

应变自组装 InAs/GaAs 量子点材料与器件光学性质研究*

钱家骏¹ 徐 波¹ 陈涌海¹ 叶小玲¹ 韩 勤² 王占国¹

(1 中国科学院半导体研究所 半导体材料科学实验室, 北京 100083)

(2 中国科学院半导体研究所 国家光电子工艺中心, 北京 100083)

摘要: 采用 MBE 技术生长应变自组装 InAs/GaAs 量子点微结构材料, 以这种纳米尺度微结构材料作有源层制备出激光二极管. 研究了材料的光致发光和器件电致发光的特性. 条宽为 $100\mu\text{m}$ 、腔长为 1.6mm 、腔面未经镀膜量子点激光二极管, 室温下最大光功率输出为 2.74W .

关键词: 应变自组装量子点; 电致发光谱; InAs 量子点结构; 量子点激光器; MBE 生长

PACC: 4255P; 7320D; 7855E

中图分类号: O433.2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2003)S0-0051-05

1 引言

早在上世纪八十年代初, 日本东京大学的 Arakawa 和 Sakaki^[1] 在理论上预计, 晶体尺度达到纳米量级时, 将与载流子德布罗依波长相当, 这时, 载流子将受到三维量子限制, 电子(和空穴)的状态密度函数变成类似于单个稀薄气体原子时的 δ 函数分布. 载流子分布随温度变化引起的热扩散应该很小. 以这种纳米晶体作有源区的激光二极管——量子点激光器, 会有极低的阈值电流密度、极高的微分增益、高的特征温度(T_0)、宽的频带响应以及可抑制线性调频脉冲(chirp)工作等优越特性. 尽管早在二十年前理论上已经预言量子点激光器将会具有这些优越特性, 但在相当一段时间内, 未能实现真正的量子点激射, 主要原因是没有一种实际可行的纳米材料生长制备技术, 能够获得尺寸、形态均匀和高密度无缺损(位错)的量子点材料. 虽然在上世纪八十年代中期, 已经有了可以制备出高质量量子点材料的生长技术, 但由于种种原因, 一时未受到重视. 直

到上世纪九十年代初, 在其他方法均不能获得满意的量子点材料后, 此项技术才又为人们所重视, 并使量子点材料的质量获得重大突破, 真正实现了量子点能级的激射. 这项技术就是应变自组装量子点材料制备技术.

本文采用分子束外延(MBE)技术, 生长出应变自组装 InAs/GaAs 量子点微结构材料, 并制备出量子点激光二极管(LD). 研究了不同温度下量子点材料的光致发光(PL)和器件的电致发光(EL)特性, 对所获实验结果进行了讨论.

2 实验方法

本研究采用固态源 MBE(Riber-32P)系统生长纳米量子点异质结微结构材料. 在 n^+ -GaAs(100)衬底上先生长出 n^+ -GaAs 缓冲层(厚度 $0.5\mu\text{m}$, 掺 Si, $n = 2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$), 然后生长 $1\mu\text{m}$ 厚 n^+ -Al_{0.5}-Ga_{0.5}As 限制层($n = 2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)和 $0.4\mu\text{m}$ 的 Al_xGa_{1-x}As ($x = 0 \sim 0.5$), 折射率缓变分别限制(GRIN SCH)波导层. 按 S-K 模式自组装生长 InAs

* 国家重点基础研究发展规划项目(No. G2000068303)、国家自然科学基金(批准号: 60076024 和 90101002)和中国科学院(No. KJCX1-06-06)资助项目

徐 波 男, 高工, 从事 MBE 材料生长与性质研究.

陈涌海 男, 副研究员, 从事半导体材料物理研究.

量子点(QD)有源层,共计五层堆垛,位于波导层中心.接着再生长 $1\mu\text{m}$ 厚 $\text{p-Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 限制层和 $0.3\mu\text{m}$ $\text{p}^+\text{-GaAs}$ 盖层,如图1所示.

