

自组织量子点的形成过程

于理科[†] 徐波 王占国 金鹏 赵昶 雷文 胡良均 刘宁

(中国科学院半导体研究所 半导体材料重点实验室, 北京 100083)

摘要: 利用分子束外延技术(MBE)生长了一个分布很不均匀的 InGaAs 量子点样品. 样品不同位置 InGaAs 的沉积量不同导致点的大小、密度分布不均匀. 这种分布恰恰对应着量子点形成的不同时期, 因此仅通过一个样品就可以把量子点的生长演变全过程展示出来. AFM 和 PL 测试表明: 随着 InGaAs 沉积量的增加, 量子点的密度显著增加, 量子点的尺寸分布渐趋均匀并倾向于一平衡值.

关键词: 量子点; AFM; PL 谱

PACC: 7855E; 7865P; 6855

中图分类号: TN304.2⁺3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2006)S0-0080-04

1 前言

自从 Amkawa 等人预言 QD 具有原子般的能态密度分布能够使激光器实现很低的阈值电流密度^[1]. 人们在量子点方面进行了很多的努力^[2~5]. 其中非常有前景的做法就是在应力层上运用 S-K 模式外延生长低维量子材料. 当沉积厚度不断增加时, 应变能也不断的积累, 导致生长模式由二维层状向三维岛状生长转变来释放应力. 三维岛非常小(5~30nm, 1~8nm 高)并且具有一定的均匀性(尺寸的大小分布一般可控制在 15% 以内). 由于这种三维岛表现出很强的三维量子限制效应, 因此称它为量子点. 这种结构仅在很窄的应力材料厚度(特征厚度)中出现, 低于这个厚度, 量子点不会出现, 比特征厚度厚很多时, 量子点之间会产生聚结, 形成大点和缺陷.

实验已经证明应力层的沉积厚度比其他的生长参数(衬底温度、生长速率、V/III 比)更能有效地影响 QD 的形貌^[6~8]. 通常, 研究量子点在整个生长过程中的演变规律是通过一系列分立的样品进行的. 在这些样品中, 量子点的沉积量保持单调的变化趋势. 然而, 这类实验的主要缺点是很难精确地控制沉积到每一个样品上的有效沉积物质量. 由于成点的有效沉积量区间很小(几个分子单层), 并且在成点的临界厚度值附近, 零点几个分子单层的沉积量就会导致点的密度成倍增加. 此外样品之间的可比性很差, 因此这种方法缺乏可重复性. 任何有关衬底温度以及 As 压的变化都会产生不同的实验结果.

基于以上原因, 本文侧重报道在保持其他生长

参数恒定的情况下, 研究在 GaAs(001)衬底上, InGaAs 量子点的生长演变与沉积材料厚度的关系. 通过长点过程中改变钼托的位置和停止样品转动, 形成一定沉积物质在衬底表面上沿单一方向逐渐增加的不均匀样品. 样品的不同位置对应量子点的不同形成时期, 这样就很好地克服了上述实验弊端. 通过 AFM 和 PL 谱对样品不同部位的测试, 系统研究了自组织量子点在整个形成过程中的演变规律, 给量子点的生长理论模型提供一套有效的实验结果支持, 为优化生长参数, 寻找最佳生长环境提供了一条捷径.

2 实验

材料生长系统为 Riber 32P MBE 系统, 样品衬底为(001)GaAs 衬底, 生长速率采用反射高能电子衍射仪校准, 生长全过程中 As₂ 压强始终保持在 6.67×10^{-4} Pa. 为了能够在同一样品中实现量子点沉积材料厚度的连续变化, 我们采用了一个 $5 \times 1.5 \text{cm}^2$ 的长条样品, 并将它贴在 75mm 钼托的中心位置. 生长量子点时, 把钼托的中心轴偏离标准位置达 13° 并停止旋转. 因为 In 炉和 Ga 炉的束流呈高斯分布, 导致 InGaAs 量子点层的沉积厚度从距 In 炉和 Ga 炉最近的衬底一端到距 In 炉和 Ga 炉最远一端逐渐减小.

具体的生长过程为: 首先在 580°C 脱去衬底氧化层后生长 100nm 的 GaAs 缓冲层, 然后降低衬底温度到 510°C 并停止衬底旋转生长 7ML 厚的 In_{0.5}Ga_{0.5}As 量子点层. 在生长这层量子点时, 采用 InAs (0.1ML/s) 和 GaAs (0.1ML/s) 循环沉积的方法并

[†] 通信作者. Email: yulike@red.semi.ac.cn

2005-12-08 收到

且在每次循环中引入生长停顿. 长完量子点仍保持温度 510°C 不变恢复衬底转动, 先覆盖 5nm 的 GaAs 以抑制 In 的偏析, 然后衬底温度迅速上升到 600°C 生长 95nm 的 GaAs. 之后, 温度降到 510°C , 在这层 GaAs 上完全重复上面的量子点生长条件, 生长一层 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 表面量子点以便于 AFM 测试所用. 整个生长过程由高能反射电子衍射 (RHEED) 进行原位监测. 当 InGaAs 的淀积厚度达到 4.5ML 时, RHEED 图案迅速以线状转变为点状.

