

新奇半导体低维结构的自组织生长*

牛智川[†] 黄社松 龚政 方志丹 倪海桥 孙宝权 李树深 夏建白

(中国科学院半导体研究所 半导体超晶格国家重点实验室 北京 100083)

摘要 文章介绍了自组织生长半导体量子线、量子点和量子环的进展,同时介绍了这些低维半导体材料在光电子和通信等领域应用情况.此外,对这些材料的一些测试方法也进行了介绍.

关键词 自组织,量子线,量子点,量子环

Novel self-assembled low dimensional semiconductor structures

NIU Zhi-Chuan[†] HUANG She-Song GONG Zheng FANG Zhi-Dan NI Hai-Qiao

SUN Bao-Quan LI Shu-Shen XIA Jian-Bai

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

Abstract In this paper, the progress of self-assembled growth for semiconductor quantum wires, quantum dots and quantum rings is reviewed, and the applications of these materials in the fields of optoelectronics and telecommunications are described. In addition, some test methods for these materials are discussed.

Keywords self-assembled, quantum wires, quantum dots, quantum rings

1 引言

半导体量子线(QWRs)、量子点(QDs)和量子环(QRs)等低维结构是近年来半导体物理和固态量子信息材料领域最重要研究内容之一^[1-4].由于QWRs两维受限,QDs和QRs三维受限,它们的态密度函数显著不同于量子阱和体材料,从而产生了许多独特的光学特性和电学特性,如光吸收、光增益及光反射谱更尖锐,激子和杂质的束缚能增大,出现量子干涉效应、量子隧穿效应及库仑阻塞效应等.正是由于这些特性,使得它们在光电子、微电子和量子通信等领域具有极大的应用潜力^[5,6]:如阈值更低、效率更高和热稳定性更好的QD激光器,更高速度的微电子器件,单电子存储器件和单光子器件等.

最初的低维半导体材料是由图形刻蚀法制备^[7-9].该方法的优点是它们的尺寸、形状、密度和分布可控,但该方法也有很多缺点:图形分辨率不高,横向尺寸远比纵向尺寸大,同时由于加工过程会

引入各种损伤、缺陷和杂质等,严重地影响了它们的发光特性,而且限于目前工艺的精度,难以得到高密度结构,这些缺点导致它们在光电子领域中的应用受到限制,例如早在20世纪80年代,Arakawa等人^[10]就提出了QD激光器模型,但是直到人们成功地制备出高质量的自组织QD后,第一个QD激光器才得以实现^[11].

近年来,人们利用Stranski-Krastanov(SK)生长模式自组织生长无位错的QDs^[12,13].由于其生长技术简单,与现有的外延生长工艺匹配以及潜在的应用价值,使得自组织生长低维结构成为近年来一个热门的半导体研究领域.本文将就自组织生长半导体量子线、量子点和量子环的进展分三部分逐一进行概述,同时还讨论了这些低维半导体材料在光电子和通信等领域的应用情况.此外对这些材料的一些测试方法也进行了介绍.

* 国家自然科学基金资助项目

2005-11-16收到初稿 2006-04-12修回

[†] 通讯联系人. Email: zeniu@red.semi.ac.cn

2 自组织生长量子线

QWRs 实现二维量子限制,使得电子态密度呈一系列尖峰形状,从而势必带来该结构激光器在温度特性、增益特性和阈值电流等多方面性能的改善^[14,15];而 QWRs 光探测器^[16]具有更快的响应速度。因此 QWRs 材料的研究可望为新一代固态电子、光电子器件的研制奠定基础。另外具有更高电子迁移率的 QWRs 沟道场效应晶体管的成功制备对集成电路的微型化和超高速化具有重要意义^[17,18],相信 QWRs 在以后的纳米元器件制备中将占有重要地位。

由于自组织生长 QWRs 无需高空间分辨率的电子束曝光和刻蚀等复杂工艺技术,不会引入杂质和表面缺陷,因此越来越引起人们的关注。由于尺寸均匀的 QWRs 会大大改善光电子器件的性能,而 QWRs 场效应晶体管等微电子器件对 QWRs 的尺寸和位置有严格控制,因此如何利用自组织方法生长尺寸均匀、位置可控的 QWRs 是生长低维半导体材料的热点。

