

GaAs(331)A 衬底上分子束外延生长自组织 InAs 纳米结构形貌演化机制

苗振华 龚 政 方志丹 倪海侨 牛智川

(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 采用分子束外延方法在 GaAs(331)A 高指数衬底上制备自对齐 InAs 量子线 (QWR) 或者三维 (3D) 岛状结构。InAs 量子线 (QWR) 选择性生长在 GaAs 层的台阶边缘。通过原子力显微镜 (AFM) 仔细研究了 InAs 纳米微结构的表面形貌, 发现不同的生长条件如衬底温度、生长速率和 InAs 层厚度等, 对 InAs 表面形貌有很大的影响。低温更容易导致线状纳米微结构的形成, 而高温更利于 3D 岛状结构形成。表面形貌的转变归结于表面能同应变能之间的竞争。

关键词 分子束外延, 表面形貌, AFM

Shape Transition Mechanism of Self-aligned InAs Nanostructures on GaAs(331)A Substrates

MIAO Zhenhua GONG Zheng FANG Zhidan NI Haiqiao NIOU Zhichuan

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

Abstract: Self-aligned InAs quantum wires (QWRs) or three-dimensional (3-D) islands are fabricated on GaAs(331)A substrates by molecular beam epitaxy (MBE). InAs QWRs are selectively grown on the step edges formed by GaAs layers. The surface morphology of InAs nanostructures is carefully investigated by atomic force microscopy (AFM) measurements. Different growth conditions, such as substrate temperature, growth approach and InAs coverage, exert a great effect on the morphology of InAs islands. Low substrate temperatures prefer to the formation of wire-like nanostructures while high substrate temperatures favor for 3-D islands. The shape transition is attributed to the tradeoff between surface energy and strain energy.

Key words: molecular beam epitaxy, surface morphology, AFM

1 引言

近几十年来, 以 Stranski-Krastanov(S-K) 生长模型为基础形成的无缺陷量子点 (QD), 因其

独特的物理特性和潜在的器件应用前景而受到了广泛的关注^[1-5]。但由于按 S-K 模式生长的量子点是随机分布的, 并且尺寸、密度难以控制, 因此严重制约了 QD 在器件领域的实际应

基金项目: 国家自然科学基金资助 (60176006, 60025410)

作者简介: 苗振华, (1976—), 男, 河北省人, 助理工程师, 现从事 MBE 材料生长、量子点器件及形貌控制等研究工作。邮箱: miaoZh@red.semi.ac.cn

用。为了解决这些问题,人们已经做了相当多的工作去控制 QD 的尺寸、位置和密度^[6-7]。大多数方法通常是依赖光刻^[8-9]或者电子束曝光技术^[10]。但这些方法最大的缺点在于工艺复杂而且对衬底表面有一定损伤^[11],因此尽管取得了不少的进展,有效控制量子点的分布仍然是个巨大的挑战。

相比较而言,一种可行的方法是利用在邻近高指数衬底面上形成的周期性台阶作为量子点的形核模板^[12]。然而,这种方法主要用来制作 GaAs/Al(Ga)As 量子线结构^[13]。截至到目前,关于自组织 InAs QWR 在邻近高指数衬底面上的形核以及 InAs 纳米微结构的形貌转变机制的报导还很少,因为应变 InAs 层通常按 S-K 模型形成三维(3D)岛。