我们采用 SPM Solver 47 型原子力显微镜在室温空气中对样品进行表面形貌测量, 该显微镜系 Si 针尖, 工作模式为接触模式. 对样品的光致发光 (PL) 测量是在自行设计的显微光路系统上进行的.

采用氩离子 514.5nm 线激发液氮冷却的 Ge 探测器探测.

3 结果与讨论

图 1 显示了样品不同位置的 AFM 像. 图中的 (a), (c), (d), (e) 排列顺序为样品 InGaAs 淀积厚度从小到大的变化顺序. 图 1(a) 中, InGaAs 薄层的厚度略微大于成点的临界厚度, 可以看到, 图中量子点的密度很低, 为 $2.0 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, 平均高度为 3.8nm , 平均横向尺寸为 32.6nm , 并且这些点的分布极不均匀对称. 图 1(b) 为与图 1(a) 同一位置的三维图, 可见, 该区域 InGaAs 层的厚度分布极不平整, 出现了高高低低的大块面积起伏.

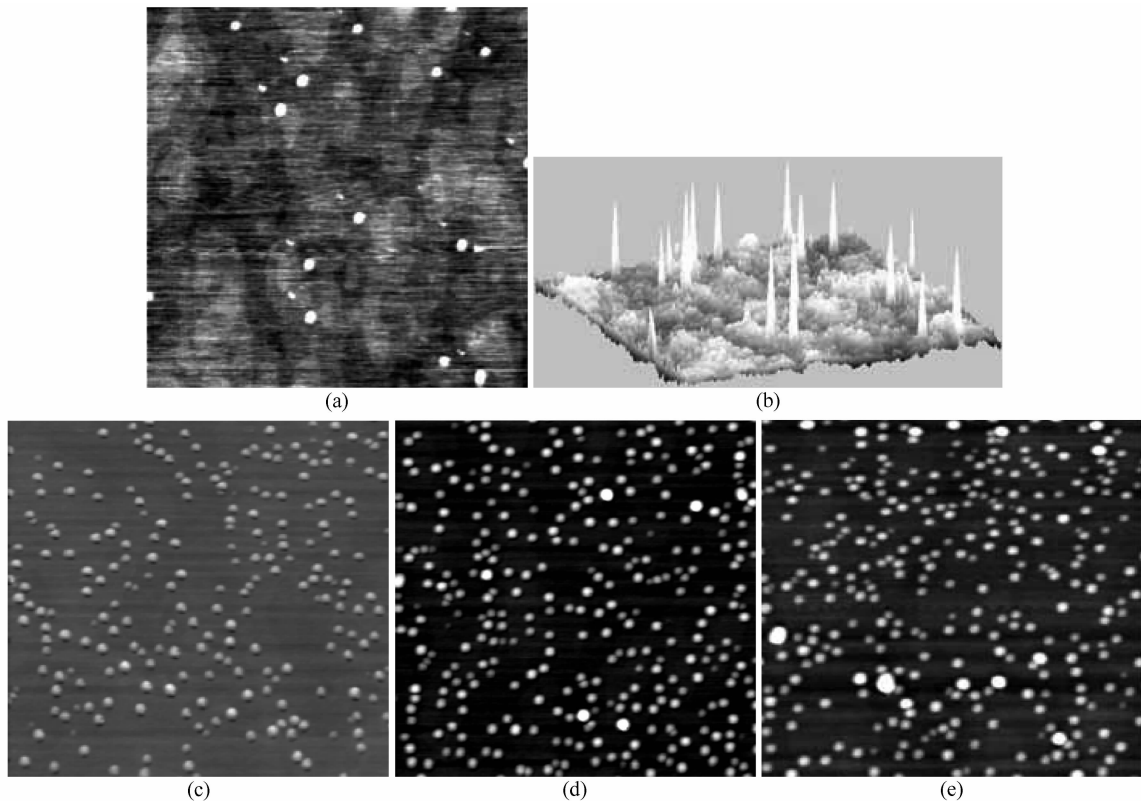


图 1 样品不同位置的 AFM 像 ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$) (a), (b) 同一位置的二维和三维像, 其面密度为 $3 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$; (c), (d) 和 (e) 其他三个不同位置的 AFM 像, 面密度分别为: $2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$, $6.9 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$, $8.1 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$

