

# 空间有序的量子点超晶格的红外吸收

孙永伟<sup>1</sup> 马文全<sup>1</sup> 杨晓杰<sup>1</sup> 屈玉华<sup>2</sup> 侯识华<sup>1</sup> 江德生<sup>2</sup> 孙宝权<sup>2</sup> 陈良惠<sup>1</sup>

(1 中国科学院半导体研究所 纳米光电子实验室, 北京 100083)

(2 中国科学院半导体研究所 超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

**摘要:** 利用分子束外延技术,在高温下(540 )生长了具有三维空间有序的自组织 InGaAs/ GaAs 量子点超晶格结构,利用傅里叶变换红外光谱仪测量到了明显的垂直入射吸收峰,中心响应波长在 11 $\mu\text{m}$ . 作为对比,在低温下(480 )生长了相同的结构,傅里叶变换红外光谱几乎没有测量到明显的垂直入射吸收峰.高分辨率 X 射线双晶衍射测量表明高温生长的量子点超晶格具有更好的晶体质量,原子力显微镜测量表明在高温 540 下生长的量子点具有明显的横向有序;而在低温 480 下生长的量子点并没有显示出横向有序.在进行垂直入射的吸收测量时,为了扣除量子点超晶格的周期结构带来的干涉效应,提出使用生长条件完全相同但量子点区没有掺杂的样品作为背景,提高了测量的准确性及分辨率.结果表明空间有序的量子点超晶格结构比空间无序的量子点超晶格更适宜作红外探测器结构.

**关键词:** 分子束外延; 量子点超晶格; 垂直入射; 子带吸收

**PACC:** 6855; 2940P; 8110

**中图分类号:** O47 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-4177(2005)11-2092-05

## 1 引言

红外探测器在国防、环境检测以及工业领域都有非常广泛的应用,特别是对应于大气窗口 3 ~ 5 $\mu\text{m}$  及 8 ~ 12 $\mu\text{m}$  波段.尤其重要的是,长波及特长波段红外探测器在导弹的探测、监视和跟踪中有非常重要的意义,研究表明运行中的弹道导弹热辐射峰在 8 ~ 16 $\mu\text{m}$  的波段<sup>[1]</sup>.目前在这一波段比较常用的探测器主要有 HgCdTe 和量子阱红外探测器 (quantum well infrared photodetector, QWIP). HgCdTe 探测器有着优秀的探测能力,但 HgCdTe 材料的外延生长、工艺处理和器件的制造比 QWIP 要更困难,这给制备凝视型的大面积阵列带来困难.量子阱材料具有成熟的外延生长及处理工艺,其大面积的外延生长具有很高的均匀性,完美的可重复性,因而易于做成大面积、低成本的探测器阵列<sup>[2~5]</sup>.但是,由于 QWIP 利用子带跃迁,在垂直入

射情况下,子带跃迁光吸收是被禁止的.这就要求在测试时必须将样品两个边缘抛光,使边缘成 45°角,让光以 45°角入射;或者边缘不抛光以布儒斯特角入射,但这种方法的灵敏度和可靠性会受到影响.在做成器件时,QWIP 需要在样品表面做光栅结构,这必然会增加探测器的成本而且影响成品率.

与量子阱红外探测器相比,量子点探测器有很多优势.由于量子点中电子的运动在三个维度上都受到了量子限制,垂直入射下的子带跃迁光吸收是允许的.另外,量子阱中子带跃迁电子的寿命是皮秒量级,而在量子点中由于声子瓶颈效应,光子激发到高能级的电子要经过更长的时间弛豫到低能级,电子有更长的寿命.这一点已被最近的实验所证实,例如,已有报道在 InGaAs/ GaAs 量子点中子带跃迁电子的寿命可达纳秒量级<sup>[6]</sup>.更长的寿命意味着更小的暗电流,更高的量子效率,因此,相对于量子阱探测器,量子点探测器可望有更高的工作温度和探测率.

孙永伟 博士研究生,主要从事分子束外延材料生长和量子点器件方面的研究.

马文全 研究员,主要从事分子束外延和量子点可控生长等方面的研究.

陈良惠 研究员,中国工程院院士,主要从事半导体光电子器件方面的研究.