2.1 利用自组织方法生长 QWRs 的进展

利用邻晶面直接生长 QWRs:该方法由 Petroff^[19]首先提出,研究发现邻晶面具有规则的微台阶,台阶高度为一个原子层高,台阶宽度则由倾斜角确定。高精度控制外延生长条件可以在微台阶上生长出组分交替变化的超晶格,从而产生 QWRs。

利用高指数晶面直接生长 QWRs:Nötzel 等人^[20]是这方面工作的先驱。他们采用这种方法制备的 GaAs/AlGaAs 量子线,光荧光谱证实它具有明显的量子限制效应,这一方法的出现无疑对制备低维量子结构是有意义的。

以上两种方法共同存在着实验可重复性和微台阶均匀性的问题,此外,由于高指数面衬底和邻晶面衬底方向与自然解理面并不垂直,将增加器件后期工艺的难度。

利用应变效应可以产生 QWRs:应变超晶格材料是半导体超晶格材料中具有独特性质的组成部分,它大大地扩展了超晶格、量子阱材料的种类和应用范围。1992 年,Cheng 等人^[21]发现,在(100)GaAs 或 InP 衬底上生长 GaP/InP 或 GaAs/InAs 材料的短周期超晶格时,在外延层中,由于应变诱导作用沿 [110] 方向产生了组分的周期性变化,从而形成

QWRs,这种应变 QWRs 的极化 PL 谱具有各向异性。图 1 就是通过应变效应在 InP 衬底上制备高度均匀的自组织 InAs 量子线形貌^[22]。另外,通过生长应变超晶格使应变体系中量子点拉长,也可以形成均匀的 QWRs^[23],目前利用应变技术自组织生长 In-GaAs 量子线 Fabry-Perot 激光器具有良好的温度特性和阈值电流密度^[24]。

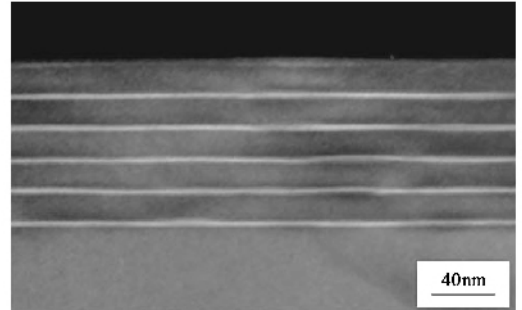


图 1 通过应变补偿效应在 InP 衬底上制备高度均匀的自组织 InAs 量子线截面 TEM 图像^[22]

2.2 半导体 QWRs 的测试方法

QWRs 的形貌和结构特性可通过原子力显微镜 (AFM)、截面透射电子显微镜 (TEM) 和双晶 X 射线衍射进行分析。光荧光谱 (PL)^[25,26]可以研究 QWRs 中电子的量子态、电子-电子相互作用和光跃迁过程的规律。而 QWRs 载流子横向载流子限制可通过 PL 和磁光荧光谱的线性极化关系加以证实。拉曼散射光谱可以研究 QWRs 中两个维度限制的晶格振动和声子特性。

3 自组织生长量子点

由于 QDs 三维受限,具有 δ 函数形式的态密度可以制备低阈值激光器、高灵敏度探测器、单光子器件和单电子器件等。目前已有的自组织 QDs 的器件已经充分说明自组织 QDs 在微电子、光电子、以及量子通信等方面具有非常大的潜力。但是 SK 生长模式的随机成核特性决定 QDs 的大小、分布是随机的,这对器件应用来说是非常不利的。不均匀的 QDs 分布会造成很大的发光展宽,从而削弱了量子点 δ 函数态分布带来的好处(如 QDs 激光器的高增益、低阈值电流等)。目前研制的 QDs 激光器的性能远没有到达如理论预言的那么优越,主要原因之一就在于自组织生长的 QDs 尺寸大小分布不一,各 QDs 的受限能级弥散在一定范围之内。有源区 QDs 能量的弥散成为当前制约 QDs 激光器发展的一个瓶颈,