Fig. 1 AFM images ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$) in different parts of the sample (a), (b) 2-dimensional and 3-dimensional images of the same position which have a QD density of $3 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, respectively; (c), (d), (e) AFM images of three other position where their density are $2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$, $6.9 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$, and $8.1 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$, respectively

图 1(c) 是取样于离图 1(a) 6mm 远的一个位置, 从图中可以看到样品表面平整性有了很大改善, 量子点的密度显著增加, 达到 $2.3 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$. 量子点平均高度为 2.7nm , 平均横向尺寸为 29.6nm . 但

是量子点的大小分布很不均匀, 小点 (称作 QD1) 和大点 (称作 QD2) 的对比很明显, 尤其是小点, 高度在 1nm 左右, 应为量子点的最初成核阶段.

图 1(d) 是一个生长位置距离 In 炉 1cm 的样

品,量子点的密度进一步提高达到 $6.9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 平均高度和横向宽度达到 4.1nm 和 39.7nm. 比较图 1(c), 形貌最明显的变化是图中对应的小点获得了快速的生长而大点生长缓慢, 即出现了 QD1 向 QD2 的转变. 因此整个图片是成熟的大点占主导地位.

图 1(e) 是一个生长位置正对着 In 炉的样品, 从量子点统计结果看, 除了量子点的密度较图 1(d) 有所增加达到了 $8.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 外, 量子点的平均高度和横向宽度变化很小, 分别为 4.2 和 40.2nm. 说明量子点的尺寸大小分布起伏很小并已趋于固定区间值, 即绝大多数的点已经生长成熟并且有着相近的尺寸大小. 从其 AFM 图还可以推测此时点的密度已基本达到饱和, 因为已出现少量聚结的大点.

通过对样品不同位置的 AFM 像分析可知: 量子点开始形成阶段, 其大小(高度和横向尺寸)分布范围广, 分布位置无规则, 对应于样品中的应变剧烈区域, 因为这些量子点是应变积累到一定程度得以释放的结果. 从图 1(b) 的三维分布图中可以看到这些位置位于表面起伏的鼓包处. 随着材料淀积厚度的增加在样品的不同位置出现更多的应力积累, 因此产生更多的量子点. 并且随着系统的进一步演化, 量子点的大小趋向于一个固定的分布区间, 亦即绝大多数点都呈现相近的尺寸大小. 量子点的这种演化行为说明: 当点的密度很低 ($< 10^9 \text{ cm}^{-2}$) 时, 量子点的生长是彼此孤立的, 此时量子点的大小取决于成核位置持续增加的淀积材料量的多少. 随着量子点物质的不断淀积, 量子点的密度迅速增加, 相邻量子点之间相互作用, 使得整个生长体系向一种平衡状态演变. 也就是说, 在最开始成点的阶段, 新增加的 In 用于形成新岛和增加这些岛的尺寸. 但是, 一旦量子点的密度达到某一特征值(例如本实验的 $6.9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 左右), 量子点间由于间隔变小相互影响效应加强, 新增加的淀积材料主要用于增长小岛和阻止大岛的进一步增大.

我们对上述作 AFM 测试的样品部位进行了 PL 测试, 如图 2 所示. 从图 2 中可以看到激光能量从低到高分别对应三个峰: 处于 1.0~1.3eV 区间的峰(峰 1)为量子点的发光峰(对于曲线 a, 更确切地说应为量子点以及高低起伏的二维岛的整体发光效果), 能量位于 1.35eV 附近的峰(峰 2)为浸润层发光, 能量位于 1.42eV 附近的峰(峰 3)为 GaAs 体材料发光. 理由如下: 峰 1 位于低能处, 并且发光强度最大(在图 2b, c, d 中它远大于峰 2 和峰 3), 考虑到该量子点为 InGaAs 材料以及量子点对电子的三维限制效应, 可以确定为量子点发光.

峰 2 与峰 1 很靠近, 在图 2 谱线 a 中, 量子点很少, 可以清楚看到峰 2, 但随着量子点的增多, 如图 2

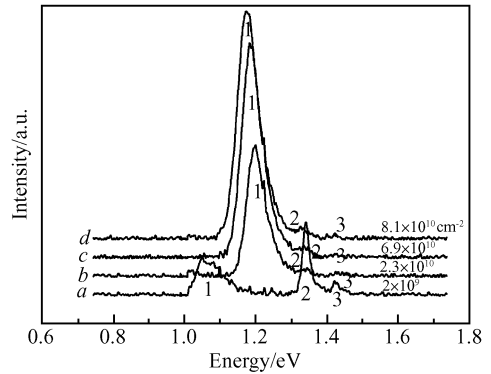


图 2 室温下, 样品中对应图 1 AFM 照片位置的 PL 测试结果曲线 a, b, c, d 分别表示点的密度为: 2.0×10^9 , 2.3×10^{10} , 6.9×10^{10} , $8.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Fig. 2 PL results of the same position in Fig. 1 at room temperature. The QD density for curves a, b, c, and d are 2.0×10^9 , 2.3×10^{10} , 6.9×10^{10} , and $8.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, respectively.