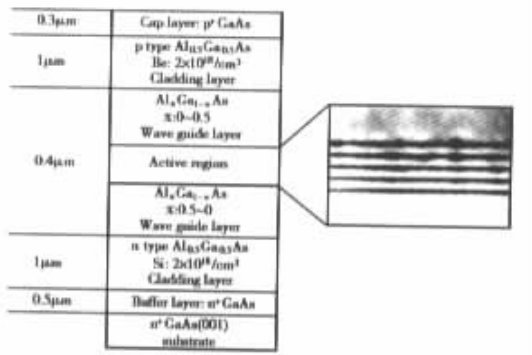


图1 样品结构示意图 插图为 InAs/GaAs QD 五层堆垛 TEM 像

Fig. 1 Schematic diagram of laser structure with five sheet of InAs/GaAs quantum dots. The inset shows multilayer QD structure from cross-section TEM images.

量子点激光二极管的制备:在样品的 p 面上生长 SiO_2 绝缘介质膜(厚约 150nm).利用光刻工艺刻出 $100\mu\text{m}$ 宽度条形发光区,接着溅射 $\text{Ti}/\text{Pt}/\text{Au}$ 形成 p 面欧姆接触.片子再从背面(n 面)减薄至约 $100\mu\text{m}$ 厚度,蒸发 $\text{Au}/\text{Ge}/\text{Ni}$ 并在 400C 下合金化,形成 n 面欧姆接触.器件解理成条宽 $100\mu\text{m}$ 、腔长从 $500\mu\text{m}$ ~ $2400\mu\text{m}$ 的LD器件,端面未经镀膜处理.

检测:对未生长盖层的 InAs/GaAs 量子点结构进行原子力显微镜(AFM)观察,量子点平均高度约 4.5nm ,平均横向尺寸约 30nm ,密度为 $1.4 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$.光学检测是将量子点材料或LD器件安装在闭循环氦低温制冷机冷端上,用IFS-120HR傅里叶变换红外光谱仪,在FTPL模式下测量不同温度材料的光致发光(PL)和LD器件的电致发光(EL)谱.

3 结果与讨论

图2示出 15K 和 77K 下样品的PL谱.从图可见,在低激发强度(图2(a),(c))下,PL谱只有一个低能峰(基态 E_0),随激发强度逐渐增加,在低能峰(E_0)的高能侧依次出现新的峰(激发态 $E_1, E_2 \dots$).经用高斯线型拟合后,在 15K 下观察到位于 E_0 (1.270eV)、 E_1 (1.307eV)、 E_2 (1.342eV)和 E_3 (1.375eV) (图2(b))四个峰, 77K 下则分别位于

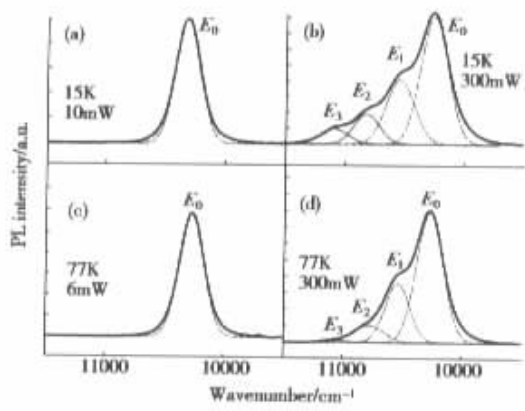


图2 15K 和 77K 下不同激发光强的PL谱

Fig. 2 Photoluminescence (PL) spectra of QD structure with etched off top contact layer for various photo-excitation levels. The solid curves are experimental results and the dashed-dot curves are of a Gaussian fit to the experimental data. The features labeled E_0, E_1, E_2 and E_3 indicate transitions associated with the QD ground state and the first, the second and the third excited states, respectively.

