

三角形点结构的 MBE 生长及其量子阱限制能量的横向变化

牛智川 周增圻 韩 勤 吴荣汉

(中国科学院半导体研究所 国家光电子工艺中心 北京 100083)

R. Notzel, U. Jahn, M. Ramsteiner, K. H. Ploog

(Paul Drude Institut für Festkörperelektronik, Hausvogteiplatz 5-7, D-10117 Berlin, Germany)

摘要 本文首次报道了在腐蚀图形的(311)A 衬底上,一种新型三角形点结构的 MBE 生长及其量子阱限制能量的横向变化研究。原子力显微镜三维图象清晰地显示出在原腐蚀凹面图形之间的平面区域, MBE 选择性生长形成了均匀的三角形收缩结构,其尖角沿 $[2\bar{3}3]$ 方向,收缩面由对称的 $\{111\}$ A 面构成。低温阴极荧光谱和图象测试研究结果表明:这种点状外延结构存在三个分离的荧光发射区域,分别对应于三个不同的激发光波长。说明这种点结构中量子阱层厚度的变化引入了量子阱限制能量的横向变化。低温微区光致发光谱测试得到高度可分辨的三个发光峰,结果说明在围绕点状结构顶部区域形成了 13meV 横向势垒,且具有较高的辐射复合发光效率。

PACC: 6855, 7860H, 7855

1 引言

在腐蚀图形的衬底(非平面衬底)上进行量子阱层的生长可以使量子阱层的厚度或组分发生横向的变化,这将引入横向的势垒或势阱。已经在其生长机理和制备新的光电子学半导体器件应用方面作了广泛深入的研究^[1~4]。目前在低维结构制备研究中,这种量子阱的非平面生长方法也日益受到了广泛重视^[5~11]。有报道研究了在一维和二维图形衬底上 MBE 生长的量子阱结构产生的横向带隙变化效应^[12~14]。但是目前看来,用非平面衬底上的外延生长制备低维结构存在的主要困难是:这种方法获得的纳米结构,其形状和尺寸大小等结构参数主要由原始腐蚀图形(衬底和图形的取向)和生长条件所决定,由于腐蚀图形精度的限制往往引起外延结构的不均匀性,导致其电子能级分布的不均匀。

在最近的研究工作中^[15~17],我们发现:在腐蚀图形的高指数面衬底上如(311)A 面等,用 MBE 外延生长可以引入表面形貌的有序性变化,特别是在方形凹面图形腐蚀后,用 MBE 生长可以获得一种高度有序的三角形点状结构^[18]。其独特之处在于:点结构形成于原

牛智川 博士,中国科学院半导体研究所,国家光电子工艺中心研究人员,从事 III-V 半导体材料及低维结构的 MBE 生长研究工作

R. Notzel 博士,目前在德国 PD I(Paul-Drude-Institut)研究所主持半导体材料低维结构课题的研究工作
1997-08-19 收到,1997-11-19 定稿

始图形之间的平面区域,呈三角形收缩状,由对称的 $\{111\}$ 小晶面构成。其表面光滑,点的大小和形状高度有序。而在(100)面^[5,12,13]或(111)面^[4]上腐蚀图形衬底上的生长实验还没有发现类似的现象。这种独特的三角形点结构的生长机制在于(311)A面腐蚀图形后,形成了各向异性的生长面从而导致生长过程中Ga原子的择优迁移,外延形成这种形貌。因此其点结构的最终形貌及大小是由生长参数决定的,而基本不受原腐蚀图形大小的影响。

我们期望这种新型的外延结构能够用于三维载流子限制结构的制备。因此本文在上述研究工作的基础上,进一步生长了具有单量子阱的三角形点结构。用阴极荧光谱及图象测试,并结合微区光致发光实验测量,研究了这种点结构的横向载流子限制效应。研究表明:由于量子阱层在外延面上的横向变化,在点结构周围产生了13meV的横向势垒。

