DOI: 10.13718/j. cnki. xdzk. 2017.03.018

As 压调制的 InAlAs 超晶格对 InAs 纳米 结构光学特性的影响[®]

谷云高1, 杨新荣1, 周晓静1, 徐 波2, 王俊忠3

邯郸学院 机电学院,河北 邯郸 056005; 2. 中国科学院 半导体研究所半导体材料重点实验室,北京 100083;
西南大学 物理科学与技术学院,重庆 400715

摘要:利用固源分子束外延(MBE)设备生长出 InAs/InAlAs/InP(001)纳米结构材料,探讨了 As 压调制的 InAlAs 超晶格对 InAs 纳米结构光学特性的影响.结果表明,As 压调制的 InAlAs 超晶格能有效地调整 InAs 纳米结构的形 貌特性、发光峰位,改善发光线宽,提高辐射效率,从而有利于其在长波长光电器件方面的应用.

关键词: InAlAs 超晶格; InAs 纳米结构; 光学特性

中图分类号: O47 文献标志码: A 文章编号: 1673-9868(2017)03-0115-05

1.3~1.55 μm 波段对应着石英玻璃光纤的低色散低损耗窗口,这一波段的激光器和探测器是光纤 通讯系统最核心的光电子器件.而目前光纤通讯中使用的1.55 μm 光电子器件仍主要为 InGaAsP/InP 量 子阱激光器,由于 InGaAsP/InP 的导带带阶小,使其器件温度特性较差,为改善其温度特性所需的工艺 代价较大.量子点(线)材料由于其δ函数型的态密度使其有着比量子阱器件更优的特性,这已在 GaAs 基量子点材料体系中得到了很好的体现:如低的阈值电流和高的特征温度等^[1-3].因此,有关 1.55 μm InP 基 InAs 量子点(线)材料及其激光器的研究成为人们广泛研究和探索的对象.

但由于 InAs/InP 的失配度较低、InAs 各向异性的应力弛豫^[4]、InAs 与缓冲层之间的可能的合金化^[5] 及外延过程中缓冲层强烈的相分离^[6]等原因,使得 InP 衬底上纳米结构的形成机制非常复杂.量子点尺寸和分布的均匀性问题也是一个很大的问题,量子点的不均匀性直接影响了量子器件性能^[7-9],比如由于尺寸和分布不均导致的发光峰宽、发光峰位随温度红移、发光强度随温度淬灭等.因此,为了更好地利用低维结构的光学和电学性质,提高器件性能,必须深入研究 InP 基材料的生长机制,进而实现通过改进生长条件来达到优化结构和改善材料性能的目的.

MBE 法生长 III-V 族材料时,As 压是一个非常关键的因素,它的大小影响 III-V 族材料的表面再构, 从而影响 InAs 纳米结构的尺寸、形状和分布,进而影响纳米结构材料的光学和电学特性.本研究主要分析 不同周期的 As 压调制的 InAlAs 超晶格对 InAs/InAlAs/InP 纳米结构材料光学特性的影响.

1 样品结构及生长制备

图 1 为本研究设计样品的基本结构, 4 个样品分别含有 0,2,4,6 个周期的 As 压调制的 InAlAs 超晶格. 所有的样品都是在固源分子束外延(MBE)系统中进行. 衬底全部采用半绝缘 InP 衬底, 生长过程中钼托高 速旋转以增加样品生长的均匀性.

① 收稿日期: 2016-02-24

基金项目:国家自然科学基金(60990315);国家重点基础研究发展规划项目(2006CB604904);河北省科学技术研究与发展指导项目 (Z2010112);河北省科技支撑计划项目(10213936,10213938);邯郸学院博士科研启动经费项目(2009002).

作者简介:谷云高(1973-),男,河北邯郸人,副教授,主要从事材料物理和半导体薄膜方面的研究.