E_0 (1.274eV)、 E_1 (1.307eV)、 E_2 (1.337eV)和 E_3 (1.372eV).随着激发强度的增加,PL谱总积分强度线性增加(图3(a)). 77K 下谱峰能量随激发强度的关系如(图3(b))所示.从图可知,基态 E_0 峰位基本保持不变($\Delta E_0 \leq 0.5\text{meV}$),而激发态峰位随激发强度增加而蓝移,并且激发态越高,蓝移越大($\Delta E_1 \approx 10\text{meV}$, $\Delta E_2 \approx 32\text{meV}$, $\Delta E_3 \approx 52\text{meV}$),表明注入的光生载流子,首先是填充到量子点的最低能态——基态(E_0)能级,但由于基态能级的简并度要较激发态的简并度小,因而随激发光强度增加,光生载流子浓度增加,基态能级很快饱和,与此同时载流子逐渐向较高的激发态能级($E_1, E_2 \dots$)填充^[2,3].而且由于量子点的尺寸大小有一定分布,使量子态能级展宽;此外,较高激发态能级的简并度大,占据到激发态上的载流子浓度增加,载流子之间由于库仑排斥作用,使激发态能级升高,即激发态光谱峰的能量随激发光强度增加而“蓝移”,而且高激发态 E_2, E_3 峰位蓝移更为明显(图3(b)).

图4(a),(b)分别示出 15K 和 77K 下 E_0, E_1, E_2 和 E_3 能级PL峰的线宽.图中示出,随着激发光强度的增加,基态(E_0)发光峰的线宽(FWHM)基本保持在 $\sim 31.5\text{meV}$ (15K)和 $\sim 31\text{meV}$ (77K);第一激

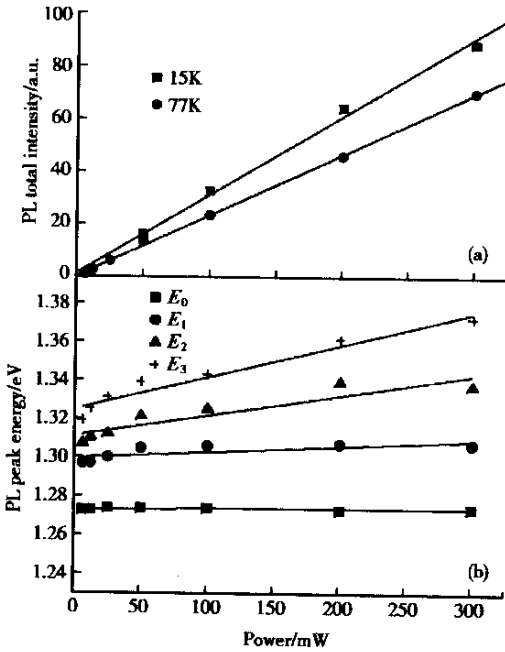


图 3 (a) 15K 和 77K 下 PL 总积分强度与激发光强的关系；(b)77K 下量子点不同子带能级与激发光强的关系
Fig. 3 (a) Total photoluminescence (PL) intensity of QD structure at 15K and 77K as a function of photo-excitation power; (b) PL peak energy of E_0, E_1, E_2 and E_3 states versus photo-excitation power at temperature of 77K

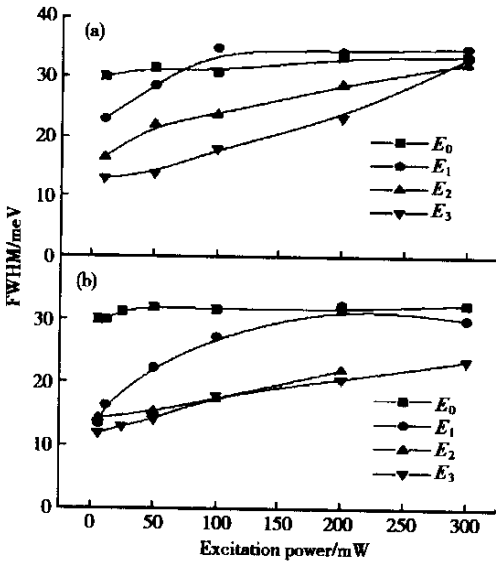
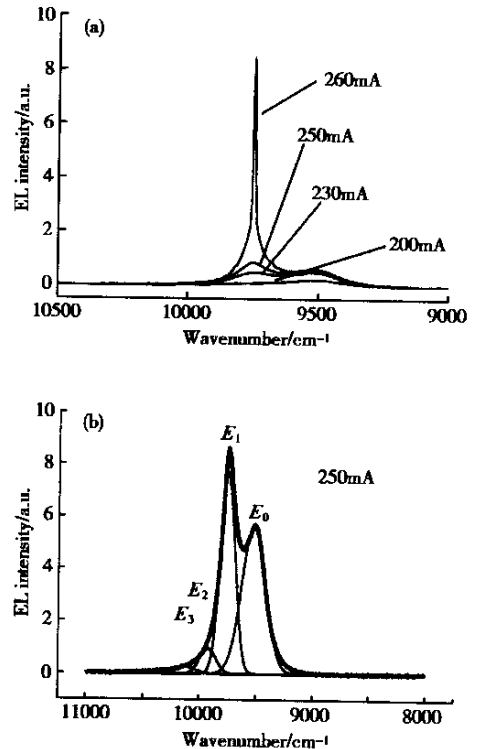