2 样品的生长及外延形貌测试实验

首先用普通光刻法在(311)A半绝缘衬底上刻出方形网状图形,图形边缘分别沿相互垂直的 $[2\bar{3}3]$ 和 $[01\bar{1}]$ 方向。然后经过 H_2SO_4 、 H_2O_2 、 H_2O (体积比为1:8:40)溶液腐蚀后得到8mm周期(间距4mm)的方形凹面图形衬底,凹面深度约500nm。所用MBE生长设备为RBER-2300系统。衬底用粘In法固定在Mo托上。生长温度为620℃,GaAs和AlAs的生长速率设计为 $0.5\mu\text{m}/\text{h}$ 。V-III束流比约为5。生长时衬底以6转/分的速度旋转。外延层包括:2.5 μm 的GaAs过渡层,20nm/6nm/20nm的Al_{0.5}Ga_{0.5}As/GaAs/Al_{0.5}Ga_{0.5}As量子阱层,500nm的Al_{0.5}Ga_{0.5}As和20nm的GaAs覆盖层。

用原子力显微镜对样品表面形貌进行了观察。所用设备为PARK AFM-BD2-210测试系统。测试在空气中进行,扫描面积为 $25\times 25\mu\text{m}^2$ 。测试得到的三维图象如图1所示(见图版D)。从中可以清晰地看到:原凹面的(111)A侧墙(A区域)表面形貌粗糙,但在衬底的原凹面之间外延生长形成了均匀的三角形点状结构形貌(B区域),其尖角收缩朝向 $[2\bar{3}3]$ 方向,收缩面由 $\{111\}$ A小晶面构成,而位于点结构之间的 $\{311\}$ A面(C区域)等表面很光滑。这种外延形貌的形成是由于在原衬底上腐蚀凹面图形后,MBE生长过程中Ga原子在各向异性的生长面上产生择优迁移,从而导致了三角形点结构的形成。其生长机理将另文详细讨论^[18]。以下的阴极荧光及光致发光谱测试实验表明,这种点状结构中量子阱厚度横向尺寸的变化引入了量子阱限制能量的横向变化。

3 横向载流子限制效应分析

我们分别用阴极荧光(CL)谱及图象测试,结合微区光致发光(μ -PL)谱方法分析了这种规则点结构的横向载流子限制效应。阴极荧光测试所用设备为Zeiss SEM DSM 962系统。测试温度5K。微区光致发光谱测试所用激光波长为514.5nm,测试温度10K,光斑聚焦后直径可以小达到2 μm 。足以分辨点结构中不同的区域。

CL谱测试分别采用了大面积激发测试(over view)和点激发(spot view)测试方法,结果如图2所示。图2中的两个插图分别是样品平面区域量子阱的测试结果和点激发测试中三个不同激发位置(A、B、C区域)的几何说明。平面量子阱的发光峰位于773nm,半峰宽为8.3meV,表明样品的量子阱界面的生长质量相当好。首先进行了阴极荧光谱的大面积激发测试,面积约50mm²,这个范围可以包含数十个点结构及其相关的区域,因此CL谱线为多个点的平均效应。该谱线显示出一个强的发光峰位于767nm,而在772nm还存在一个发

光峰肩, 同时在 783 nm 附近出现很宽的发光峰 这一谱线反映了点结构中量子阱限制能量存在某种横向变化 因此有必要进一步对感兴趣的区域进行了点激发测试分析 分别在(111)A 侧墙面某点(A 点)、点结构顶端区域某点(B 点)及点与点之间的条状区域面某点(C 点)进行了点激发谱测试 如图所示: A 点激发的 CL 谱为很宽的谱线, 峰值位置在 783 nm 左右 B 点激发 CL 谱峰值位于 772 nm, 发光峰相对强度明显增加 C 点激发 CL 谱峰值位于 767 nm. 由此确认了以上三个位置的发光峰分别相应于 A, B 和 C 点区域

