

半导体量子点自组织生长过程的控制*

娄朝刚¹ 李献杰² 张晓兵¹ 雷 威¹

(1 东南大学电子工程系, 南京 210096)

(2 河北半导体研究所, 石家庄 050051)

摘要: 对控制半导体量子点的自组织生长进行了研究. 在对平均场模型和非平均场模型计算机模拟结果分析的基础上, 提出了利用隔离单元抑制量子点的熟化生长的方法来控制量子点的大小, 并对生长过程进行了计算机模拟. 结果表明通过将衬底表面的吸附原子海分割成一个个独立的隔离单元可以抑制量子点熟化生长, 调节量子点的生长速度, 达到制备大小均匀、排列有序的半导体量子点阵列的目的.

关键词: 自组织; 量子点; 熟化生长

PACC: 6150C; 8110B; 6855

中图分类号: TN302 文献标识码: A 文章编号: 0253-4177(2005)S0-0078-04

1 前言

半导体量子点因其优异的光电性能被认为是一种具有广阔应用前景的纳米结构, 因而在过去的十几年里得到了高度的关注^[1~4]. 要使量子点具备所需的性能, 其尺寸必须非常小, 通常在 50nm 以下. 由于受半导体微细加工技术的限制, 采用传统的光刻技术很难达到这样的要求, 并且容易给材料表面造成破坏, 而通过自组织生长方式则可以获得尺寸符合要求且晶格完整的半导体量子点, 所以被普遍认为是一种非常有希望的方法.

为了利用量子点来制作器件, 就需要对量子点的位置和尺寸进行控制. 而要做到这一点, 就必须了解自组织生长过程的机理. 目前国内外每年都在这方面发表大量的研究论文, 但由于自组织生长过程的复杂性, 至今人们仍然不清楚其真正的机理, 尚未找到一种较好的方法来控制量子点的位置和尺寸. 本文通过对描述自组织生长半导体量子点过程中熟化阶段的平均场模型和非平均场模型的讨论, 提出了采用隔离单元的方法抑制熟化生长来获得大小均匀、排列有序的量子点阵列的思路, 并对生长过程进行了计算机模拟.

2 平均场模型

平均场模型的基本出发点就是认为衬底表面上的量子点(也就是所形成的岛)被吸附原子海包围, 每个岛周围吸附原子海的化学势都相等(为了简化模型的复杂性, 本文只考虑二维圆形岛的生长情况). 岛的生长速度 $\frac{dA}{dt}$ 可用下式表示^[5]

$$\frac{\partial A}{\partial t} = -\frac{C\Gamma}{\omega kT}(u - u_{ad}) \quad (1)$$

其中 C 表示二维岛的周长; ω 表示单个原子的截面积; k 是波尔兹曼常数; T 是温度; Γ 是岛边缘的迁移率; u_{ad} 表示吸附原子海的化学势, 它的值等于具有平均半径的岛的化学势. 岛本身的化学势 u (这里只考虑形成二维岛造成的台阶所带来的能量增加)为^[6]

$$u = \frac{\omega\beta}{r} \quad (2)$$

其中 β 是单位长度台阶所带来的能量; r 为岛的半径.

从(1)和(2)式可以看出, 较大的岛具有较低的化学势和较高的生长速度, 较小的岛具有较高的化学势而生长较慢或缩小, 因此较小的岛与较大的岛

* 国家自然科学基金(批准号: 10347125), 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2003CB314702, 2003CB314706)和教育部博士点基金(批准号: 20030286003)资助项目

在尺寸上的差距随时间会变得越来越大. 实验结果表明平均场模型较好地描述了表面上所有岛整体的生长情况, 能够得出与实验相符的大小分布和平均半径的变化^[7,8]. 图 1 给出了由计算机模拟的岛尺寸分布, $\langle r \rangle$ 表示岛的平均半径.

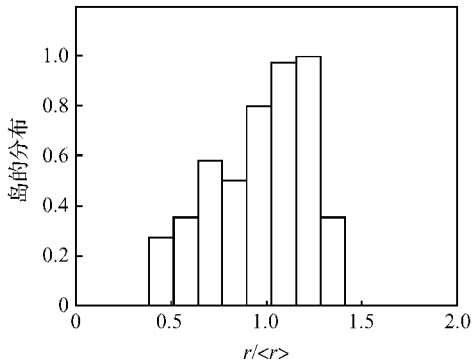


图 1 平均场模型中归一化的岛的大小分布

Fig. 1 Island size distribution in the mean-field model

3 非平均场模型

进一步的实验研究表明岛的生长或缩小并不是像平均场模型所描述的那样, 实验中观察到较小的岛的生长有时会快于较大的岛^[5]. 为了能够更准确地描述量子点的自组织生长, Bartelt 等人提出了非平均场模型^[5]. 他们认为受吸附原子表面扩散长度的限制, 各个岛周围的吸附原子海的化学势不是处处相等的, 而是取决于相邻几个岛的化学势. 为了模拟非平均场模型, 我们利用 Voronoi 网络来划分每个岛周围的吸附原子海. 在每个 Voronoi 单元内只有一个岛, 且单元内吸附原子海的化学势相等. 对于第 i 个岛, $u_{ad,i}$ 可以表示为^[5]

$$u_{ad,i} = \frac{\omega\beta}{2\pi} \sum_j \alpha_{i,j} \frac{2}{r_i + r_j} \quad (3)$$

其中 $\alpha_{i,j}$ 是第 i 个岛与它所在的 Voronoi 单元相邻两顶点连线的夹角, 且 $\alpha_{i,j} = \alpha_{j,i}$, 如图 2 所示. 图 3 给出了基于非平均场模型的计算机模拟的岛尺寸分布. 与图 1 相比较, 非平均场模型中岛的分布稍窄, 但岛在尺寸上的差距仍然较大.