如何提高有源区 QDs 的尺寸均匀性,减小能量分布弥散度,增加有效 QDs 数目,成为重要的研究方向.另外一些基于 QDs 的器件(如单电子晶体管和单电子存储器等)对 QDs 的位置和大小有严格要求,所以 QDs 的有序化生长越来越引起人们的关注.此外,量子计算及量子信息科学的发展对可控单光子源提出了更高的要求,这使得传统的通过激光脉冲衰减的方法获得随机发射的单光子信号,难以达到精确而严格的实验要求,人们迫切需要真正意义上的单光子源^[27].通过低密度 QDs 来制备固态单光子源被认为是最切实可行的方案.而由 SK 自组织生长模式产生的 QDs 密度往往较高(10^{10} 个/ cm^2),而理想的制备单光子源的 QDs 密度在 10^6 个/ cm^2 左右,因此如何获得低密度无位错的 QDs 也是目前迫切需要解决的问题.

3.1 自组织生长量子点的进展

利用邻晶面衬底或高指数衬底制作有序 QDs^[28-29]:邻晶面表面规则的微台阶,影响吸附原子的生长动力学过程,从而导致不同的应力弛豫机制.采用这种方法可以选择性地让 QDs 在台阶边成核,从而实现 QDs 的侧向有序,然而这种方法受台阶均匀性和尺寸以及生长动力学的影响很大.如何获得均匀的微台阶以及控制外延生长动力学是这种方法最大的难题.高指数面衬底具有更高的表面能,在外延生长过程中不稳定,将分解成具有较低表面能的邻近小晶面,以达到稳定的表面结构,从而促使 QDs 分布有序化,图 2 为在 GaAs(311)B 衬底上生长 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子点的表面形貌^[29],可以看出形成了两维有序的 QDs 阵列.但是该方法同样存在实验可重复性和微台阶均匀性问题.

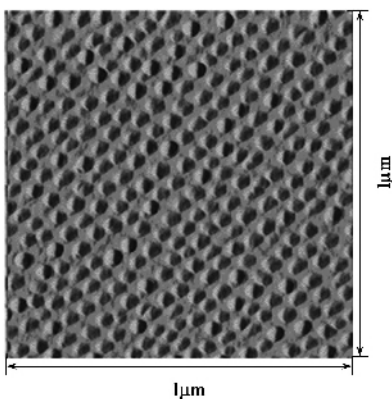


图2 在 GaAs(311)B 衬底上生长 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子点的表面形貌^[29]

采用应变超晶格生长量子点阵列:以在 GaAs(100)衬底上生长 InAs 量子点为例^[30],先自组织生长(In,Ga)/GaAs 超晶格引入各向异性的应变,由于沿 [011] 方向应变场的积累和均匀度的提高,从而形成沿 [0 $\bar{1}$ 1] 方向 InAs 量子点阵列.

另外,在规则的 QDs 阵列上面,通过应力诱导垂直对齐特性,按照 SK 模式生长多层 QDs,层层之间由间隔层隔开,可以形成按照 SK 模式生长的规则的量子点 3D 格子^[30].

3.2 量子点的应用进展

自组织 QDs 不仅使得 QDs 激光器成为现实,而且得到迅猛的发展.美国德克萨斯大学和中国科学院半导体研究所半导体超晶格国家重点实验室等研究小组^[31-32]成功地制备了室温连续激射波长为 $1.3\ \mu\text{m}$ 的自组织量子点边发射激光器,而 Lott 等人^[33]已经成功地制备 $1.3\ \mu\text{m}$ 量子点垂直腔面发射激光器,阈值电流为 $1.8\ \text{mA}$,量子微分效率达 45%.

QDs 的另一个应用方向是 QDs 红外探测器. QDs 红外探测器因其可以吸收垂直入射光,具有高的探测效率或高的工作温度等优点而受到人们的广泛关注.从 1996 年 Ryzhii^[34]提出 QDs 红外探测器模型以来, QDs 红外探测器飞速发展.2003 年, Lin 等人^[35]报道了可以工作在 260K 的 QDs 红外探测器,使其工作温度接近室温.2005 年, Bhattacharya 等人^[36]报道了在室温下工作的隧道 QDs 红外探测器,工作波段在 $6-17\ \mu\text{m}$,暗电流密度仅为 $1.55\ \text{A}/\text{cm}^2$.