为获得发光峰和发光区域更直接的对应关系, 我们进一步测试了阴极荧光图象, 测试结果如图 3 所示(见图版 I). 其激发光波长相应于 CL 谱的三个峰值波长 即 783 nm、772 nm 和 767 nm. 图中同时给出了表面形貌的二级电子(SE)象, 以便精确地做出发光区域的对应关系 从测试结果可以看出: 相应于这三个波长, 发光图象显示了三个分离的发光区域即: 783 nm 对应于(111)A 粗糙表面, 772 nm 对应于三角形点结构顶部区域, 767 nm 对应于点之间的条状区域等

以上结果已经清晰地表明: 在这种三角形点结构中存在明显的量子阱限制能量的横向变化 从 MBE 生长机理来分析其形成的原因可以认为^[18]: 由于非平面 MBE 生长过程中, Ga 原子的择优迁移形成了点状结构, 也导致了点结构不同区域量子阱厚度的横向变化, 从而引入了量子阱限制能量的横向变化 在分析这种点状结构可以看到: (111)A 区域(A 区域)是一个粗糙表面, 其发光峰谱线很宽, 说明该区域包含了多种不同尺寸的量子阱层结构, 量子阱限制能量的横向变化较为复杂 而最为有意义的是: 比较 B 和 C 区域发光峰能量的位置我们知道: C 区域的发光峰位于最大能量位置, 说明 C 区域量子阱层厚度最薄(其发光峰位置甚至高于平面量子阱部分的发光峰位置, 其量子阱层的厚度最薄). 而点结构顶端(B 区域)的发光峰位于 C 区域低能端, 因此可以判定在该区域外延形成了较厚的量子阱层 正是这种变化导致了两个区域发光峰位置的明显差别 其意义在于: 围绕三角形点结构区域形成了载流子的横向势垒, 因此在外界激发条件下可以使得载流子局域在三角形点结构之中 这正是我们所期望的结果 但是此处应该注意到: 阴极荧光测试是在较高的电子束激发强度条件下进行的, 载流子在不同区域间的扩散较为明显, 因此进一步区别不同区域的发光特性, 还需要减小载流子扩散效应, 提高测试空间分辨率 微区光致发光谱是目前在纳米微结构光学特性测试中最常用的分析方法, 由于其激发能量和激发区域面积可以控制在较小的范围, 因而具有很高的空间分辨率 此处我们用微区光致发光谱的测试方法分析了三角形点结构中不同区域的发光特性 在较高的空间分辨率下进一步证实了阴极荧光的结果

低温微区光致发光谱的测试结果如图 4 所示 测试温度 10K. 三条曲线分别为激光光斑照射在(111)A 侧墙(A 点)、点结构顶部(B 点)、及点结构之间的平面部分(C 点)等区域

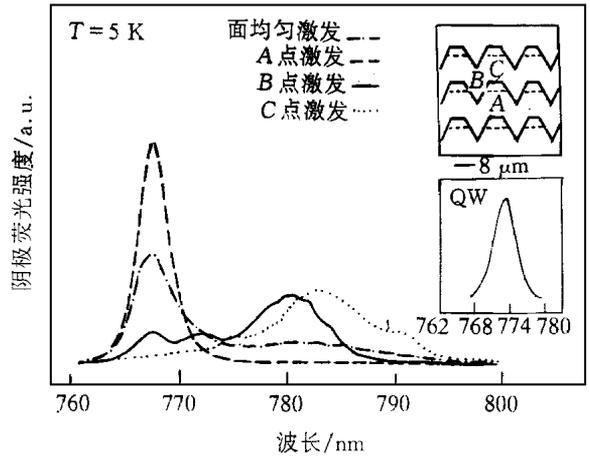


图 2 低温阴极荧光大面积激发和点激发谱
测试温度 6K. 三个发光峰位于 767, 772, 787nm.
插图所示分别为样品平面部分(平面量子阱)的阴极荧光谱
(线宽约为 8meV)和点激发谱相应激发位置的几何说明