2005-03-29 收到,2005-04-21 定稿

从较早的有关垂直入射下的子带跃迁吸收的报道开始<sup>[7,8]</sup>,量子点红外探测器的研制一直受到广泛的关注.最近,量子点探测器的性能探测率也做得越来越高<sup>[9]</sup>.然而,目前制约量子点探测器性能提高的一个主要原因是自组织生长的量子点大小的不均匀性及空间的无序排列,正如文献[10]所指出,随着量子点的均匀性不断提高,量子点探测器的探测率将会越来越高.最近,在垂直方向和水平方向都排列有序的 InGaAs/GaAs 量子点超晶格结构已被报道<sup>[11,12]</sup>,在这种结构中量子点的均匀性也有较大的提高.这种结构的形成机制是由于应变的垂直传递以及通过提高生长时表面原子的迁移率的双重作用所致.其具体的生长过程是在 GaAs 空间隔离层较薄能够有效地传递应变情况下,以较小的生长速率和较高的生长温度来生长量子点超晶格.

本文研究了利用高温(540 )生长的具有三维有序 InGaAs/GaAs 量子点超晶格的垂直入射下的子带吸收,并把它与在低温生长的不具有横向有序的量子点超晶格做了比较.我们发现,高温生长的量子点超晶格具有较强的垂直入射子带吸收;相反,低温生长的量子点超晶格几乎没有观察到垂直入射子带吸收.从结构方面,高分辨率 X 射线双晶衍射测量也证实了在高温生长的量子点超晶格具有更好的晶体质量;原子力显微镜(atomic force microscopy, AFM)测量表明在高温 540 下生长的量子点具有明显的横向有序.作为对比,在低温 480 下生长的量子点并没有显示出横向有序.同时,在用傅里叶变换红外光谱测量垂直入射吸收的时候,为了排除样品本身形成的干涉条纹对结果造成的影响,我们提出用量子点超晶格区未掺杂的样品作为背景,提高了测量的准确性及分辨率.

## 2 实验

所有样品都是用 MBE 生长的.我们在半绝缘 GaAs(100)衬底上生长自组织 InGaAs/GaAs 量子点超晶格结构,样品的结构如图 1 所示.先在衬底上生长 1μm 掺 Si 的 GaAs 缓冲层,掺杂浓度为  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,生长温度为 580 ;然后是 20 个周期的 InGaAs/GaAs 结构,InGaAs 的厚度为 3nm,In 的组分为 0.53, GaAs 限制隔离层为 20nm,根据文献[11,12],20nm 的隔离层可以有效传递应变.在每一量子点超晶格生长完后,我们都要进行 10s 的生

长停顿,为了防止 In 原子的偏析,在每一层 InGaAs 层生长完后,生长不停顿,立刻覆盖 3 个原子层的 GaAs,然后经过 10s 的停顿,再生长其余的 GaAs.在超晶格结构生长完之后,再生长 0.5μm 的 Si 掺杂的 GaAs 盖层,掺杂浓度为  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ .在生长 InGaAs 量子点超晶格时, GaAs 的生长速率为 0.12ML/s, InGaAs 的生长速率为 0.26ML/s,其余各层的生长速率为 1μm/h.

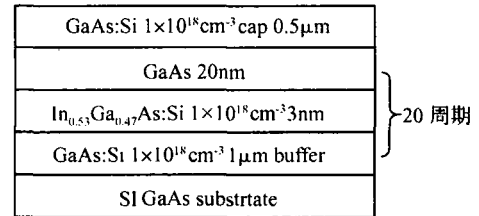


图 1 量子点超晶格结构图

Fig. 1 Schematic drawing of structure of quantum dot superlattice

样品 1 和 1 是在 540 下生长,样品 2 和 2 是在 480 下生长;在样品 1 和 2 中, InGaAs 层是被 Si 掺杂的,掺杂浓度为  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,而在样品 1 和 2 中,量子点超晶格区中的 InGaAs 层是非故意掺杂的.为了减少由衬底厚度带来的差异,四个样品所采用的衬底均来自于同一片 GaAs 衬底.整个生长过程是用反射式高能电子衍射(reflection high-energy electron diffraction, RHEED)原位监测,我们发现,对于所有的样品,当 InGaAs 层生长完之后, RHEED 图形已由条状变为点状,这证实了 InGaAs 层已形成了三维岛,所生长的是量子点结构而不是量子阱结构,AFM 测量也证实了这一点.