InAs 量子点 500 ℃ 4ML 0.1Ml/S
InAlAs 超晶格 510 ℃ 2 nm 0.6 µm/h
InAlAs 盖层 510 ℃ 200 nm 0.6 µm/h
InAs 量子点 500 ℃ 4 ML 0.1Ml/S
InAlAs 超晶格 510 ℃ 2 nm 0.6 µm/h
InAlAs 缓冲层 510 ℃ 300 nm 0.6 µm/h
InP 衬底

图1 样品结构示意图

具体生长过程为:首先脱去衬底氧化层,然后依次是:300 nm 的 InAlAs 缓冲层,As 压调制的 InAlAs 超晶格,对于 4 个样品(G288,G289,G226 和 G225)超晶格周期数分别为 0,2,4,6,其中每 个超晶格周期含有 2 nm 的缺 As 的 InAlAs 和 2 nm 富 As 的 InAlAs 层,缺 As 的 InAlAs 层生长 As 压 为 9.4×10⁻⁵ Pa,富 As 的 InAlAs 层生长 As 压为 5.4×10⁻⁴ Pa,其他生长条件两层保持一样.然后 是 4ML 的 InAs 层,最后是 200 nm 的 InAlAs 盖层.为了原子力测试,盖层表面上再沉积 4ML 的 InAs.整个生长过程中,InAlAs 层的生长温度为 510 ℃,InAs 层生长温度为 500 ℃.在 InAs 生长前后 10 秒的生 长停顿是为了稳定表面.

2 InAs 纳米结构表征及其光学特性

图 2 为 4 个样品表面典型的 1 μm×1 μm 原子力显微镜像,由图 2 中可以清楚地看到,随 As 压调制的 InAlAs 超晶格周期数的增加,InAs 纳米结构形貌发生了很大的变化.0 个周期的 InAlAs 超晶格也就是在 传统的 InAlAs 缓冲层上生长 InAs 时形成沿[-110]方向延长的量子线;InAlAs 超晶格的周期数增加到 2 时,形成了沿[-110]方向延长的量子线和量子点的混合结构;4 个周期时,观察到了椭圆型的量子点,椭 圆的长边沿[-110]方向;最后,当进一步增加 InAlAs 超晶格的周期数到 6 时,我们观察到了圆型的、尺 寸分布均匀的、高密度的 InAs 量子点.文献[10]从理论上解释了引入 As 压调制的 InAlAs 超晶格后,生长 的自组织 InAs 纳米结构的成核和形貌演化机制.我们认为,InAs 纳米结构的最终形貌主要由 InAlAs 层的 表面相分离引起的各向异性应变分布和 In 吸附原子的各项异性扩散所决定.



(a)0个周期的超晶格

(b) 2个周期的超晶格



(c) 4个周期的超晶格

(d) 6个周期的超晶格

图 3 为 4 个样品室温光致发光谱(PL),样品光学性质的表征在 IFS 120 HR 傅里叶变换红外光谱仪上 光源为 Ar+离子激光器的 514.5 nm 谱线,探测器为 InGaAs. 对应于 0,2,4,6 个周期样品的 PL 谱的峰位 分别为: 1.381,1.576,1.560,1.529 µm. 同时,在 0 个周期时 PL 谱低能边有一峰,高斯拟合后显示中心峰 位为 1.432 µm.考虑到量子点的垂直高度远小于其横向尺寸,量子限制效应主要由垂直方向上的高度所决 定,即 PL 谱的发光峰位主要决定于量子点的高度^[11].因此,1.432 µm 应该为高度较大的量子线发光.4 个 样品的室温辐射效率被估算,分别为 1.2×10⁻⁴,1.63×10⁻⁴,1.47×10⁻⁴,1.85×10⁻⁴/mW 对应样品分别 为 0,2,4,6 个周期的样品,数据显示 6 个周期的量子点样品具有最高的室温辐射效率,它的辐射效率是传 统 InAlAs 缓冲层上生长 InAs 量子线辐射效率的 1.5 倍.说明引入缺 As 的 InAlAs 层不会在材料中引入非 辐射复合中心.为了进一步评价 4 个样品中 InAs 纳米结构的尺寸均匀性,分别测了 4 个样品在 15 K 时的 PL 谱(图 3(b)).从图 3 中室温和低温 PL 谱中,可以看到对于 0 个周期的样品,PL 谱的谱型含有多峰结 构,其他 3 个样品的峰谱型都表现为高斯型分布.室温变功率 PL 谱(图 4)显示,随功率增加 4 个样品的谱 型没有变化,可认为零个周期样品 PL 谱的多峰结构及其他 3 个样品谱型都是由于 InAs 纳米结构尺寸波动 引起的,因此窄的半高宽表明 InAs 纳米结构尺寸的均匀性.





