

低温 GaAs 外延层上生长 InAs 量子点的研究*

王晓东 汪辉 王海龙 牛智川 封松林

(中国科学院半导体研究所, 超晶格国家重点实验室, 北京, 100083)

0471.1
TN304.23

摘要 利用退火技术, 实现了在低温 GaAs 外延层上 InAs 量子点的生长. 透射电镜(TEM)研究表明, 低温 GaAs 外延层上生长的 InAs 量子点比通常生长的 InAs 量子点明显变小, 且密度变大, 认为是由于低温 GaAs 中的点缺陷以及 As 沉淀引起的; 点缺陷释放了部分弹性能, 使得量子点变小, 而 As 沉淀可能是量子点密度变大的原因. 在光致发光谱(PL)上, 退火低温外延层上生长的量子点的发光峰能量较高, 且半高宽变窄.

关键词 InAs 量子点, 低温 GaAs, As 沉淀.

外延生长, 砷化镓, 砷化铟, 砷沉淀

STUDY OF SELF-ASSEMBLED InAs QUANTUM DOTS GROWN ON LOW TEMPERATURE GaAs EPI-LAYER*

WANG Xiao-Dong WANG Hui WANG Hai-Long NIU Zhi-Chuan FENG Song-Lin

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

Abstract InAs self-organized quantum dots (QDs) grown on annealed low temperature GaAs (LT-GaAs) epi-layer were investigated by transmission electron microscopy (TEM) and photoluminescence (PL) measurement. TEM showed that QDs formed on annealed LT-GaAs epi-layer have a smaller size and a higher density than QDs formed on normal GaAs buffer layer. In addition, the PL spectra analysis showed that the LT-GaAs epi-layer resulted in a blue shift in peak energy, and a narrower linewidth in the PL peak. The differences were attributed to the point defects and As precipitates in annealed LT-GaAs epi-layer for the point defects and As precipitates change the strain field of the surface. The results provide a method to improve the uniformity and change the energy band structure of the QDs by controlling the defects in the LT-GaAs epi-layer.

Key words InAs quantum dots, low temperature GaAs, As precipitates.

引言

量子点以其独特的物理内涵和应用前景成为近年来人们研究的热点^[1,2]. 理论预计^[3]以量子点为有源区的激光器将具有很高的特征温度和非常低的阈值电流等优点. 以 S-K (Stranski-Krastanow) 模式自组织生长的量子点是在两种晶格不匹配的材料界面处生成的一种弹性三维岛. 由于岛的形成, 大大释放了由于应变所产生的弹性能, 所以生成的量子点中位错缺陷很少, 结构完整; 但自组织量子点的缺点是尺寸、均匀性等很难控制, 大大限制了其应用前景. 目前对自组织量子点的控制主要是从衬底、盖层、生长环境等几个方面着手, 并且取得了一定效果^[4~7], 但远未达到人们预期的

目的.

1978 年 Murotani 等发现在分子束外延系统中可以生长低温 GaAs ($T < 400^\circ\text{C}$)^[8], 由于低温 GaAs 在快速光电子器件和微电子学方面具有重要的应用前景, 因而受到了普遍的重视^[9,10]. 在 GaAs 衬底上低温生长的 GaAs 缓冲层具有独特的物理性质, 过量的 As 被沉淀在外延层中, 形成大量的 As 位和 As 反位缺陷, 并且晶格常数也会受影响而变大^[11]. 本文的目的是在这种外延层生长 InAs 量子点, 利用低温 GaAs 中固有的缺陷实现对自组织量子点的控制.

