

沉积速率和生长停顿对 InAs/GaAs 量子点超晶格生长影响的综合分析*

宋禹忻 俞重远† 刘玉敏

(北京邮电大学理学院, 北京 100876)

(北京邮电大学光通信与光波技术教育部重点实验室, 北京 100876)

(2007 年 7 月 28 日收到, 2007 年 10 月 25 日收到修改稿)

采用动力学蒙特卡罗模型模拟了沉积速率和生长停顿对 GaAs 衬底中垂直耦合 InAs 量子点超晶格生长早期阶段的影响. 通过对生长表面形态、岛平均尺寸、岛尺寸分布及其标准差等方面的研究, 发现综合控制沉积速率和生长停顿时间能够得到大小均匀、排列有序的岛阵列. 这对后续量子点超晶格生长过程中量子点的定位有重要影响.

关键词: 动力学蒙特卡罗模拟, 量子点超晶格, 外延生长

PACC: 7115Q, 6865, 8115N

1. 引 言

三维受限的量子点材料与传统的体材料、一维受限量子阱材料以及二维受限量子线材料相比具有独特的类原子电子能态特性, 在基体材料的宽带隙内具有分立的电子能级, 并因其在光电子和微电子材料及器件中具有重要的应用而引起广泛关注. 高密度、无位错的量子点超晶格在许多现代半导体器件中扮演着重要角色, 基于 Stranski-Krastanov 生长模式^[1-3]自组织效应获得高效量子点超晶格的方法在半导体材料的制备中具有非常好的前景.

对于大多数包含量子点超晶格的器件, 能否拥有大量形状相似、尺寸相近并且空间排列有序的量子点是器件性能的关键. 目前, 实现量子点定位生长的手段很多^[4-7], 其本质都是改变衬底生长表面某些位置的化学势, 使原子在生长过程中更容易吸附在特定位置上, 从而达到对量子点位置的控制. 利用垂直耦合效应生长量子点超晶格的方法由于引入杂质少、可控性好而引起了人们越来越多的关注^[8]. 对于 GaAs 衬底中生长 InAs 量子点超晶格的系统, 一般采用埋藏量子点, 在表面产生应变弛豫图形的方法. 先在 GaAs 中埋藏一层 InAs 量子点, 之后在该结

构之上进行外延生长, 形成的表面岛会倾向于在埋藏的量子点正上方成核, 导致岛的空间排列有序^[4-6]. 量子点位置的这种垂直关系是因为埋藏量子点产生的应变改变了表面扩散原子的激活能, 影响上层岛的成核. 我们小组采用三维有限元分析, 研究了量子点超晶格材料的纵向和横向周期对应变场分布的影响^[9], 并计算了埋藏量子点产生的应变能密度分布, 证明不同的各向异性指数和盖层的厚度会导致盖层表面上产生不同的应变能密度最小位置. 这将导致上层量子点生长产生多种垂直对准现象^[10, 11].

本文采用动力学蒙特卡罗模型, 模拟 GaAs 衬底中 InAs 量子点超晶格每一层量子点生长初期的亚单原子层成核过程. 动力学蒙特卡罗法是模拟表面生长随时间变化过程的一种方法, 通过定义束缚能量势垒来表现应变产生的影响^[12], 可以模拟亚单原子层岛的成核和生长, 取得了与实验现象相符的结果^[13-20]. 亚单原子层岛是三维生长量子点的早期阶段^[21], 决定 Stranski-Krastanov 模式下量子点超晶格中量子点的位置和大小. 我们关注的是量子点超晶格中量子点位置的有序性, 而不是单个三维量子点的形态, 所以通过模拟亚单原子层的生长来控制量子点阵列的大小和位置是很有效的. 所研究的只是

* 国家重点基础研究发展规划(批准号: 2003CB314901)和国家自然科学基金(批准号: 60644004)资助的课题.

† E-mail: yuzhongyuan30@hotmail.com

小覆盖率的情况,此时还没有发生量子点生长从二维到三维的转变.深入研究了沉积速率和生长停顿时间对 GaAs 图形衬底上 InAs 量子点超晶格生长的影响,并得到该模拟条件下的最优参数.

2. 模型的建立

假设正在外延生长的量子点层下面是深一层量子点层,盖层之上是完整的浸润层,但在模拟过程中并不涉及到该浸润层.对于惰性浸润层,这是一个合理而且有效的假设,但对于活性浸润层,浸润层会部分解离并成为岛生长的原料^[22].