本实验中,4个样品的 PL 谱的半高宽分别为:108,124,138,116 meV,分别对应于 0,2,4,6 个周期 的 As 压调制的 InAlAs 超晶格.数据显示传统的 InAlAs 缓冲层上生长的 InAs 量子线结构的低温半高宽 最小, 表明在本研究采用的生长条件下, InAs 量子线的尺寸分布较均匀. 引入了 6 个周期的 As 压调制 的 InAlAs 超晶格样品的低温 PL 谱的半高宽仅次传统的 InAlAs 缓冲层上生长的 InAs 量子线结构的 PL 谱的半高宽,这表明本研究所设计的超晶格有利于提高 InAs 纳米结构尺寸均匀性.在图 3 中还能发现, 2 个周期的样品的 PL 谱的半高宽比 4 个周期时的窄, 而前面 AFM 像却显示 2 个周期时 InAs 纳米结构 的尺寸分布较大,量子线和量子点都有出现,而4个周期时形成椭圆型的量子点,尺寸分布较2个周期 时小. 我们认为这种 AFM 结果和 PL 数据的不一致可能与 InAs 纳米结构的空间分布不同有关. 从图 2 中的 AFM 像可以看出,4个周期时 InAs 量子点的密度较低,它们以较大的间距分散开,这意味着量子 点中电子将难以在不同的点之间隧穿或者通过浸润层相互转移;因此在此体系中,一些量子点中的光生 载流子尽管能级位置较高,也不能转移到其他量子点中的较低能级去.相比之下,2个周期时形成 InAs 量 子线和量子点,量子线中的电子分布就很可能达到近热平衡状态,这就相对地缩小了电子分布的能量范围. 相应地,较窄的光跃迁能量范围体现在 PL 谱中为较窄的半高宽^[12].最后,我们还研究了 6 个周期的样品 的 PL 强度随温度的变化并和典型的 InAs/GaAs 量子点的强度进行了比较(图 5). 结果显示 6 个周期样品 中量子点 PL 谱强度随温度增加衰减的速率明显低于 InAs/GaAs 量子点 PL 强度衰减速率. 在测量的温度 范围内,对于有6个周期的As压调制的InAlAs结构的样品,其PL强度只衰减了不到6倍,而作为比较 的 GaAs 系统其 PL 强度衰减了近 66 倍. 一般认为随温度的升高,量子点中的载流子逐渐克服热势垒逃逸 到浸润层或势垒层中,并在那儿进行辐射复合或非辐射复合,这是量子点发光强度淬灭的主要原因.量子 点 PL 强度随温度变化的关系式为^[13]



其中: I(0) 为量子点最大 PL 强度, E_1 和 E_2 为激活能, k 为玻尔兹曼常数, T 为温度.



图 4 室温变功率 PL 谱

定量公式表明:量子点的限制势垒越高,激活能越大,PL强度衰减得越慢.因此在本文中低的PL强度淬灭速率一方面说明本文样品中量子点有较高的限制势垒,在一定程度上可抑制载流子的热逃逸,进一步证实引入缺As的InAlAs不会产生非辐射复合中心;另一方面也说明缺As的InAlAs层的引入不但不会引入非辐射复合中心反而会使量子点中的非辐射复合渠道大大减弱.

3 结 论

InAlAs/InP(100)系统中, InAs 纳米结构的形貌 和光学特性受到 InAlAs 层生长条件的明显影响. As 压调制的 InAlAs 超晶格能有效地调整 InAs 纳米结



构的形貌特性、发光峰位,辐射效率及尺寸分布和相应的半高宽.随着进一步优化生长条件:改善超晶格各层的厚度、周期数及As压大小,可以进一步提高量子点尺寸均匀性.我们相信在InAs/InAlAs/InP系统中可以得到更高结构质量、更窄发光线宽的InAs量子点,从而有利于其在长波长光电器件特别是量子点激光器方面的应用.