为了观察样品的表面形貌,我们又生长了样品 3 和样品 4,结构如图 2 所示.它们的生长条件分别与样品 1 和样品 2 完全相同.为了保持表面量子点的形貌,在最后一层量子点生长完后立即冷却到室温.

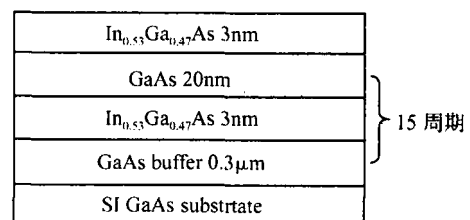


图 2 样品 3 和样品 4 的结构示意图

Fig. 2 Schematic drawing of structure of sample 3 and sample 4

我们用 Rigaku SLX-LA 高分辨率 X 射线双晶衍射仪检测了量子点超晶格的晶格完整性,利用 NT-MDT 公司的 Solver P47 AFM 对于量子点的形貌进行了测量,利用 Nicolet 760 傅里叶变换红外光谱仪测量了样品的红外吸收谱.

### 3 结果与讨论

图 3(a) 和 (b) 分别是样品 3 和样品 4 的 AFM 图. 从图中可以看到, 生长于 540 nm 的量子点在 15 个超晶格周期的生长之后沿  $[0\bar{1}1]$  方向排列成为链状, 而链状结构又沿  $[011]$  方向周期性排列. 作为对比, 生长于 480 nm 的量子点在 15 个超晶格周期的生长之后依然没有任何明显的横向有序特征. 根据文献 [12], 利用多层周期生长得到横向有序量子点的一个必要条件是量子点首先必须垂直对准, 因此, 根据图 3(a) 所展示的横向有序, 高温 540 nm 生长的量

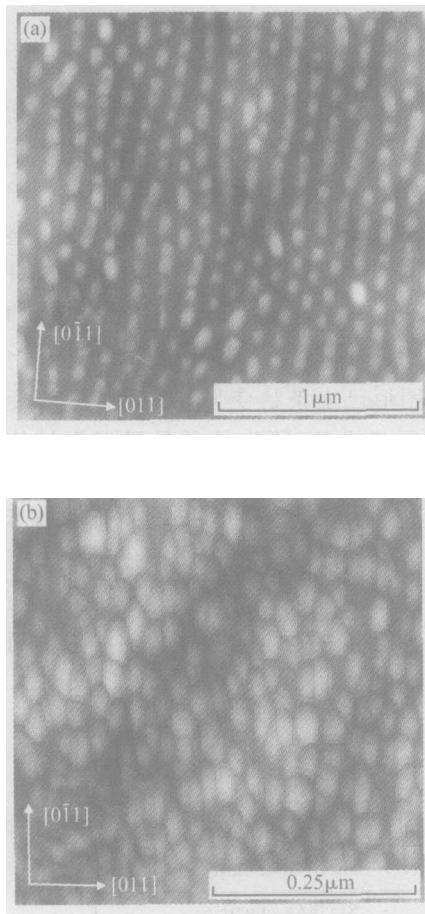


图 3 (a) 样品 3 的 AFM 图; (b) 样品 4 的 AFM 图

Fig. 3 (a) AFM image of sample 3; (b) AFM image of sample 4

子点也应是三维空间有序的. 因为高温生长的量子点比低温生长的量子点大, 为了更清晰地显示量子点的形貌, 图 3(a) 的扫描面积为  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ , 而图 3(b) 的扫描面积为  $0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m}$ .

图 4 所示为用高分辨率 X 射线双晶衍射仪进行的样品 1 和样品 2 的  $-2^\circ$  扫描的 GaAs (400) 衍射谱, 扫描步径为  $0.001^\circ$ . 如图所示, 在完全一致的测试条件下, 对样品 1 观察到了约 13 个卫星峰, 而对样品 2 只观察到了 5 个卫星峰, 同时观察到样品 1 的卫星峰的宽度比样品 2 要窄很多, 这些都说明样品 1 具有比样品 2 更加完美的晶体质量和周期性. 根据 0 级峰与衬底峰的间距, 我们计算出 In 的组分为 0.53, 这一点也与实验设计相吻合.