本文中,我们利用 GaAs(331)A 衬底制备了侧向有序的线状或者 3D 的 InAs 纳米微结构,并且讨论了 InAs 形貌的转变机制。

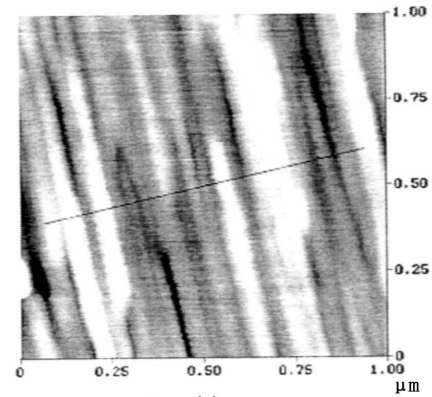
2 实验程序

所有样品均采用分子束外延方法在 GaAs(331)A 衬底上制得。衬底脱氧后,首先在 580 °C 淀积 200nm 的 GaAs 缓冲层,然后把衬底加热到 610 °C 并生长 150nm 的 GaAs 层。为了形成更高的台阶,我们把温度维持在 610 °C,退火 10min。然后将衬底温度降到 450 °C ~ 540 °C 范围并淀积不同厚度的 InAs。我们采用了两种方法来淀积 InAs 层:连续无停顿的淀积和间断的淀积(即每生长 0.1ML InAs 停顿 5s)。In 速率为 0.1ML/s,并通过高能电子衍射(RHEED)来校准。为了改善 InAs 层生长的均匀性,在生长时我们采用衬底旋转的方法。生长一结束,样品就被迅速冷却至室温。表面形貌分析是用 AFM 在室温大气环境中采用接触模式进行的。

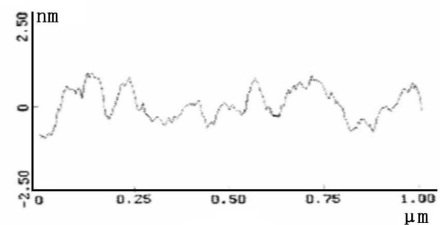
3 实验结果

图 1(a) 显示了淀积 150nm GaAs 层后表面台阶的 AFM 形貌。由图我们可以看到, GaAs 表面是由准周期多原子层台阶阵列组成的。这些台阶具有明显的取向,沿 $[1\bar{1}0]$ 晶向对齐。分析

RHEED 图样表明 GaAs(331) 表面是由 (110) 台面和 (111)A 台阶构成的。图 1(b) 是沿着图 (a) 中黑线扫描的横截面示意图。不难看出,台阶的侧面周期和高度分别为 90nm 和 1.5nm。



(a)



(b)

图 1 (a) GaAs 外层表面上形成多原子台阶的 AFM 形貌, (b) 沿 (a) 中的黑线扫描的台阶剖面线

图 2(a) ~ 图 2(c) 是在 GaAs 表面台阶上分别淀积 2.5、3.5 和 8ML InAs 的 3D 表面 AFM 图像。InAs 层的生长是在 510 °C 温度下的连续生长。很显然, InAs 的表面形貌与 InAs 层的厚度密切相关。InAs 层厚度为 2.5ML 时, InAs 纳米结构呈平坦的长方体状,并且沿 $[1\bar{1}0]$ 方向对齐,如图 2(a) 所示。其长度在 200 到 400nm 之间变动,而宽度接近于台阶的侧向周期(即大约 90nm)。因此,从 AFM 图像几乎看不出台阶了。当 InAs 层的厚度增加到 3.5ML 时,平台状 InAs 纳米微结构就变成线状,侧面逐渐变得圆滑,如图 2(b)。InAs 量子线长度有较大的波动。在某些区域, InAs 量子线沿着台阶线不断合并,可以累计到 1100nm。然而线宽几乎与台阶宽度相当。这些事实表明 InAs 岛的长宽比随着 InAs 层的厚度增加而增加。

