsuru Sugawara. Suppression of temperature sensitivity of interband emission energy in 1.3-
mm-region by an InGaAs overgrowth on self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**(26): 3963
- [8] Xu Z Y, Lu Z D, Yang X P, *et al.* Carrier relaxation and thermal activation of localized excitations in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates, *Phys. Rev. B*, 1996, **54**(16): 11528
- [9] Wang X D, Niu Z C, Feng S L. Influence of In_xGa_{1-x}As (0 \leq x \leq 0.3) cap layer on structural and optical properties of self-assembled InAs/GaAs quantum dots, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2000, **39**(3A): 5076
- [10] Wang X D, Niu Z C, Miao Z H, *et al.* Effect of strain on surface morphology and photoluminescence property of 1.3 μ m wavelength In_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs islands grown by molecular beam epitaxy, *J. Crystal Growth*, 2000, **220**(1-2): 16