1 实验

生长实验系统为 VG 公司的 V80H MK I MBE

* 国家自然科学基金(编号 19823001)和国家攀登计划资助项目
稿件收到日期 1999-12-29, 修改稿收到日期 2000-03-02

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 19823001) and the National Climbing Programme of Fundamental Research
Received 1999-12-29, revised 2000-03-02

系统.首先在GaAs(100)衬底上生长 $0.5\mu\text{m}$ 的GaAs缓冲层,生长温度为 600°C ;再将生长温度降至 250°C ,生长 $0.1\mu\text{m}$ 低温GaAs(LT-GaAs);然后进行原位退火 $3.5\text{min}(600^\circ\text{C})$. 450°C 时在低温GaAs外延层上沉积 2.0ML 的InAs,接着在相同温度下覆盖 200\AA 的GaAs层.为了便于对比,我们还生长了通常(600°C)的GaAs缓冲层上的量子点样品.上述样品在生长InAs时每长 0.5 个ML停顿 20s ,使In原子充分扩散.所有样品都是连续生长的,尽可能地减少由于生长条件波动带来的影响,保持不同结构之间的可比性.生长过程中保持 V/I 为 15 ,GaAs的生长速率为 $1\mu\text{m}/\text{h}$,InAs的生长速率为 $0.11\mu\text{m}/\text{h}$.

透射电镜测量是在JEM 200CX电子显微镜上进行的.样品先进行机械减薄到 $\sim 50\mu\text{m}$,然后用 Ar^+ 离子轰击直到电子束可以穿透为止.为了得到透射电镜截面像,样品面对面粘在一起后再进行机械减薄和离子减薄.光致发光谱测量采用氦离子激光器作为激发光源,激发光波长是 514.5nm ,激发功率约为 4mW .样品放在液He闭循环制冷装置中,温度保持在 12K .输出信号用低温Ge探测器测量.

2 结果与讨论

透射电镜像能作为量子点存在的证据,也是唯一能研究加盖层后的量子点大小和形状的方法.我们对所制成的样品利用透射电镜进行了研究,其中平面像

是垂直于(100)面观察的,截面像 $g=[220]$.

图1清楚的表明在低温GaAs外延层上形成了InAs量子点,通过图1(a)估算得出量子点密度约 2200 个/ μm^2 ,平均大小约 10nm .图1(b)中量子点的高度约 7nm ,大小在 $7\sim 15\text{nm}$ 之间,与图1(a)基本相符.在图(1)中我们并没有发现失配位错的存在.图2是通常生长的量子点的平面透射电镜像,量子点大小平均约 30nm ,密度约 1100 个/ μm^2 .从以上数据可以看出,低温GaAs外延层上的量子点比通常生长的量子点明显变小,且密度变大.应当指出:由于透射电镜像的形成是由于应变场引起的,因此通过电镜像算得的量子点的大小可能要比实际偏大,但对于定性分析并不会产生影响.

另外对低温GaAs外延层上的量子点,从透射电镜平面像来看没有通常生长的量子点那么明显,这主要是受外延层应变场影响引起的.退火的低温GaAs外延层中存在As沉淀,而As沉淀在外延层中是随机分布的,使得其中的应力分布很不规律,影响了对量子点的观察.但我们从图1(b)的截面像中可以肯定量子点的存在.

从上面透射电镜的结果可以看出,用我们的方法在低温GaAs外延层上明显长成了量子点,该量子点比通常生长的量子点小,密度大.那么低温GaAs外延层对自组织量子点形成有什么影响呢?在低温GaAs的形成过程中,大概有 $1\%\sim 1.5\%$ 的As过剩,这些过