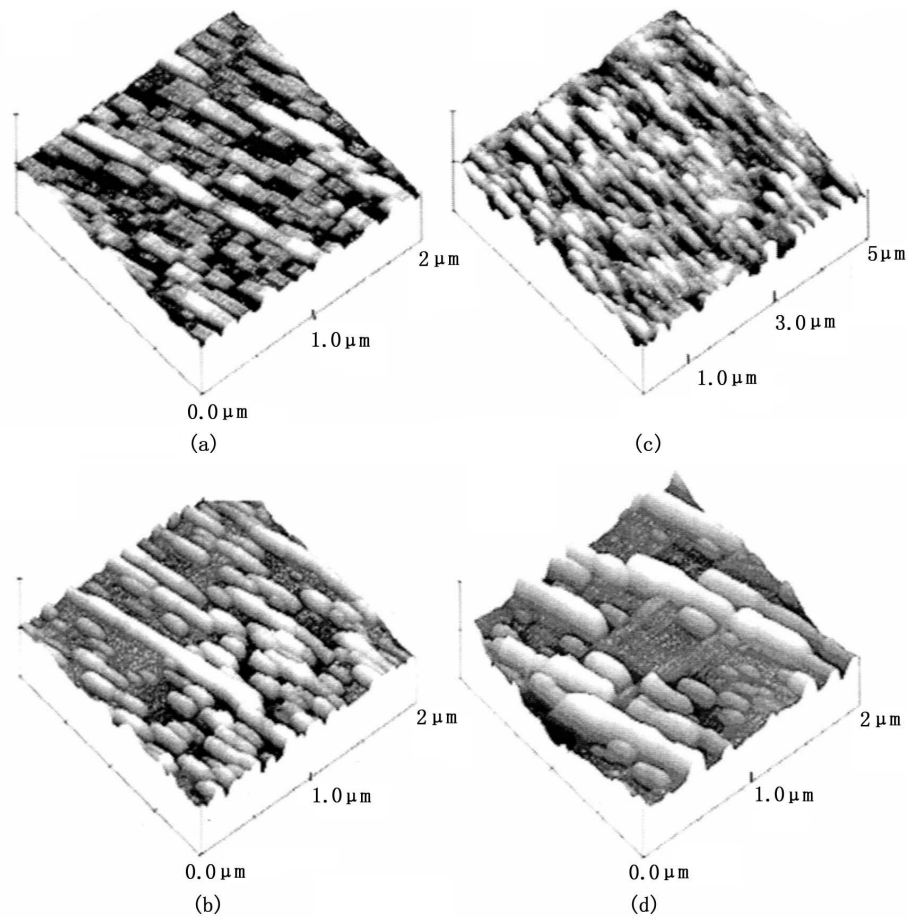


图 2 在 510 °C 处生长的 InAs 纳米结构的三维 AFM 图像。(a) ~ (c) 分别是用连续生长方式制备的 2.5、3.5 和 8ML 的 InAs 表面形貌, (d) 是用间断生长方式制备的 3.5MLInAs 纳米结构的表面形貌

当 InAs 厚度进一步增加到 8ML 时, InAs 量子线密度增大, 量子线开始叠加在一起, 而高度起伏较大。InAs 的长宽比进一步增加。另外, 由于一些不规则的岛的存在, InAs 量子线的周期和外形变得更加不稳定。

当用间断的生长模式淀积 InAs 层的时候, 如图 2(d), InAs 量子线侧向周期和高度增加了一倍。因此, 量子线的区域浓度显著下降。这种现象可以认为是由吸附原子的充分扩散而产生的。

值得注意的是, 改变生长温度会导致 InAs 生长模式发生明显的变化, 如图 3 所示。在较低的生长温度 450 °C ~ 510 °C 时, 量子线生长支配生长过程 (参见图 2 和图 3(a))。然而, 当衬底温度增加到 540 °C 的时候则转变为岛状生长 (参见图 3(b))。

4 讨论

综上所述, InAs 层的表面形貌演化主要与 InAs 层的厚度、生长方式、衬底温度有关。在较低的生长温度时, 虽然 InAs 表面形貌会因 InAs 厚度和生长方式的不同而不同, 但是线形生长仍占据了主导地位。这种现象可以部分归结为台阶表面的影响。首先, In 原子沿着台阶扩散速率较大, 因而有利于线状结构的形成。In 原子沿着不同晶向的扩散的各向异性已经有过报导^[14]。其次, 台阶的边缘是 In 原子集聚的首选位置。为了释放整个系统表面能, InAs 纳米结构优先在台阶线上形成。此外, 在相同的生长条件下, GaAs(100) 衬底上的 InAs 总是优先生成 3D 岛, 这间接证明了量子线的形成与台阶影响有关。

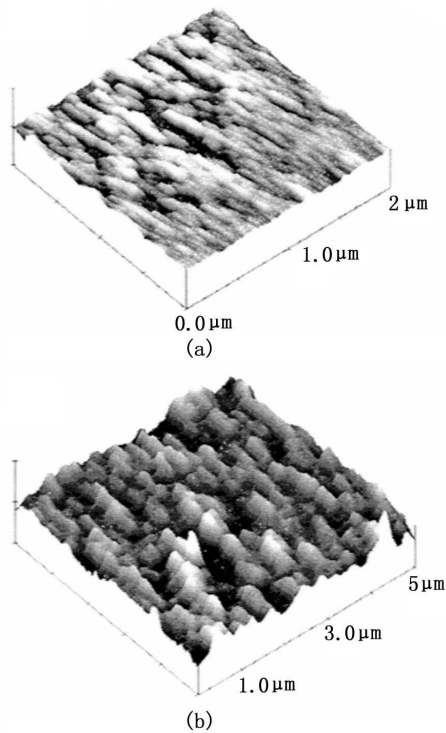


图3 在不同温度下用连续生长模式制备的InAs纳米结构表面形貌。(a)450 ℃和(b)540 ℃

然而, InAs层能够在高温下成岛的事实使问题更加复杂。如果台阶积累是线结构形成的主要驱动力的话,那么我们来解释InAs在高温下的生长模式转变呢?这些事实表明:

(1) 台阶积累对量子线的形成有促进作用,却不完全占据主导地位。

(2) 结合生长中热力学和动力学两方面的因素,可以对InAs表面形貌演化给出一个更全面的解释。

众所周知,晶体准平衡形状的转变可以看作是一个最小化系统表面自由能的热力学过程。另一方面,3D岛的形成有利于较大的晶格失配引起的应变能的释放。因此,我们认为上述形貌演化必定是表面能和应变能来达到一种低的能量状态的竞争所致。下面我们采用由Tersoff和Tromp提出的模型^[23]来对这种竞争进行定性描述。根据这个理论模型,一个矩形的受压岛的单位体积能量可以表达为:

$$\frac{E}{V} = 2\Gamma\left(\frac{1}{s} + \frac{1}{t}\right) - 2ch\left[\frac{1}{s}\ln\left(\frac{s}{\phi h}\right) + \frac{1}{t}\ln\left(\frac{t}{\phi h}\right)\right] \quad (1)$$

式中, s 、 t 和 h 分别为宽度、长度和岛的高度。

$$\Phi = e^{-2/3} \cot \theta$$

式中, θ 是接触角, Γ 包含表面能和界面能, c 是有关岛的基体应力和衬底的泊松级数和剪切系数的一个系数。表达式右侧前一项反映了InAs在无浸润层表面上形成长方形岛时的表面能和界面能的变化,而后一项则给出了由于衬底和岛之间的晶格失配而产生的弹性能变化。从公式(1)我们不难知道,为了表面能的稳定性而倾向于生成较大面积的岛的条件(长方形岛)。另一方面,应力松弛能量更倾向于更小区域的岛(3D岛)以得到更大的稳定性。在只考虑岛 s 和 t 的变化而岛的高度(h)不变的条件下,表面能和应变能之间的最佳平衡是通过使 E/V 最小化而获得的。从而,我们得到 $s = t = \alpha_0$,

$$\alpha_0 = e\Phi h e^{\Gamma/ch} \quad (2)$$

不难看出,当岛的尺寸 $s, t < e\alpha_0$ 时,方形岛的外形($s = t$)是稳定的。一旦岛的尺寸是临界直径(α_0)的 e 倍,方形外形则变得不稳定。岛会由压缩岛自发转变为长方形岛。当岛继续生长时,长宽比会继续变大。

显而易见,这个模型得出的结论和我们的实验结果是完全一致的。这表明这个模型具有普遍性意义,尽管模型原本是基于Ge/Si系统提出的。同时也证明了理论假设的有效性,即岛的高度是动力学限制的。实际上我们的实验结果也表明岛的高度的生长比长度要慢得多。

我们推断(如果模型是正确的),不同的生长条件特别是衬底温度对表面/界面能和应变能之比有很大影响。考虑到应变主要是由InAs和GaAs之间的晶格失配决定的,对于一定体积的InAs岛,衬底温度对应变能的影响是很微弱的(表达式后一项)。因此我们假定衬底温度主要对表面/界面能有很大影响(表达式前一项)。实际上,表面/界面能随衬底温度而变化,这一现象早已被证实^[15],而且高温更利于方形岛

生成。 Tersoff 和 Tromp^[16] 认为在高温下的热波动可以通过增加扩散速率来降低岛边界的自由能。类似地, 我们认为高温导致了应变能和表面能比率的增加。在这种情况下, 为了更有效地释放较大的应变能, InAs 岛会采用紧凑的形状(3D 岛)。因此, 从长方形岛到方形岛的形貌转变归结于比表面能更大的应变能的贡献。相似的长方形岛也在其他异质外延系统发现过, 如 Ge/Si^[17]。