单光子器件:近年来,基于 QDs 高效自发发射的柱状垂直微腔结构使得制备单光子源器件成为可能^[37-38], Yuan 等人^[39]通过电调制 PIN 结构中单 QDs 实现了电驱动的单光子源.2005 年, Ward 等人^[40]利用自组织方法把稀疏 InAs/GaAs 量子点植入微腔,制造出波长为 $1.3\ \mu\text{m}$ 通信波段的单光子源,如图 3 所示.

3.3 量子点的测试方法

量子点的形貌和结构特性可通过原子力显微镜 (AFM)、截面透射电子显微镜 (TEM) 和双晶 X 射线衍射进行分析.随着对量子点的物理特性和器件应用研究的不断深入,人们尝试采用光、电和磁等实验手段^[42-44]来研究量子点电子态和电子特性,如 PL 谱、红外吸收谱、非弹性散射谱、共振磁隧穿谱、深能级瞬态谱、光发射谱、光电流谱、导纳谱、电容谱等.

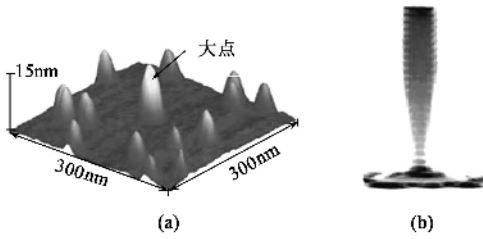


图3 (a)在GaAs 基础上生长稀疏的InAs/GaAs 量子点的AFM 图像(扫描范围 300nm × 300nm)^[40] (b) 柱状微腔的SEM 图像, 顶部直径为0.6μm, 高为4.2μm^[41]

4 自组织生长量子环

同QDs一样,三维受限的QRs在电学、光学和磁学的理论和实验方面都引起了极大的关注^[45-46]。不仅如此,理论和实验研究表明,QDs和QRs在光、电和磁学等方面有明显的不同。最显著的拓扑特征是有个内孔,从而表现出QRs特有的磁效应,为研究AB效应等提供了极佳的系统。理论研究^[47-48]表明,半导体量子环的电子结构和磁性随电子数目而变化,当QRs含有一系列特定数目的电子时,具有自发的铁磁态。在有磁场的情况下,多粒子的基态变得有手性,从而导致QRs中存在永久电流(persistent current)。

然而迄今为止,制备QRs的方法非常有限。主要包括两大类:即使用复杂的光刻技术制备QRs^[49]和自组织方法制备QRs^[50-51]。自组织方法制备QRs相对来说比较简单,QRs中缺陷大大地降低,制备的QRs的尺寸可以做得很小,下面就自组织QRs的研究进展进行讨论。

4.1 自组织生长量子环的进展

目前利用自组织方法已经成功地制备出晶格失配体系,如InAs/GaAs、InAs/InP和GeSi/Si等应变QRs^[52-53]。图4是自组织生长In(Ga)As/GaAs应变量子环的AFM图像。

不过该方法需要盖层才能形成QRs,对于精确控制QRs的高度造成了困难;另外由于应力的存在可能对QRs的光学和电学特性有影响。近年来,人们发展起来一种叫自组织液滴外延(droplet epitaxy)生长量子点和量子环的方法^[55-57]。该方法的优点在于生长可以在很低的温度下进行;而且由液滴转变而来的QRs尺寸均匀性一般要比自组织QRs要好;并且原则上说,无论是晶格失配材料体系还是晶格

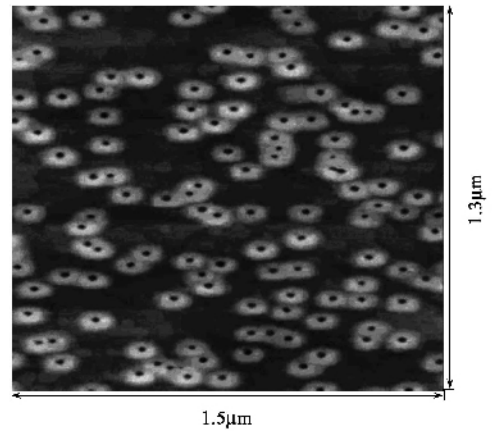


图4 生长自组织In(Ga)As/GaAs应变量子环的AFM图像^[54]