图 4 不同温度下 PL 峰线宽(FWHM)与激发光强度的关系 (a)15K;(b)77K
Fig. 4 PL peak widths (FWHM) of E_0, E_1, E_2 and E_3 states as a function of photo-excitation powers at temperature of 15K (a) and 77K (b)

发态 E_1 发光峰的线宽(FWHM)随激发光强度的增加而增加. 当激发光强度大于 100~120mW 后, 线宽基本不变(15K: ~32meV; 77K: ~30.5meV); 第二和第三激发态(E_2, E_3)发光峰的线宽, 则随激发光强度的增加而增加. 在本实验的条件下, E_2, E_3 发光峰的线宽尚未达到饱和值. 表明在 15K 和 77K 下, E_2 和 E_3 能级并未完全被载流子填充饱和. 此外, 通常 InAs/GaAs 量子点材料的线宽在 30~70meV, 而本实验中材料光致发光峰的线宽在 30~32meV ($\leq 77K$ 时), 表明量子点的尺寸形状及成分的均匀性是较好的.

条宽 100 μm 、腔长 800 μm 的 LD 器件, 在 253K 下不同注入电流强度的 EL 谱示于图 5(a). 从图可知, 随注入电流的增加, 在基态峰的高能侧依次出现不同的激发态峰. 用高斯线型峰拟合的结果如图 5(b)所示, 注入电流为 250mA. 从图中可以清楚地分



辨出基态和激发态四个发光峰. 每个峰的发光强度 (以单个谱峰面积与总谱峰面积的相对百分比计算), 随注入电流增加而变化(图 6): 基态(E_0)的发光强度随注入电流增加而线性降低; 激发态(E_1, E_2, E_3)则随注入电流增加而线性增加. 当注入电流增加到 260mA 时, 激发态 E_1 开始激射 ($J_{th} \approx 325 \text{ A/cm}^2$) (图 5(a)). 在样品的 PL 谱中, 总发光强度是与

图 5 253K 下不同注入电流时,LD 器件的电致发光谱(a)和高斯线型峰拟合结果(b) LD 器件条宽 $100\mu\text{m}$,腔长 $800\mu\text{m}$,腔面未经镀膜处理.

Fig. 5 (a) Emission spectra at various injected currents of QD laser with $800\mu\text{m}$ cavity length and $100\mu\text{m}$ wide strips (uncoated facets) showing lasing occurring of the first state transition at 253K; (b) Result of a Gaussian fit (thin curves) to the experimental data (thick curves) of 250mA

激发光强度成直线关系;但在 LD 器件的 EL 谱中,总输出光强度是与注入电流成指数关系,如图 7 所示.这与器件的增益特性相符.当器件的腔长为 1.6mm 时,量子点基态 E_0 在室温下实现连续波激光,阈值电流密度为 $221\text{A}/\text{cm}^2$,激光波长为 $1.08\mu\text{m}$,最大输出光功率达 2.74W (双面).从器件的外量子效率 η_d 的倒数与腔长关系,得出材料的内吸收系数为 2.0cm^{-1} ,内量子效率(η_i)达 87% .这样高的内量子效率,表明本实验中生长的纳米微结构材料的质量是较好的,这与在 PL 谱中得到较小的 PL 线宽的结果是一致的.