最后, 我们强调沿着两个不同方向台阶边缘的各向异性应变对 InAs 量子线的形成起重要作用。理论上, 岛应该自发在最大应变的垂直方向形成, 由此, 我们推断最大应变的方向是 $[11\bar{6}]$ 。

5 结论

采用不同的生长条件制备了不同形貌的 InAs 纳米微结构, 用 AFM 研究了 InAs 纳米微结构表面形貌的演化。发现台阶积累可以促进线形纳米微结构的形成, 而高温有助于 3D 岛的形成。InAs 层形状的转变由岛的表面能和应变能的竞争所控制。

参考文献

- [1] Ustinov V M, Maleev N A, Zhukov A E, et al. InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at $1.3\mu\text{m}$, Appl. Phys. Lett. 1999, 74(19): 2815–2817.
- [2] Park G, Shchekin O B, Huaker D L, et al. 2000 IEEE Photonics Technol. Lett. 13 230.
- [3] Shchekin O B, Park G, Huaker D L, et al. Discrete energy level separation and the threshold temperature dependence of quantum dot lasers, Appl. Phys. Lett. 2000, 77(4): 466–468.
- [4] Nishi K, Saito H, Sugou S, et al. A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at $1.35\mu\text{m}$ from strain-reduced InAs quantum dots covered by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates, Appl. Phys. Lett. 1999, 74(8): 1111–1113.
- [5] Gong Z, Fang Z D, Xu X H, et al. Role of different cap layers tuning the wavelength of self-assembled InAs/GaAs quantum dot 2003 J. Phys.: Condens. Matter, 2003, 15(31): 5383.
- [6] Mano T, Nötzel R, Hamhuis G J, et al. Formation of InAs quantum dot arrays on GaAs (100) by self-organized anisotropic strain engineering of a (In,Ga)As superlattice template, Appl. Phys. Lett. 2002, 81(9): 1705–1707.
- [7] Konkar A, Madhukar A, Chen P. Stress-engineered spatially selective self-assembly of strained InAs quantum dots on nonplanar patterned GaAs(001) substrates, Appl. Phys. Lett., 1998, 72(13): 220–222.
- [8] Mui D, Leonard D, Coldren L A, et al. Surface migration induced self-aligned InAs islands grown by molecular beam epitaxy, Appl. Phys. Lett., 1995, 66(13): 1620–1622.
- [9] Seifert W, Carlsson N, Petersson A, et al. Alignment of InP Stranski-Krastanow dots by growth on patterned GaAs/GaInP surfaces, Appl. Phys. Lett., 1996, 68(12): 1684–1686.
- [10] Kohmoto S, Nakamura H, Ishikawa K, et al. Site-controlled self-organization of individual InAs quantum dots by scanning tunneling probe-assisted nanolithography, Appl. Phys. Lett., 1999, 75(22): 3488–3490.
- [11] Xie Q, Madhuakar A, Chen P, et al. Vertically Self-Organized InAs Quantum Box Islands on GaAs(100), Phys. Rev. Lett. 1995, 75: 2542.
- [12] Kitamura M, Nishioka M, Oshinowo J, et al. In situ fabrication of self-aligned InGaAs quantum dots on GaAs multiaatomic steps by metalorganic chemical vapor deposition, Appl. Phys. Lett., 1995, 66(26): 3663–3665.
- [13] Orth A, Reithmaier J P, Forchel A, et al. Room-temperature stimulated emission of optically pumped GaAs/AlAs quantum wires grown on (311) A-oriented substrates, Appl. Phys. Lett., 1994, 64(25): 3443–3445.
- [14] Yazdanpanah V R, Wang Z M, Salamo G J. 2003 Appl. Phys. Lett. 31 1766.
- [15] Bimberg D, Grundmann M, Ledentsov N N. 1999 Quantum Dots Heterostructures (England: John Wiley & Sons).
- [16] Tersoff J, Tromp R M. Shape transition in growth of strained islands: Spontaneous formation of quantum wires, Phys. Rev. Lett., 1993, 70: 2782.
- [17] Mo Y W, Savage D E, Swartzentruber B S, et al. Kinetic pathway in Stranski-Krastanov growth of Ge on Si (001), Phys. Rev. Lett., 1990, 65 1020.