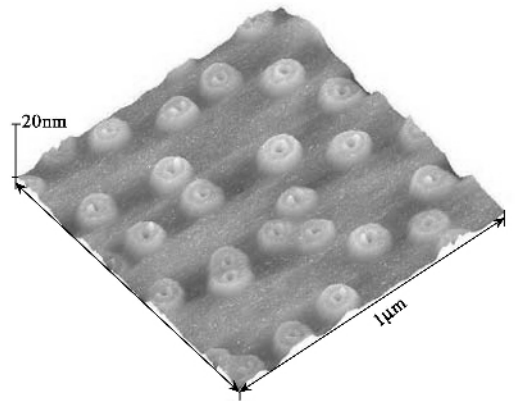


图5 液滴外延法制备的GaAs同心双环的AFM图像(1μm × 1μm)^[58]

匹配体系都适用。图5就是利用自组织液滴外延法制备的GaAs同心双环。

4.2 量子环的测试方法

在对QRs的电、磁和光学等性质的研究中,最重要的实验表征手段为C-V曲线和远红外透射谱^[59]。通过研究QRs的C-V曲线可以得到QRs基态能级上多个电子之间的相互作用的信息,从而表征了QRs的基态的性质。远红外透射谱能反映出QRs激发态能级的精细结构。另外,对QRs的表征还可以通过结构分析^[60-61]来进行,如原子力显微镜AFM、扫描电子显微镜SEM和扫描隧道显微镜STM常被用来对QRs进行表面形貌表征,透射电子显微镜TEM可用于分析埋在体内的QRs的形貌、应力和组分分布,X射线能量色散谱XEDS可对QRs的微区化学组分进行半定量的分析。