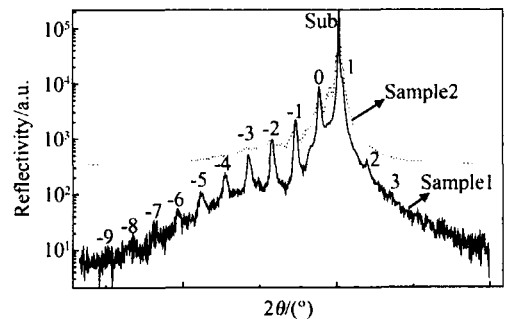


图 4 样品 1 和样品 2 的 XRD 测试

Fig. 4 XRD spectra of Sample 1 and Sample 2

我们又利用傅里叶变换红外光谱仪测试了样品 1 和样品 2 的垂直入射下的吸收. 以前在用傅里叶变换红外光谱仪测量吸收的时候都是用空气或真空作为背景, 但是在垂直入射情况下, 以空气为背景测量吸收时, 样品自身的周期结构引起的 F-P 干涉条纹会对最终测试结果带来误差 [13]. 另外, 虽然有很多有关垂直入射的吸收报道, 但是垂直入射下的吸收效率实际上是很小的, 原因在于目前自组织生长的量子点结构, 量子点的高度比宽度约为 1 比 10, 也就是说量子点的横向量子限制效应比纵向量子限制效应要弱得多. 这样在垂直入射的情况下, 真正的吸收信号实际上是叠加在周期结构引起的干涉信号中. 为了克服这一困难, 我们提出在垂直入射情况下, 以未掺杂的具有相同结构的样品作为参考, 扣除了因为干涉所引起的效应. 在测试样品 1 和样品 2 的时候分别用样品 1 和样品 2 作为背景. 因为在样品 1 和样品 2 中, 由于在量子点区没有进行掺杂, 也就是说在量子点区没有载流子 (非故意掺杂的载流子浓度一般小于  $10^{14} \text{cm}^{-3}$ , 不会有明显的红外吸

收),因此不会有载流子的子带跃迁,也就不会有载流子吸收.而且,因为样品 1 和样品 1,样品 2 和样品 2 具有相同的结构,所以样品 1 和样品 1,样品 2 和样品 2 应分别具有相同的干涉效应.

图 5 是样品 1 和样品 1 对空气的傅里叶变换红外光谱吸收测试结果.对比样品 1 和 1 的红外光谱吸收测试结果,可以看到样品 1 和 1 的差异在于样品 1 在  $11\mu\text{m}$  处有吸收,如虚框所示,而样品 1 则没有吸收.处于约  $4 \sim 7.5\mu\text{m}$  之间的各吸收峰为二者所共有,因此可以认为是大气的吸收谱和二者共有的干涉条纹.我们对样品 2 和 2 也做了同样的测试,二个样品的吸收没有明显的差异.图 6 为样品 1 和样品 2 以样品 1 和样品 2 为背景的扣除了干涉效应之后的傅里叶变换红外光谱吸收测量结果,这时,可以看出真正的吸收信号很清晰地凸现出来.

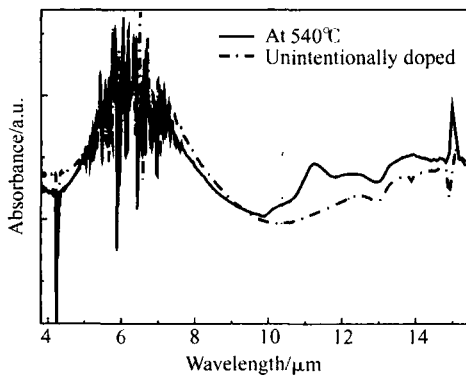


图 5 样品 1 和样品 1 的傅里叶变换红外光谱吸收测量结果 (以空气作为背景)

Fig. 5 FTIR absorption of sample 1 and sample 1 (Air as background)