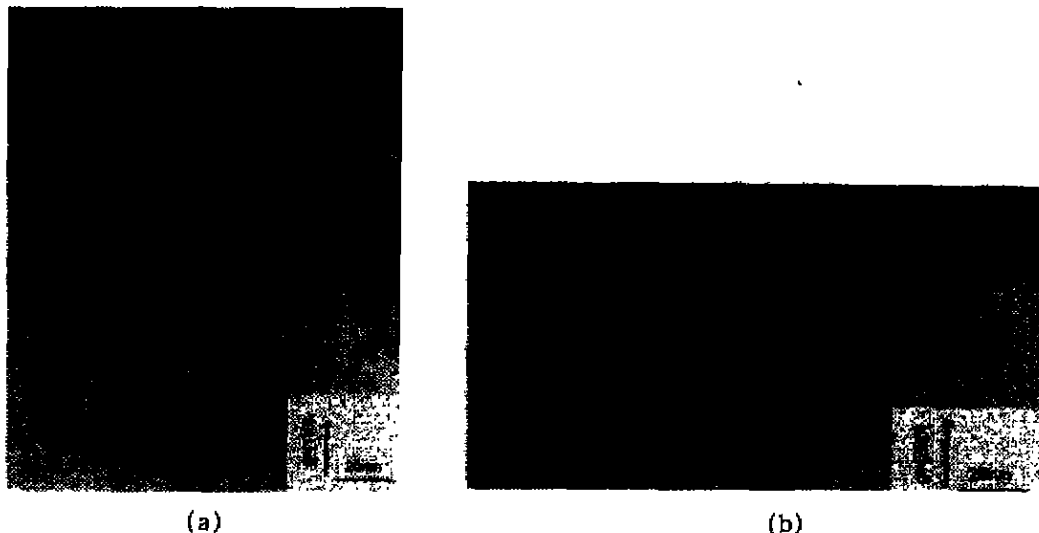


图1 (a) 低温GaAs外延层生长的InAs量子点的平面透射电镜像(暗场像),
(b) 低温GaAs外延层生长的InAs量子点的截面透射电镜像(明场像)

Fig.1 (a) Plane-view of TEM image of 2ML InAs deposited on LT-GaAs epi-layer grown at 250°C and annealed at 600°C for 3.5min (dark field)(b) Cross-sectional TEM image of 2ML InAs deposited on LT-GaAs epi-layer grown at 250°C and annealed at 600°C for 3.5min (bright field)



图2 通常生长的 InAs/GaAs 量子点的平面透射电镜像(暗场像)

Fig. 2 Plane view TEM image of 2ML InAs deposited on GaAs buffer layer grown at 600°C (dark field)

量的 As 主要分布于 As 间隙和 As 反位,形成点缺陷。由于这种形式的 As 的存在,使得晶格常数受到了影响而膨胀,若定义 $\Delta a = (a - a_0)/a$,其中 a, a_0 分别为低温 GaAs 和通常 GaAs 的晶格常数,在 190°C 到 260°C 的生长温度范围内, Δa 的值在 0.13% 到 0.2% 之间^[9,10]。可见点缺陷的存在使得 InAs/GaAs 晶格常数之间的适配度有所减小,增大了 InAs 量子点形成的临界厚度。600°C 时对低温 GaAs 进行退火,晶格常数将会逐渐恢复正常,过量的 As 将形成 As 沉淀^[9]。由于退火时间较短(3.5min),我们认为并非所有过量的 As 都形成沉淀,有些仍以点缺陷的形式存在。正是表面上的点缺陷和 As 沉淀对自组织量子点的形成起到了调制作用,使得应力部分被释放,量子点变小。并且原来小的量子点将不再形成,而原来大的量子点变小,量子点的分布趋向于均匀化。对于量子点的密度变大,我们认为一方面部分 As 沉淀在表面可能起到了成核中心的作用,另一方面表面以下 As 的沉淀可能起到了应变中心的作用,这种应变传递到表面促进了 InAs 量子点的该处的形成,上述几方面共同作用使得量子点的密度变高。

对量子点的形貌的观察在 PL 谱上得以进一步证明,对样品进行 PL 谱的测量,得到了质量较好的光致发光谱,如图 3 所示。图 3(a)是低温 GaAs 外延层上 InAs 量子点的 PL 谱,其峰位约 1.26eV,半高宽 64.3meV;(b)是通常生长的量子点 PL 谱,其峰位 1.23eV,半高宽 72.6meV。可以看出,低温 GaAs 外延

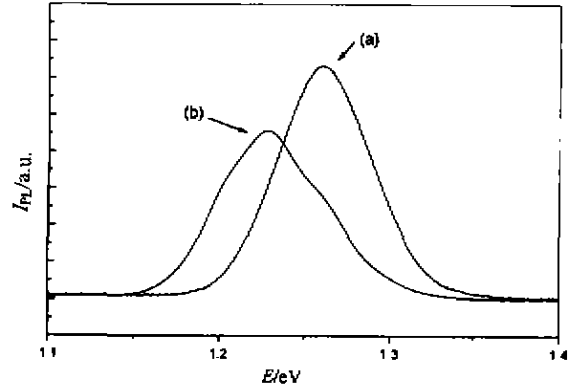


图3 (a)低温 GaAs 外延层上的量子点样品的光致发光谱(温度 $T=12K$), (b)通常生长的量子点样品的光致发光谱(温度 $T=12K$)