4 隔离单元模型

从以上分析可以看出, 量子点的大小分布主要取决于熟化生长阶段岛与吸附原子海之间的原子交换, 造成了一些较大的岛持续长大, 而另一些较小的

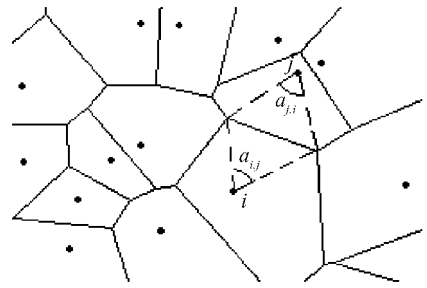


图 2 Voronoi 网络示意图 每个黑点代表一个岛, 每个岛位于一个 Voronoi 多边形中.

Fig. 2 Voronoi network One dot represents one island which is located in a Voronoi cell.

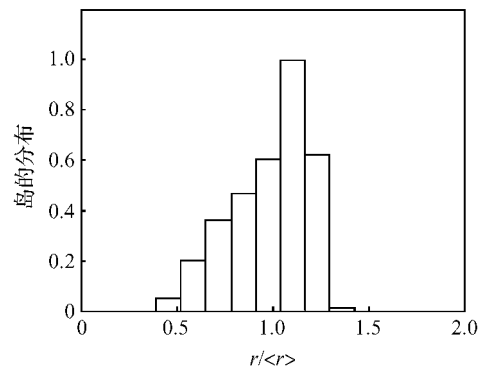


图 3 非平均场模型中归一化的岛的大小分布

Fig. 3 Normalized island size distribution in the non-mean-field model

岛缩小甚至消失. 虽然个别较小的岛可能会比一些较大的岛生长得快, 但改变不了整体上岛的大小分布. 为了获得大小一致的岛, 就需要对岛的熟化生长进行控制. 基于这样的考虑, 我们提出了利用衬底表面隔离单元来抑制熟化生长的方法. 具体的实验方法为: 先在半导体衬底表面沉积一层厚度为 10~30nm 的氧化物薄膜, 然后通过电子束光刻和腐蚀工艺将氧化物薄膜制作成小单元阵列, 每个单元的尺寸在几十个纳米以下, 相邻单元间隔离墙的厚度应尽可能小; 再利用分子束外延或金属有机物化学气相沉积的方法外延生长量子点; 最后采用适当的腐蚀工艺去除氧化物隔离墙, 这样就得到了所希望的量子点阵列.

图 4 给出了隔离单元阵列的示意图. 衬底为 Si, 氧化物薄膜是 SiO₂. 现在我们来分析其抑制熟化生长的机理. 隔离单元将吸附原子海分割成一个个独立的小区域, 吸附原子无法在相邻单元间扩散, 这样每个单元内吸附原子海的化学势就由单位时间内沉

积到这个单元的原子数和单元内岛面积的变化决定。如果岛生长速度较快,它将消耗较多的吸附原子而降低单元内吸附原子海的化学势,从而减慢岛的生长速度。反过来,如果岛缩小,它将释放原子而增加单元内吸附原子海的化学势,减慢岛的缩小速度直到岛与吸附原子海的化学势达到平衡而停止生长。然后新沉积到单元内的原子将使得吸附原子海的化学势增加而高于岛的化学势,使得原来一直缩小的岛开始转为长大。

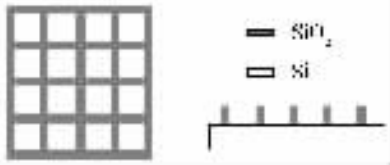


图 4 隔离单元示意图 衬底为 Si,隔离墙为 SiO_2 。

Fig. 4 Isolated cell arrays Substrate is Si and isolated wall is SiO_2 .