本文的动力学蒙特卡罗模拟基于全扩散 SOS 模型(solid-on-solid model),不允许空位或高悬,基本模型是 Arrhenius 动力学形式,沉积是任意的,不允许脱附,主要生长机制是表面扩散.表面覆盖率 Θ 可表示为

$$\Theta = Ft, \quad (1)$$

式中 F 是沉积速率,指单位时间沉积到扩散表面的完整原子层数,时间单位为 s.吸附原子在表面的运动被描述为热激活的跃迁过程,表面的任何粒子都能移动,但只允许跃迁到近邻空位置,跃迁率被定义为单位时间的扩散概率.原子从点 i 跃迁到点 f ,需要克服的势垒高度决定于点 i .跃迁率由组态决定的 Arrhenius 型的表达式来表示,即

$$P = \nu \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right), \quad (2)$$

式中 E 是跃迁能量势垒, T 是衬底温度, ν 是表面吸附原子的跃迁频率, k_B 是玻尔兹曼常数.跃迁势垒 E 是各点独立的表面能项 E_S 和平面束缚能项 E_N (最近邻和次近邻原子)之和.总的跃迁能量势垒为

$$E = E_S + E_N. \quad (3)$$

在垂直耦合生长中,表面结合能 E_S 的大小因位置而异.也可以将 E_S 认为是与衬底材料有关各向同性的表面结合能项 E_0 和一个由应变引起的附加项 $E_{st}(x, y)$ 之和,即

$$E_S(x, y) = E_0 + E_{st}(x, y).$$

E_N 是由近邻原子相互作用而导致的总的束缚能量势垒,

$$E_N = nE_b + \alpha mE_b,$$

其中 E_b 是每一个最近邻原子所产生的束缚能量, n 是最近邻原子数,取值范围为 0—4.对于次近邻原子,每个原子所产生的束缚能会减弱,减弱的系数为

$\alpha = 1/\sqrt{2}$, m 是次近邻原子数,取值范围为 0—4, αmE_b 为次近邻原子所产生的总束缚能量.

本模型中,假设垂直耦合效应产生的应变弛豫图形为正方形.在每个正方形区域内 E_S 按照位置分段线性变化,在区域中心处 E_S 达到最大值 E_{S2} ,最外边 E_S 为最小值 E_{S1} .

3. 结果及讨论

在本模拟中我们采用以下模拟参数^[12, 23]:表面覆盖率 $\Theta = 15\%$. $E_{S1} = 0.65$ eV, $E_{S2} = 0.85$ eV, $E_b = 0.3$ eV, $\nu = 10^{-13}$ s⁻¹.采用的仿真温度为 480 K.实验中的沉积速率 F 分别取 0.001, 0.00316, 0.01, 0.0316, 0.1, 0.316, 1 s⁻¹,每个值都是其前一个值的近似 $\sqrt{10}$ 倍.生长停顿时间为 0—600 s,每 10 s 采样一次.

由于在沉积结束时都要达到相同的表面覆盖率,所以低沉积速率就需要更长的时间来完成沉积过程.而在沉积过程中,扩散过程也在同时进行,所以在低沉积速率的情况下沉积原子的扩散将进行得更加充分,于是衬底上岛的形态将会更好一些.仿真实验的结果证明了这一推测.从图 1(a)(b)和图 2 中带有星形标记的曲线可以看出,在沉积刚结束时,低沉积速率情况下岛的尺寸要比高沉积速率下岛的尺寸要大许多,不仅如此,在低沉积速率的情况下,垂直耦合作用对吸附原子扩散的限制作用表现得更加充分,岛的位置分布表现出了明显的与应变弛豫图形相对应的空间次序.在此,我们能够得到一个初步结论:在可接受的沉积时间内(过长的沉积过程将容易引入杂质),沉积速率越低越好.

一旦在沉积结束之后引入一定的生长停顿,状况将完全不同.图 1(c)和(d)是沉积结束再停顿 100 s 后的结果.将图 1(a)和(c)进行比较后可以发现,经过了 100 s 的生长停顿之后,岛的形态并没有产生太大的改善.但在高沉积速率的情况下(对比图 1(b)和(d)),生长停顿后岛的形态得到了极大的改善.定义“岛尺寸”为岛含有的原子数.从图 2 可以看到,在沉积刚刚结束时,岛的平均尺寸随沉积速率的增加而缓慢下降;但生长停顿 100 s 后岛的平均尺寸则随着沉积速率的增加先缓慢下降,然后转而快速上升,并在沉积速率 $F \approx 0.316$ s⁻¹ 之后达到稳定状态.