Fig. 3 (a) PL spectrum at 12K of InAs quantum dots formed on LT-GaAs epi-layer grown at 250°C and annealed at 600°C for 3.5 min (b) PL spectrum at 12K of InAs quantum dots formed on GaAs buffer layer grown at 600°C

层上的量子点样品其发光峰相对通常生长的量子点发光峰蓝移约 30meV,且半高宽较窄,光谱质量好。我们知道量子点的发光峰与量子点的大小有很大关系,小的量子点其发光峰相对大的量子点能量位置要高,而半高宽却与量子点大小的涨落相关,大小相对均匀的量子点其半高宽要比大小不均匀的窄。从透射电镜的结果我们知道,低温 GaAs 外延层上的量子点比通常生长的量子点小,且大小趋于均匀,因此我们认为这正是 PL 谱上变化的主要原因。另外,低温 GaAs 外延层应变场较通常的 GaAs 有所变化,这使得量子点底部的应变场也有所变化,从而使得量子点与实际大小会有更大偏差,能带也有变化,出现了上面 PL 谱的测量结果。

3 结论

我们利用低温 GaAs 外延层特殊的物理特性,在其上生长了 2ML 的 InAs 量子点,并利用 TEM 和 PL 谱对所有生长的量子点与通常生长的 GaAs 外延层上的量子点进行了对比研究,认为由于低温 GaAs 晶格常数的变化以及点缺陷和 As 沉淀的存在,使得退火低温 GaAs 外延层上的量子点变小,密度变大。低温 GaAs 外延层上的量子点的 PL 峰比通常生长的量子点发生蓝移且半高宽变窄,主要也是量子点的尺寸变化引起的。总之,我们的结果为控制 GaAs 外延层上的量子点提供了一种新的方法。

REFERENCES

- [1] Notzel R. Self-organized growth of quantum-dot structures, *Semicond. Sci. Technol.*, 1996, **11**: 1365
- [2] Wang H L, Ning D, Zhu H J, *et al.* Electronic characteristics of InAs/GaAs self-assembled quantum dots by deep level transient spectroscopy, *J. Crystal Growth*, 2000, **208**: 107
- [3] Arakawa Y, Sakaki H. Multi-dimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current, *Appl. Phys. Lett.*, 1982, **40**(): 939
- [4] Solomon G S, Trezza J A, Harris J S. Effects of monolayer coverage, flux ratio, and growth rate on the island density of InAs islands on GaAs, *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**(23): 3161
- [5] WANG Zhi-Ming, LU Zhen-Dong, FENG Song-Lin, *et al.* The study of growth interruption of self-assembled InAs/GaAs islands, *J. Infrared Millim. Waves* (王志明, 吕振东, 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
- [6] ZHU Hai-Jun, WANG Zhi-Ming, WANG Hui, *et al.* Uniformity of enhancement of the self-organized InAs quantum dots. *J. Crystal Growth*, 1999, **197**: 372
- [7] WANG Zhi-Ming, LU Zhen-Dong, FENG Song-Lin, *et al.* Annealing effects of self-assembled InAs quantum dots with different thick GaAs cap layers, *Chinese Journal of Semi-conductors* (王志明, 吕振东, 封松林, 等. 不同厚度 GaAs 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
- [8] Murotani T, Shimano T, Mitsui S. Growth temperature dependence in molecular beam epitaxy of Gallium Arsenide, *J. Crystal Growth*, 1978, **45**: 302
- [9] David C Look. Molecular beam epitaxy GaAs grown at low temperatures, *Thin Solid Films*, 1993, **231**: 61
- [10] Melloch M R, Otsuka N, Woodall J M, *et al.* Formation of arsenic precipitates in GaAs buffer layers grown by molecular beam epitaxy at low substrate temperatures, *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **57**(15): 1531
- [11] Kin Man Yu, M Kaminska, Z Liliental-Weber. Characterization of GaAs layers grown by low temperature molecular beam epitaxy using ion beam techniques, *J. Appl. Phys.*, 1992, **72**(7): 2850