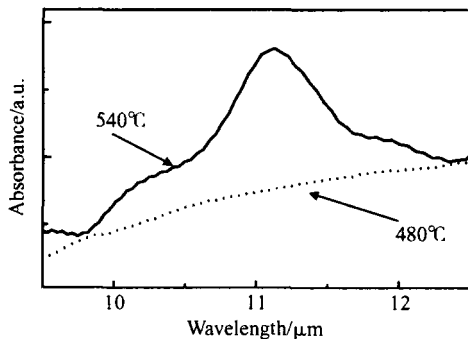


图 6 样品 1 和样品 2 以样品 1 和样品 2 为背景的傅里叶变换红外光谱吸收谱 (扣除了周期结构引起的干涉效应)

Fig. 6 FTIR spectra of absorption of sample 1 and sample 2 measured using sample 1 and sample 2 as background, respectively

就我们所知,以前还没有人用这种方法测量过量子点超晶格的红外吸收.从图中可以看到,样品 1 在  $11\mu\text{m}$  处有一个非常明显的吸收峰,这个峰的 FWHM 为  $1.2\mu\text{m}$ ,  $\lambda/\Delta\lambda$  约为 11%. 很明显的对比是,样品 2 却几乎看不到任何吸收.样品 1 的结构和生长条件决定了样品 1 中的量子点具有三维有序的特点,而样品 2 并不具有三维有序.样品 2 几乎没有看到吸收,表明量子点的均匀性也比样品 1 差很多.这证明三维有序的量子点结构更适宜于作为红外探测器.

### 4 结论

研究了利用高温 ( $540^\circ\text{C}$ ) 生长的具有三维有序 InGaAs/GaAs 量子点超晶格的垂直入射下的子带吸收,并把它与在低温生长的不具有横向有序的量子点超晶格做了比较.研究发现,高温生长的量子点超晶格具有较强的垂直入射子带吸收,相反,低温生长的量子点超晶格几乎没有观察到垂直入射子带吸收.从结构方面,高分辨率 X 射线双晶衍射测量证实了高温生长的量子点超晶格具有更好的晶体质量;AFM 测量证实了高温生长的量子点具有横向有序,而低温生长的量子点不具有横向有序.同时,在利用傅里叶变换红外光谱测量垂直入射吸收的时候,为了排除样品本身形成的干涉条纹对结果造成的影响,我们提出用量子点超晶格区未掺杂的样品作为背景,提高了垂直入射下测量的准确性及分辨率.由于吸收峰刚好位于  $8 \sim 12\mu\text{m}$  大气窗口,因此非常适于制作这个窗口的量子点红外探测器.

### 参考文献

[ 1 ] Tidrow M Z, Dyer W R. Infrared sensor for ballistic missile defense. *Infr Phys & Tech*, 2001, 42: 333

[ 2 ] Levine B F. Quantum-well infrared photodetectors. *J Appl Phys*, 1993, 74 (8) : R1

[ 3 ] Shi Yanli, Deng Jun, Du Jinyu, et al. Dark current characteristic of novel GaAs/AlGaAs quantum well infrared photodetectors. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2001, 22 (4) : 503 (in Chinese) [ 史衍丽, 邓军, 杜金玉, 等. 新型 GaAs/AlGaAs 量子阱红外探测器暗电流特性. *半导体学报*, 2001, 22 (4) : 503 ]

[ 4 ] Cui Liqiu, Jiang Desheng, Zhang Yaohui, et al. Photoelectric properties of two color GaAs/GaAlAs quantum well infrared photodetectors. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1997, 18 (8) : 573 (in Chinese) [ 崔丽秋, 江德生, 张耀辉, 等. GaAs/GaAlAs 量子阱双色红外探测器的光电性质研究. *半导体学*