参考文献:

- [1] ARAKAWA Y, SAKAKI H. Multidimensional Quantum Well Aaser and Temperature Dependence of Its Threshold Current [J]. Appl Phys Lett, 1998, 40: 939-941.
- [2] WEBER A, GAUTHIER-LAFAYE O, JULIEN F H, et al. Strong Normal-Incidence Infrared Absorption in Self-Organized InAs/InAlAs Quantum Dots Grown on InP(001) [J]. Appl Phys Lett, 1999, 74: 413-415.
- [3] FINKMAN E, MAIMON S, IMMER V, et al. Polarized Front-Illumination Response in Intraband Quantum Dot Infrared Photodetectors at 77 K [J]. Phys Rev B, 2001, 63: 045323: 1-045323: 4.
- [4] GARCIA G M, GONZALEZ L, GONZALEZ M U, et al. InAs/InP(0 0 1) Quantum wire Formation due to Anisotropic Stress Relaxation: in Situ Stress Measurements [J]. J Cryst Growth, 2001, 227: 975-977.
- [5] BRAULT J, GENDRY M, GRENET G, et a. 1 [J]. Appl Phys Lett, 1998, 73: 2932-2934.
- [6] MOISON J M, GUILLE C, HOUZHAY F, et al. Surface Segregation of Third-Column Atoms in Group III-V Arsenide Compounds: Ternary Alloys and Heterostructures [J]. Phys Rev B, 1989, 40(9): 6149: 6149-616162.
- [7] 冯喜宁,赵建伟,秦丽溶,等.基于氧化镓纳米线的日盲紫外探测器件的制备与性能 [J].西南大学学报(自然科学版), 2014, 36(3):167-171.
- [8] 毛 红,陈龙龙,李 建.化学诱导相变法制备 γ-Fe₂O₃ 磁性纳米微粒的尺寸研究 [J].西南大学学报(自然科学版), 2016, 38(1):126-132.
- [9] 潘陈玉洁,郭秋萍,王黎阳,等.氢氧化镍纳米片的制备及其超级电容性能 [J].西南师范大学学报(自然科学版), 2015,40(1):34-38.
- [10] 杨新荣,周晓静,王海飞,等. As 压调制的 InAlAs 超晶格对 InAs 纳米结构形貌的影响 [J]. 物理学报,2015,64(6): 068101-1-068101-4.
- [11] FAFARD S, ALLEN C N. Intermixing in Quantum-Dot Ensembles with Sharp Adjustable Shells [J]. Appl Phys Lett, 1999, 75(16): 2374-2376.
- [12] XU Z Y, LU Z D, YUAN Z L, et al. Thermal Activation and Thermal Transfer of Localized Excitons in InAs Self-Organized Quantum Dots [J]. Superlattices and Microstructure, 1999, 23(2): 381-387.
- [13] DASHIELL M W, DENKER U, SCHMIDT O G. Photoluminescence Investigation of Phononless Radiative Recombination and Thermal-Stability of Germanium Hut Clusters on Silicon (001) [J]. Appl Phys Lett, 2001, 79(14): 2261-2263.

Effects of As Pressure-Mmodulated InAlAs Superlattice on the Optical Properties of InAs Nanostructures Grown on InAs/InP

GU Yun-gao¹, YANG Xin-rong¹, ZHOU Xiao-jing¹, XU Bo², WANG Jun-zhong³

1. Institule of Electrical and Mechanical, Handan College, Handan Hebei 056005, China;

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

3. School of Physical Science and Technology, Southwest University, Chongqing 400715, China

Abstract: In an experiment reported in this paper, InAs/InAlAs/InP (001) nanostructure materials were grown, using the solid-source molecular beam epitaxy (MBE) equipment. The effects of As pressure-modulated InAlAs superlattice on the optical properties of InAs nanostructures were investigated. The results showed that As pressure-modulated InAlAs superlattice could effectively adjust the morphology and the emission peak of InAs nanostructures and improve their luminous width and radiation efficiency, thus benefiting their application in long wavelength optoelectronic devices.

Key words: InAsAs superlattice; InAs nanostructure; optical property

责任编辑 潘春燕