图 1(d)所示为达到上述稳定状态时岛的形态.

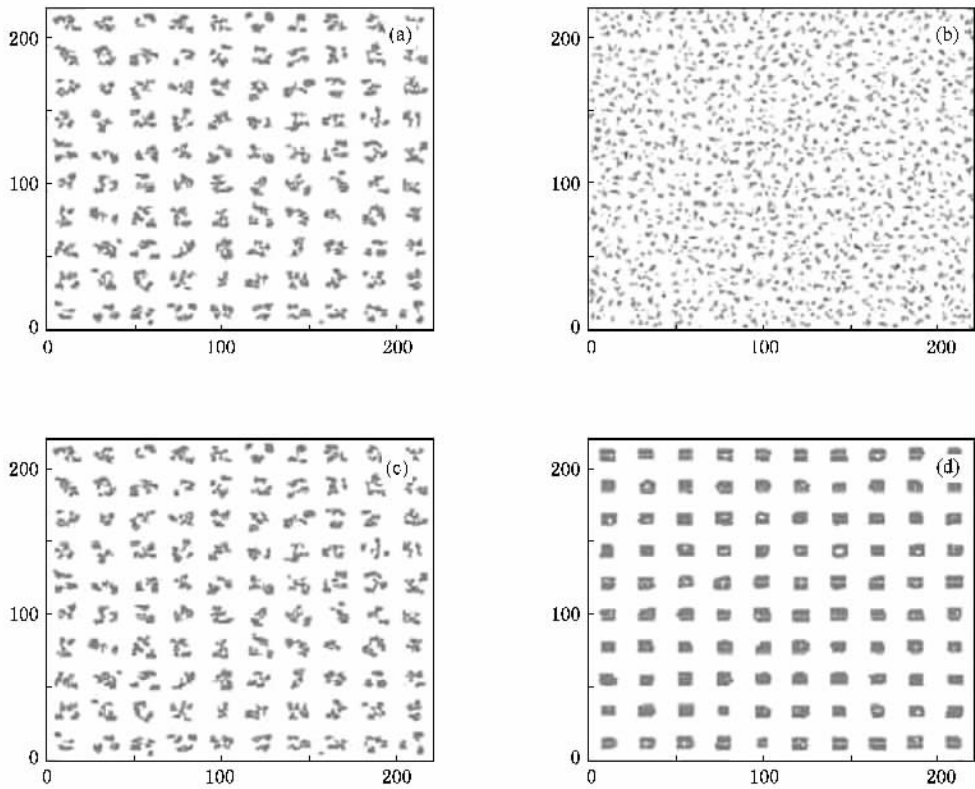


图1 不同情况下岛的形态 图中的坐标值为模拟格点数.(a)和(b)是沉积刚结束时得到的结果.(c)和(d)是生长停顿100 s后的结果.(a)和(c)的沉积速率 $F = 0.001 \text{ s}^{-1}$ (b)和(d)的沉积速率 $F = 1 \text{ s}^{-1}$.白色区域表示浸润层,暗色区域表示浸润层之上的第一层吸附原子

此时在每一个应变弛豫图形的方形区域之内有且仅有一个岛,并且这些岛的尺寸相近且稳定.该状态对于量子点的后续三维生长的定位和定型非常有利.