的 b, c, d 所示, 峰 2 急剧下降并最终消失. 这是量子点与浸润层间辐射复合通道相互竞争的结果. 当量子点密度很小时, 仅有很小的一部分光生电子空穴对可以被量子点俘获, 进行辐射复合发光, 更多的光生电子空穴对则是通过浸润层俘获发光. 当量子点的密度进一步提高时, 足够数量的量子点可以完全容纳新产生的光生电子空穴对, 这时量子点成为主要的辐射复合通道, 浸润层发光淬灭. 从图 2 还可以观测到, 量子点发光峰的强度随点密度增大而显著增高, 说明有更多的量子点参与发光. 点的峰位略有红移, 说明参与发光的点的大小在增大, 这是因为更多的 QD1 不断生长变大转化成 QD2.

从以上分析可以清楚地看到采用这种生长方式研究量子点形成演变的优点: 一方面, 仅用一个样品就把量子点从开始成核到最后成熟聚结的全过程连续呈现于样品的不同位置, 并且这些位置对应的是完全相同的生长环境; 另一方面, 它对研究量子点的最初形成阶段意义重大. 因为在量子点的最初形成阶段, 点的密度很低, 采用传统的生长方法很难实现.

4 结论

运用 MBE 技术成功生长了一个不均匀的 In-GaAs 量子点样品. 通过 AFM 和 PL 谱的测量, 很好地揭示了量子点不同生长阶段的体系连续演变过程. 研究表明, 量子点生长的初始阶段, 点的大小没有规则, 样品表面很不平整. 但随着淀积材料物质的增加, 量子点的大小尺寸趋于一个稳定值. 新增加的淀积材料主要用于增长小岛和阻止大岛的进一步增大.

参考文献

- [1] Arakawa Y, Sakaki H. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Appl Phys Lett*, 1982, 40: 939
- [2] Ustinov V M, Malec N A, Zhukov A E, et al. InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at 1.3 μm . *Appl Phys Lett*, 1999, 74(19): 2815
- [3] Saucedo-Zeni N, Gorbachev A Y, Méndez-García V H. Improvement on the InAs quantum dot size distribution employing high-temperature GaAs(100) substrate treatment. *J Vac Sci Technol B*, 2004, 22: 1503
- [4] Ruvimov S, Wemer P, Scheerschmidt K, et al. Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix. *Phys Rev B*, 1995, 51: 14766
- [5] Leonard D, Krishnamurthy M, Fafard S, et al. Molecular-beam epitaxy growth of quantum dots from strained coherent uniform islands of InGaAs on GaAs. *J Vac Sci Technol B*, 1994, 12: 1063
- [6] Howe P, Abbey B, Le Ru E C, et al. Strain-interactions between InAs/GaAs quantum dot layers. *Thin Solid Films*, 2004, 464/465: 225
- [7] Kim M D, Lee D H, Kim T W, et al. Formation process for and strain effect in InAs quantum dots grown on GaAs substrates by using molecular beam epitaxy. *Solid State Commun*, 2004, 130(7): 473
- [8] Ebiko Y, Muto S, Suzuki D, et al. Volume distributions of InAs/GaAs self-assembled quantum dots by Stranski-Krastanow mode. *J Cryst Growth*, 1999, 201/202: 1150

Formation Process of S-K Quantum Dots

Yu Like[†], Xu Bo, Wang Zhanguo, Jin Peng, Zhao Chang, Lei Wen, Hu Liangjun, and Liu Ning

(Key Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: We grow a single highly inhomogeneous sample of InGaAs quantum dots (QD). The fact that the thickness of the InGaAs layer varies in sample's different regions leads to an inhomogeneous distribution of QD's size and density. Such a distribution is well in accordance with the different periods of QD's formation, which gives us a best view of the whole process of QD's evolution through a single sample. Atomic force microscopy and photoluminescence spectra show that the size (height and diameter) of the quantum dots becomes narrower and tends to be an equilibrium value when the amount of InGaAs increases.

Key words: quantum dot; AFM; PL

PACC: 7855E; 7865P; 6855

Article ID: 0253-4177(2006)S0-0080-04

[†] Corresponding author. Email: yulike@red.semi.ac.cn

Received 8 December 2005