其中两个插图分别为平面量子阱部分的测试谱线和A、B、C三个不同激发区域的几何说明

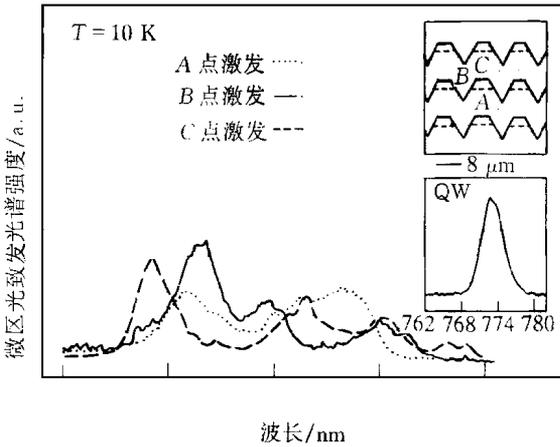


图 4 低温微区光致发光谱测试结果

平面量子阱 PL 谱其发光峰位置和半峰宽均于阴极荧光谱的结果相当 而相应于 A、B、C 三个区域, 获得了高度可分辨的微区 PL 谱线, 其发光峰分别位于 767 nm、772.5 nm 和 783 nm, 证实了 CL 测试结果 重要的是其中相应于 B 区域即三角形点结构区域的 PL 谱, 其发光峰相对强度增强很多, 其谱线宽度约为 8.5 meV, 可以和平面量子阱相比 一方面说明点结构中量子阱外延质量很好, 另一方面说明点结构具有很高的发光效率 此外比较 B 区发光峰位置 (1.604 eV) 和 C 区发光峰位置 (1.617 eV) 的差别我们

知道: 在点结构 (B 区) 周围 (C 区) 形成了约 13 meV 的势垒 如果假定这个势垒是由于量子阱层厚度的变化引入的, 我们可以用简单的 Kronig-Penney 模型粗略地估算出 B 区域量子阱层的厚度增加了 1 nm 左右 (原量子阱厚度设计为 6 nm), 由此可以知道 B 区域量子阱层厚度的变化达到百分之 17, 其变化还是相当明显的 然而需要指出的是: 这个估算的结果仅仅粗略地考虑了量子阱层厚度的变化所引入的横向势垒, 实际上从 AFM 图象所显示的外延形貌来看, 该点结构实际上是一种三角形收缩结构, 这种收缩结构势必引入附加的横向势垒的变化, 因此精确地分析这种均匀点状结构所构成的三维载流子限制效应还需要进一步考虑结构形状等因素

4 结论

本文介绍了一种新型的均匀三角形点状结构的 MBE 生长及其横向载流子限制效应研究 这种点状结构的形成是由于 MBE 生长过程中, Ga 原子在 (311)A 非平面上选择生长特性所导致的 其特点是这种点结构形成于原腐蚀图形之间的平面区域, 其结构形貌独立于原图形 阴极荧光谱和图象测试清晰地表明在三角形顶部周围, 这种选择外延生长形成了三个分立的发光区域, 即形成了三个不同的载流子能量限制区域 微区光致发光谱测试进一步证明: 围绕点结构周围形成了 13 meV 的横向势垒, 且具有较强的发光效率 可以认为这种横向势垒的引入是量子阱层厚度变化 (初步估计在 1 nm 左右) 所引入的 因此我们有理由相信: 利用本实验所发现的这种独特的三角形点结构的生长方法, 通过进一步减小原始腐蚀图形的尺寸, 有可能实现量子点的直接生长

参 考 文 献

- [1] W. T. Tsang and A. Y. Cho, Appl Phys Lett, 1977, 30: 813
- [2] Y. H. Wu, M. Werner, K. L. Chen *et al*, Appl Phys Lett, 1984, 44: 834
- [3] M. E. Hoenk, C. W. Nieh, H. Z. Chen *et al*, Appl Phys Lett, 1989, 53: 53
- [4] 牛智川, 周增圻, 林耀望, 等, 半导体学报, 1996, 17(3): 227~230
- [5] E. Kapon, D. M. Hwang and R. Bhat, Phys Rev Lett, 1989, 63: 430