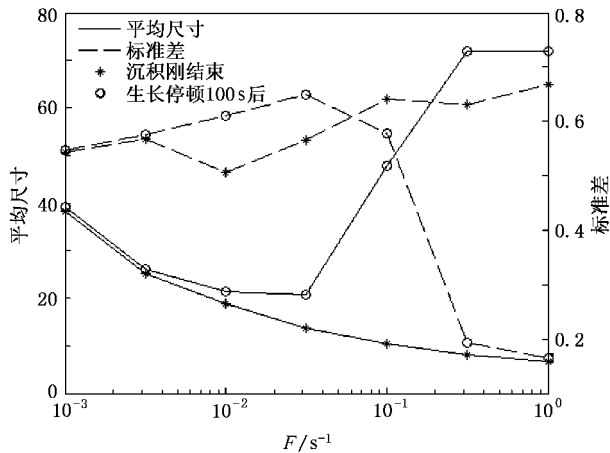


图2 岛平均尺寸及其标准差与沉积速率的关系

图3中也表现出了这种稳定状态.较高沉积速率下的岛平均尺寸曲线在很短时间内便达到了最大值,并稳定在该值附近.从图3还可以看到,在生长

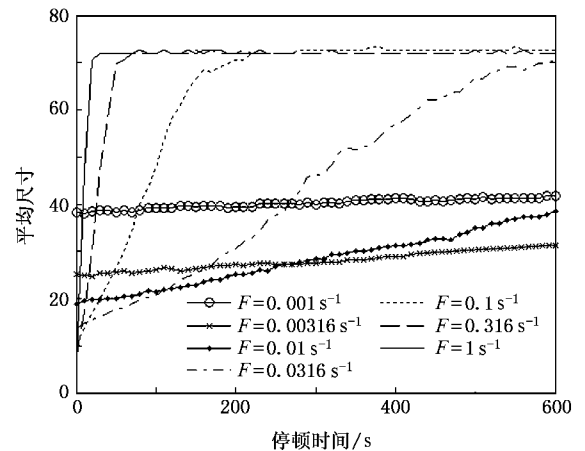


图3 不同沉积速率下岛平均尺寸随生长停顿时间的演化关系

停顿的初期,低沉积速率下的岛平均尺寸要比高沉积速率下大得多,但低沉积速率下的岛平均尺寸随着生长停顿的演化却十分缓慢,甚至于在可接受的时间之内根本无法达到稳定状态.如图3所示,沉积速率 F 为 $0.001, 0.00316, 0.01 \text{ s}^{-1}$ 的岛平均尺寸很难达到稳定状态,而 $F = 1 \text{ s}^{-1}$ 的曲线则只需40 s就

可以达到最大值.由此可见,沉积速率越大,岛平均尺寸在生长停顿过程中就越快达到稳定状态.

图 2 中的虚线所示为岛尺寸分布的标准差.在沉积刚结束时,随着沉积速率的增大,标准差的整体趋势增大,但变化并不很明显.标准差能够表明岛尺寸分布的均匀程度,所以沉积刚结束时,低沉积速率情况下岛尺寸的均匀程度要比高沉积速率情况下好.在生长停顿 100 s 之后,随着沉积速率的增大,标准差曲线先有稍许增加,然后快速下降.在沉积速率为 0.316 和 1 s^{-1} 时,标准差很小,这意味着此时岛尺寸的一致性很好.

从我们的仿真结果看,随着生长的进行和生长停顿时间的延长,在单个网格内存在类似奥斯特瓦尔德熟化(Ostwald ripening)现象^[24],也就是小岛逐渐合并成大岛,最终仅存一个大岛,而从整体上看并没有出现奥斯特瓦尔德熟化现象.这是因为与无应变弛豫图形的各向同性衬底不同,应变弛豫图形的存在一定程度上阻碍了奥斯特瓦尔德熟化现象的发生.低沉积速率会在沉积的过程中给沉积原子提供更充分的扩散时间,所以小岛迅速形成.小岛形成之后,几乎所有新沉积下来的原子都会马上被附近的岛俘获,进而小岛生长为中等尺寸的岛.尺寸较大的岛比尺寸较小的岛更为稳定,所以在不沉积新原子的情况下,中等尺寸的岛的均匀分布会增加其合并

成大岛的难度.在高沉积速率情况下,沉积原子的扩散时间很短,所以它们会较均匀并分散地分布,这样一定区域内的沉积原子较易形成一个很大的岛.

综上所述,较高的沉积速率再结合一定的生长停顿时间是量子点生长早期最理想的方案.

4. 结 论

本文采用基于完全扩散 SOS 模型的动力学蒙特卡罗方法,模拟了沉积速率和生长停顿时间对 GaAs 衬底中垂直耦合 InAs 量子点超晶格外延生长早期阶段的影响.由此可以看出,垂直耦合作用对成核过程有着显著的影响.沉积速率和生长停顿时间对量子点超晶格生长的早期成核过程起着重要的作用,合理地控制沉积速率和生长停顿时间,可以在衬底上生长出大小均匀、排列有序的亚单原子层岛.而亚单原子层岛对后续量子点超晶格中的量子点三维生长的定位和大小有着重要的作用.研究表明,较高的沉积速率再结合一定的生长停顿时间是量子点生长早期最理想的方案,这样可以使第一层亚单原子层岛的尺寸均匀性与空间有序性达到最佳,有利于后续量子点超晶格生长的定位和定型.这为量子点超晶格的规则生长、调整和优化工艺提供了重要的理论依据.