- 报,1997,18(8):573]
- [ 5 ] Li Hongwei ,Li Wei ,Huang Qi ,et al. Development of broadband 3 ~ 5 $\mu\text{m}$  quantum well infrared photodetectors. Chinese Journal of Semiconductors ,2000 ,21 (12) :1220 (in Chinese) [李宏伟,李卫,黄琦,等. 宽带 3 ~ 5 $\mu\text{m}$  量子阱红外探测器的研制. 半导体学报,2000,21(12):1220]
- [ 6 ] Urayama J ,Norris T B ,Singh J ,et al. Observation of phonon bottleneck in quantum dot electronic relaxation. Phys Rev Lett ,2001 ,86 :4930
- [ 7 ] Kong Meiyang ,Zeng Yiping ,Li Jinmin. Tuning of infrared absorption wavelength of MBE InGaAs/ GaAs quantum dots. Chinese Journal of Semiconductors ,2003 ,24 (supplement) :78 (in Chinese) [孔梅影,曾一平,李晋闽. MBE InGaAs/ GaAs 量子点及其红外吸收波长调制. 半导体学报,2003,24(增刊):78]
- [ 8 ] Pan D ,Zeng Y P ,Kong M Y ,et al. Normal incident infrared absorption from InGaAs/ GaAs quantum dot superlattice. Electron Lett ,1996 ,32 :1726
- [ 9 ] Kim Eui-Tae ,Madhukar Anupam ,Ye Zhengmao ,et al. High detectivity InAs quantum dot infrared photodetectors. Appl Phys Lett ,2004 ,84 (17) :3277
- [10] Phillips Jamie. Evaluation of the fundamental properties of quantum dot infrared detectors. J Appl Phys ,2002 ,91 (7) :4590
- [11] Mazur Yu I ,Ma W Q ,Wang X ,et al. InGaAs/ GaAs three dimensionally-ordered array of quantum dots. Appl Phys Lett ,2003 ,83 :987
- [12] Ma W Q ,Hussein M L ,Shultz J L ,et al. Enhancing the in-plane spatial ordering of quantum dots. Phys Rev B ,2004 ,69 :233312
- [13] Born M ,Wolf E. Principles of optics. New York :Cambridge University Press ,1999

## Infrared Absorption of Spatially Ordered Quantum Dot Superlattices

Sun Yongwei<sup>1</sup> , Ma Wenquan<sup>1</sup> , Yang Xiaojie<sup>1</sup> , Qu Yuhua<sup>2</sup> , Hou Shihua<sup>1</sup> ,  
Jiang Desheng<sup>2</sup> , Sun Baoquan<sup>2</sup> , and Chen Lianghui<sup>1</sup>

(1 *Nano Optoelectronics Laboratory , Institute of Semiconductors , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100083 , China*)

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

**Abstract :** A self-organized InGaAs/ GaAs quantum dot superlattice structure with three dimensionally spatial ordering is grown at 540 nm by molecular beam epitaxy. A Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy measurement demonstrates a distinct intersubband transition absorption peak with the wavelength centered at 11 $\mu\text{m}$  under the normal incidence geometry. As a comparison ,the FTIR measurement shows that the same structure grown at 480 nm does not have normal incidence intersubband transition absorption. High resolution X-ray diffraction measurements indicate that the quantum dot superlattice grown at high temperatures has a better crystalline quality than that grown at low temperatures. Atomic force microscopy measurements reveal that the quantum dots grown at 540 nm show clear lateral ordering ,while those grown at 480 nm show a lack of lateral ordering. In order to remove the interference effect under the normal incidence geometry ,the normal incidence absorption measurement is proposed ,using the structure with the same growth condition but without doping the quantum dot layers. The accuracy and the resolution of the measurement under normal incidence geometry are therefore enhanced. Our results indicate that the quantum dot superlattice structure with spatial ordering is more suitable to be utilized in the infrared photodetector than the structure without spatial ordering.

**Key words :** molecular beam epitaxy ; quantum dot superlattice ; normal incidence ; intersubband transition

**PACC :** 6855 ; 2940P ; 8110

**Article ID :** 0253-4177(2005)11-2092-05

Sun Yongwei male ,PhD candidate. He is mainly engaged in research on molecular beam epitaxy growth of study of quantum dot devices.  
Ma Wenquan male ,professor. He is mainly doing molecular beam epitaxy growth and uniformity control of quantum dot structures.  
Chen Lianghui male ,a member of Chinese Academy of Engineering. He is studying semiconductor optoelectronic devices.

Received 29 March 2005 ,revised manuscript received 21 April 2005

©2005 Chinese Institute of Electronics