- [6] Y. Nagamune, Y. Arakawa, S. Tsukamoto *et al*, *Phys Rev Lett*, 1992, **69**: 2963
- [7] X. Q. Shen, M. Tanaka and T. Nishinaga, *J. Crystal Growth*, 1993, **127**: 932
- [8] T. Takebe, M. Fujii, T. Yamamoto *et al*, *J. Crystal Growth*, 1993, **127**: 937
- [9] K. Kumakura, J. Motohisa, T. Fukui, *J. Crystal Growth*, 1997, **170**: 700
- [10] 牛智川, 周增圻, 林耀望, 等, *物理学报*, 1997, **46**: 969
- [11] Z. C. Niu, Z. Q. Zhou, Y. W. Lin *et al*, *SPIE*, 1996, **2886**: 268
- [12] E. M. Clausen, Jr. E. Kapon, M. C. Tamago *et al*, *Appl Phys Lett*, 1990, **56**: 776
- [13] M. Krahl, E. Kapon, L. M. Schiavone *et al*, *Appl Phys Lett*, 1992, **61**: 813
- [14] T. Fukui, K. Kumakura, K. Nakaoshi *et al*, in *NATO ASI Series*, edited by K. Eberl *et al*, (eds), *Low Dimensional Structures prepared by Epitaxial Growth or Regrowth on Patterned Substrates*, 1995, 265~ 270
- [15] R. Notzel, J. Menniger, M. Ramsteiner *et al*, *Appl Phys Lett*, 1996, **68**: 1132
- [16] R. Notzel, M. Ramsteiner, J. Menniger *et al*, *Jpn. J. Appl Phys*, 1996, **35**: L297
- [17] R. Notzel, M. Ramsteiner, J. Menniger *et al*, *J. Appl Phys*, 1996, **80**: 4108
- [18] Z. C. Niu, R. Notzel, H. P. Schönherr *et al*, "Formation of nanostructured surfaces during molecular beam epitaxy on square shaped hole and mesa patterns on GaAs (311)A substrates", to be published in *J of Crystal Growth*

MBE Growth and Lateral Carrier Confinement Characterization of Triangular-Shaped Dot-Like Structure

Niu Zhichuan, Zhou Zengqi, Han Qin and Wu Ronghan

(National research center for optoelectronic technology, Institute of Semiconductors,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

R. Notzel, U. Jahn, M. Ramsteiner and K. H. Ploog

(Paul Drude Institut für Festkörperelektronik, Hausvogteiplatz 5-7, D-10117 Berlin, Germany)

Received 19 August 1997, revised manuscript received 19 November 1997

Abstract Highly ordered triangular-shaped dot-like (TD) structure has been obtained by Molecular Beam Epitaxy (MBE) on square hole patterned (311)A substrate for the first time. Three-dimensional atomic force microscopy (AFM) photography presents that the TD structure is developed between the original holes of the pattern and formed with tip-like structures, which are constructed of smooth {111}A facets and pointing [233] orientation. The low temperature Cathodoluminescence emissions excited at three different wavelengths corresponding to three identified regions of the TD structure reveal that the lateral band-gaps are induced by the QW thickness variations around the top portion of the TD structure. The spectra of micro photoluminescence further indicate that the three highly resolved peaks are originated from the three portions of the TD structure showing lateral barrier of 13meV between the top portion and the nearby smooth regions with efficient radiative recombination.