参 考 文 献

- [1] Greytak A B , Barrelet C J , Li Yat *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 87 :151103
- [2] Schuster R , Hajak H , Reinwald M *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2004 , 85 :3672
- [3] Climente J I , Planelles J , Jaskólski W. Phys. Rev. B , 2004 , 68 :075307
- [4] Shchukin V A , Bimberg D , Munt T P *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2003 , 90 :076102
- [5] Sugaya T , Takahashi T , Nakagawa T *et al.* Electronics Letters , 1998 , 34 :926
- [6] Kim J , Benson O , Kan H *et al.* Nature , 1999 , 500 :397
- [7] Nieder J , Wieck A D , Grambow P *et al.* Appl. Phys. Lett. , 1990 , 57 :2695
- [8] Forchel A , Leier H , Maile B E *et al.* Advances in Solid State Physics , 1988 , 8 :99
- [9] Fuhrer A , Luscher S , Ihn T *et al.* Nature , 2001 , 413 :822
- [10] Arakara Y , Sakaki H. Appl. Phys. Lett. , 1982 , 40 :939
- [11] Kirstaedter N , Ledentsov N N , Grundmann M *et al.* Electronics Lett. , 1994 , 30 :1416
- [12] Nötzel R , Ploog K. Adv. Mater. , 1993 , 5 :22
- [13] Wang S M , Andersson T G , Ekenstedt M J. Appl. Phys. Lett. 1992 , 61 :3139
- [14] Arakawa Y , Yariv A. IEEE J. Quantum Electron. , 1986 , QE -22 :1887
- [15] Yariv A. Appl. Phys. Lett. , 1998 , 53 :1033
- [16] Hsieh W H , Kuan C H , Suen Y W *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2004 , 85 :4196
- [17] Black C T. Appl. Phys. Lett. , 2005 , 87 :163116
- [18] Sugaya T , Ogura M *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2001 , 79 :371
- [19] Petroff P M , Gossorrd A C , Wiegmann W. Appl. Phys. Lett. , 1984 , 45 :620
- [20] Nötzel R , Ledentsov N N , Daweritz L *et al.* Phys. Rev. Lett. , 1991 , 67 :3812
- [21] Cheng K Y , Hsieh K C , Baillargoon J N. Appl. Phys. Lett. , 1992 , 60 :2892
- [22] Huang X Q , Wang Y L , Li L *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 87 :083108
- [23] Ma W Q , Nötzel R , Trampert A *et al.* Appl Phys. Lett. , 2001 , 78 :1297
- [24] Wohlert D E , Cheng K Y , Chou S T. Appl. Phys. Lett. , 2001 , 78 :1047
- [25] Someya T , Akiyama H , Sakaki H. Phys. Rev. Lett. , 1996 , 76 :2965
- [26] Maciel A C , Freyland J M , Rota L *et al.* Appl. Phys. Lett. 1996 68 :1519
- [27] Ward M B , Karimov O Z , Unitt D C *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 86 :201111
- [28] Nötzel R , Mano T , Wolter J H. J. Vac. Sci. Technol. A , 2004 , 22 :1912
- [29] Lan S , Akahane K , Song H Z *et al.* J. Vac. Tech. B , 1999 , 17 :1105
- [30] Mano T , Nötzel R , Hamhuis G J *et al.* Appl. Phys. Lett. 2002 , 81 :1705
- [31] Mukai K , Nakata Y *et al.* IEEE Photon. Technol. Lett. , 1999 , 11 :1205
- [32] Shchekin O B , Deppe D G. Appl. Phys. Lett. , 2002 , 80 :3277
- [33] Lott A , Ledentsov N N , Ustinov V M *et al.* Electronics Letters , 2002 , 36 :1384
- [34] Rhyzhii V. Semicond Sci. Technol. 1996 , 11 :759
- [35] Jiang L , Li S S , Yeh N-T *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2003 , 82 :1986
- [36] Bhattacharya P , Su X H , Chakraarti S *et al.* Appl. Phys. Lett. 2005 , 86 :191106
- [37] Solomon G S , Pelton M , Yamamoto Y. Phys. Rev. Lett. , 2001 , 86 :3903
- [38] Kim J , Nenson O , Kan H *et al.* Nature , 1999 , 397 :500
- [39] Yuan Z , Kardynal B E , Stevenson R M *et al.* Science , 2002 , 295 :102
- [40] Ward M B , Karimov O Z , Unitt D C *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 86 :201111
- [41] Pelton M , Santori C , Vuckovic J *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2002 , 89 :233602
- [42] Raymond S , Fafard S , Poole P J *et al.* Phys. Rev. B , 1996 , 54 :11548
- [43] Schmidt K H , Tibeiro G M , Garcia J *et al.* Appl. Phys. Lett. , 1997 , 70 :1727
- [44] Chang W H , Hsu T M , Yeh N T *et al.* Phys. Rev. B , 2000 , 62 :13040
- [45] Warburton R J , Pein C S , Haft D *et al.* Nature , 2000 , 405 :926
- [46] Fuhrer A , Luscher S , Ihn T *et al.* 2001 , 413 :822
- [47] Timp G , Chang A M , Cunningham J E *et al.* Phys. Rev. Lett. , 1987 , 58 :2814
- [48] Jacob E B , Guinea F , Hermon Z *et al.* Phys. Rev. B , 1998 , 57 :6612
- [49] Mailly D , Chapelier C , Benoit A. Phys. Rev. Lett. , 1993 , 70 :2020
- [50] Bayer M , Korkusinski M , Hawrylak P *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2003 , 90 :186801
- [51] Cui J , He Q , Jiang X M. Appl. Phys. Lett. , 2003 , 83 :2907
- [52] Raz T , Ritter D , Bahir G. Appl. Phys. Lett. , 2003 , 82 :1706
- [53] Lorke A , Blossey R , Garcia J M *et al.* Mater. Sci. and Engineering , 2002 , 88 :225
- [54] Granados D , Garcia J M , Ben T *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 86 :071918
- [55] Watanabe K , Koguchi N , Gotoh Y. Jpn. J. Appl. Phys. , 2000 , 39 :L79
- [56] Gong Z , Niu Z C , Huang S S *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2005 , 87 :093116
- [57] Mano T , Kuroda T *et al.* Nanolett. , 2005 , 5(3) :425
- [58] Huang S S , Niu Z C , Fang Z D *et al.* Appl. Phys. Lett. (accepted)
- [59] Petroff P M , Lorke A , Imamoglu A. Physics Today , 2001 , 54 (5) :46
- [60] Transmission Electron Microscopy : A Textbook for Material Science. Williams , David B. ISBN 0-306-45247-2 (Printed in the United States of America)
- [61] Raz T , Ritter D , Bahir G. Appl. Phys. Lett. , 2003 , 82 :1706