- [1] Daruka I, Barabási A L 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 3708
- [2] Shchukin V A, Bimberg D 1999 *Rev. Mod. Phys.* **71** 1125
- [3] Springholz G, Pinczolits M, Mayer P, Holy V, Bauer G, Kang H H, Salamanca-Riba L 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4669
- [4] Tersoff J, Teichert C, Lagally M G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1675
- [5] Springholz G, Holy V, Pinczolits M, Bauer G 1998 *Science* **282** 734
- [6] Wang Z M, Feng S L, Liu Z D, Yang X P, Chen Z G, Song C Y, Xu Z Y, Zheng H Z, Wang F L, Han P D, Duan X F 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 89 (in Chinese) [王志明、封松林、吕振东、杨小平、陈宗圭、宋春英、徐仲英、郑厚植、王凤莲、韩培德、段晓峰 1998 物理学报 **47** 89]
- [7] Brune H 1998 *Surf. Sci. Rep.* **31** 121
- [8] Ishikawa T, Nishimura T, Kohmoto S, Asakawa K 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 167
- [9] Liu Y M, Yu Z Y, Yang H B, Huang Y Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5023 (in Chinese) [刘玉敏、俞重远、杨红波、黄永箴 2006 物理学报 **55** 5023]
- [10] Liu Y M, Yu Z Y, Huang Y Z 2007 *J. Univ. Sci. Techn. Beijing* **14** 477
- [11] Liu Y M, Yu Z Y, Huang Y Z 2006 *Int. J. Mod. Phys. B* **20** 4899
- [12] Nurminen L, Kuronen A, Kaski K 2001 *Phys. Rev. B* **63** 35407
- [13] Schöll E, Bose S 1998 *Solid State Electron.* **42** 1587
- [14] Bortz A B, Kalos M H, Lebowitz J L 1975 *Comput. Phys.* **17** 10
- [15] Wang X P, Xie F, Shi Q W, Zhao T X 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2699 (in Chinese) [王晓平、谢 峰、石勤伟、赵特秀 2004 物理学报 **53** 2699]
- [16] Lu H J, Wu F M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 424 (in Chinese) [陆杭军、吴锋民 2006 物理学报 **55** 424]
- [17] Feng Q, Yu Z Y, Liu Y M, Zheng S Q 2005 *Proc. SPIE* **6020** 60203A
- [18] Yu Z Y, Feng Q, Liu Y M, Ren X M 2006 *J. Syn. Cryst.* **35** 1272 (in Chinese) [俞重远、封 强、刘玉敏、任晓敏 2006 人工晶体学报 **35** 1272]
- [19] Kotrla M 1996 *Comput. Phys. Commun.* **97** 82
- [20] Levi A C, Kotrla M 1997 *J. Phys. : Condens. Matter* **9** 299
- [21] Priester C, Lannoo M 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 93
- [22] Kaminski A Y, Suris R A 1996 *Appl. Surf. Sci.* **104/105** 312
- [23] Meixner M, Kunert R, Schöll E 2003 *Phys. Rev. B* **67** 195301
- [24] Zhdanov V P, Kasemo B 1999 *Surf. Sci.* **437** 307

Influences of flux and interruption on InAs/GaAs quantum dot superlattice growth^{*}

Song Yu-Xin Yu Zhong-Yuan[†] Liu Yu-Min

(*School of Science , Beijing University of Posts and Telecommunications , Beijing 100876 , China*)

(*Key Laboratory of Optical Communication and Lightwave Technologies of Ministry of Education , Beijing University of Posts and Telecommunications , Beijing 100876 , China*)

(Received 28 July 2007 ; revised manuscript received 25 October 2007)

Abstract

Kinetic Monte Carlo simulations are applied to study the growth of self-assembled vertical ordering InAs quantum dot superlattice on GaAs substrate. The study is focused on the influences of flux and interruption time at the initial stage when the first sub-monolayer is forming on the wetting layer. We demonstrate that uniform sized and regularly ordered island arrays can be obtained by controlling flux and interruption time , by means of studying the surface morphology , average island size , island size distribution and the standard deviation of island size distribution comprehensively. The size and order of island arrays will greatly affect the location and size of quantum dots in subsequent three-dimensional growth.

Keywords : kinetic Monte Carlo simulation , quantum dots superlattice , epitaxial growth

PACC : 7115Q , 6865 , 8115N

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2003CB314901) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60644004).

[†] E-mail : yuzhongyuan30@hotmail.com