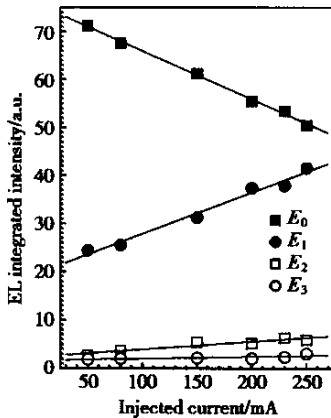


图 6 253K 下量子点基态与激发态 EL 发光的相对强度与注入电流关系 LD 器件条宽 $100\mu\text{m}$,腔长 $800\mu\text{m}$,腔面未镀膜.

Fig. 6 Integral electroluminescence (EL) intensity dependence with injected current at 253K for E_0, E_1, E_2 and E_3 states, respectively The laser diode is of $100\mu\text{m}$ wide strips and of $800\mu\text{m}$ cavity length with uncoated facets.

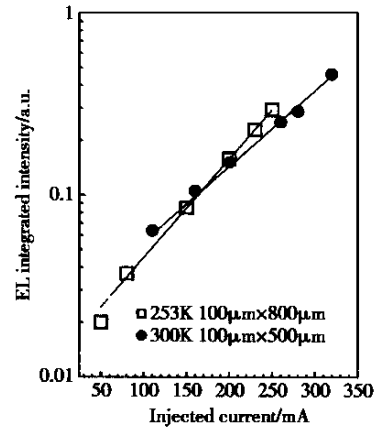


图 7 不同腔长 LD 器件,电致发光总强度与注入电流关系

Fig. 7 Integral electroluminescence (EL) intensities versus injected current at various temperature for $100\mu\text{m}$ wide strips laser diodes

4 总结

利用 MBE 生长技术,在 S-K 模式下生长出应变自组装 InAs/GaAs 量子点材料,并制成以 InAs/GaAs 量子点材料为有源区的激光二极管.在条宽为 $100\mu\text{m}$,腔长为 1.6mm 时,实现了室温下量子点基态的连续波激光.

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(11): 939
- [2] Raymond S, Guo X, Merz J L, et al. Excited-state radiative lifetimes in self-assembled quantum dots obtained from state-filling spectroscopy. Phys Rev B, 1999, 59(11): 7624
- [3] Mukai K, Ohtsuka N, Shoji H, et al. Phonon bottleneck in self-formed $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots by electroluminescence and time-resolved photoluminescence. Phys Rev B, 1996, 54(8): R5243

Optical Characteristics of Strained Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dot Materials and Laser Diodes^{*}

Qian Jiajun¹, Xu Bo¹, Chen Yonghai¹, Ye Xiaoling¹, Han Qin² and Wang Zhanguo¹

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

(2 *National Research Center for Optoelectronic Technology, Institute of Semiconductors, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract: Photoluminescence (PL) and electroluminescence (EL) properties of strained self-assembled InAs/GaAs quantum dots (QDs) structure grown by molecular-beam epitaxy technique are presented. A comparative analysis is made of optical characteristics for laser diodes emitting at $1.08\mu\text{m}$ with InAs/GaAs QDs in the active region. The maximum CW output of 2.74W (two facets) and internal quantum efficiency of 87% are achieved at room temperature in $100\mu\text{m}$ wide strips and 1.6mm cavity length laser diode with uncoated facets.

Key words: strained self-organized quantum dots; electroluminescence spectra; InAs quantum dots; quantum dot lasers; molecular beam epitaxy

PACC: 4255P; 7320D; 7855E

Article ID: 0253-4177(2003)S0-0051-05

^{*} Project supported by Special Fund for Major State Research Project of China (No. G2000068303), National Natural Science Foundation of China (Nos. 60076024, 90101002) and The Chinese Academy of Sciences (No. KJCX1-06-06)

Xu Bo male, senior engineer. His major interest is in semiconductor materials growth by MBE and their properties.

Chen Yonghai male, associate professor. His major interest is in physics of semiconductor materials.

Received 16 September 2002, revised manuscript received 15 October 2002

©2003 The Chinese Institute of Electronics