PACC: 6855, 7860H, 7855

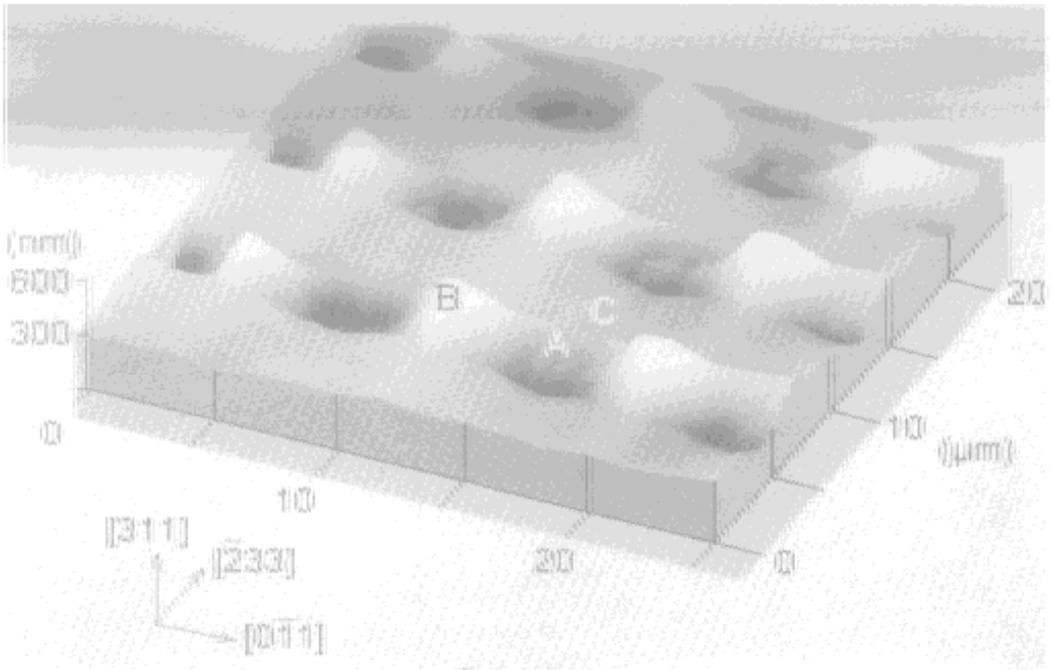


图 1 样品表面的原子力显微镜三维图象

三角形点结构位于原凹面之间, 尖角指向 $[233]$, 尖角侧面由 $\{111\}$ A 晶面构成
构成原凹面的 (111) A 侧墙面粗糙, 而点结构之间的条形区域为光滑表面

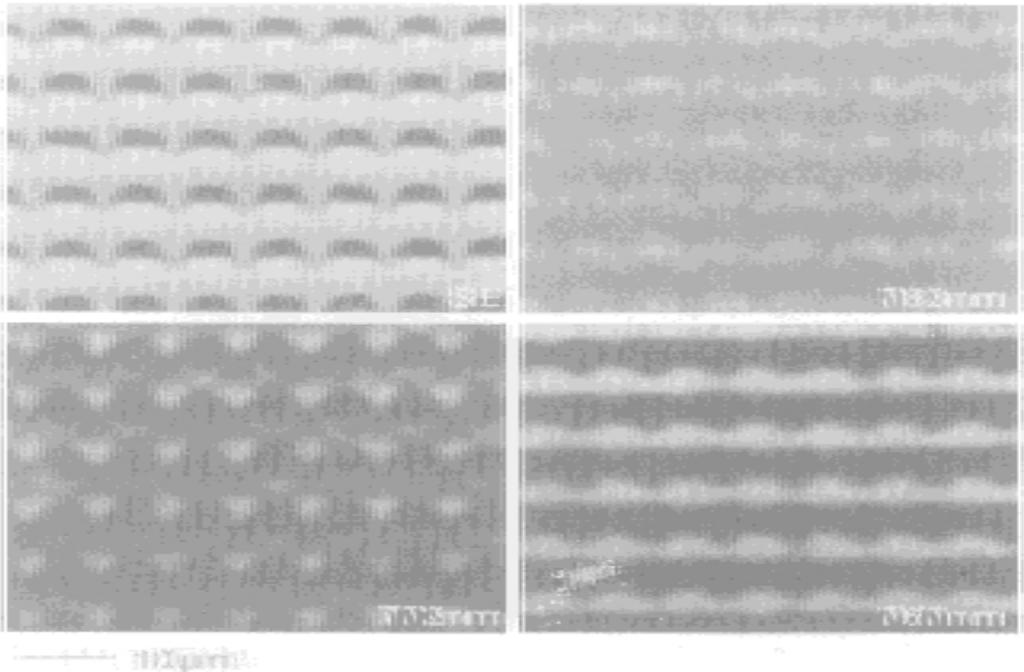


图 3 空间分辨阴极荧光发光图象测试结果