需要指出的是,在成核的初期,一个单元内有可能形成两个或多个岛。随着熟化生长的开始,由于每个单元的尺寸很小,这些岛将会合并成一个岛,或者通过熟化生长使得较小的岛不断缩小直至消失而只留下一个岛。另外,隔离单元为吸附原子提供了优先成核的位置,这有利于制备排列规则的量子点阵列。

图 5 给出了用于计算机模拟的岛的初始状态与模拟完成后的最后状态。很明显,在隔离单元内岛与吸附原子海之间的相互作用可以自动调节岛的生长速度以便获得大小一致的岛阵列。图 6(a)给出了 10

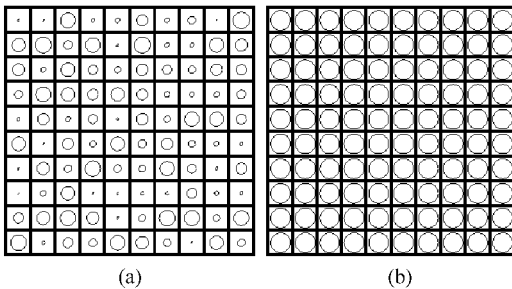


图 5 计算机模拟中岛的初始状态(a)与最后状态(b)

Fig. 5 Computer simulation of the isolated cell model's initial (a) and final configurations (b)

个岛的大小随时间的变化。可以看出,较小的岛在经过了初期的缩小后转为长大,而较大岛的生长速度逐渐减慢。图 6 (b)给出了两个岛及其所在单元吸附原子海化学势的变化。由于获得大小一致的岛所

需要的模拟时间较长,在图 6 中用虚线代替了中间的变化过程以便能够清楚地看到一些岛从缩小到长大的转变。

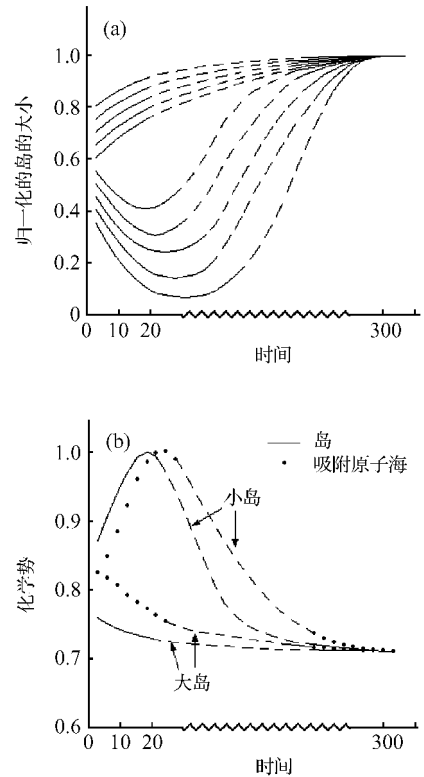


图 6 (a) 岛的尺寸随时间的变化;(b) 岛及其所在单元吸附原子海化学势随时间的变化

Fig. 6 (a) Evolution of island sizes;(b) Evolution of chemical potentials of islands and adatom sea

5 结论

从基于平均场和非平均场模型的计算机模拟结果来看,量子点的熟化生长是造成量子点大小不一致的关键过程。要获得大小一致的量子点就需要对熟化生长进行抑制。利用衬底表面的隔离单元将吸附原子海分割成一个个独立的小区域,可以调节每个单元内吸附原子海的化学势,控制量子点的生长速度。模拟结果表明这种方法可以降低较大的岛的生长速度,并可以将初始阶段缩小的岛转为长大,从而获得大小一致的量子点阵列。

参考文献

- [1] 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(8):1020
- [2] Eaglesham D J, Cerullo M. Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si(100). Phys Rev Lett,1990,64(16):1943
- [3] Heidemeyer H, Denker U, Müller C, et al. Morphology response to strain field interferences in stacks of highly ordered quantum dot arrays. Phys Rev Lett,2003,91(19):196103
- [4] Tersoff J, Teichert C, Lagally M G. Self-organization in growth of quantum dot superlattices. Phys Rev Lett,1996,76(10):1675
- [5] Bartelt N C, Theis W, Tromp R M. Ostwald ripening of two-dimensional islands on Si(001). Phys Rev B,1996,54(16):11741
- [6] Tromp R M, Hannon J B. Thermodynamics of nucleation and growth. Surf Rev Lett,2002,9(3/4):1565
- [7] Ross F M, Tersoff J, Tromp R M. Coarsening of self-assembled Ge quantum dots on Si(001). Phys Rev Lett,1998,80(5):984
- [8] Floro J A, Sinclair M B, Chason E, et al. Novel SiGe island coarsening kinetics; Ostwald ripening and elastic interactions. Phys Rev Lett,2000,84(4):701

Control of Growth of Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*

Lou Chaogang¹, Li Xianjie², Zhang Xiaobing¹, and Lei Wei¹

(1 Department of Electronic Engineering, Southeast University, Nanjing 210096, China)

(2 Hebei Semiconductor Research Institute, Shijiazhuang 050051, China)

Abstract: This paper investigates the control of growth of self-assembled semiconductor quantum dots. After simulating the self-assembled quantum dots based on mean-field model and nonmean field model, a method to control the sizes of quantum dots by suppressing the ripening of islands is proposed, and a computer simulation based on this method is carried out. Results show that separating adatom sea into many nanometer-sized isolated cells will suppress the ripening of islands, thus growing rates can be adjusted to obtain ordered and uniform quantum dot arrays.

Key words: self-assembly; quantum dot; ripening

PACC: 6150C; 8110B; 6855

Article ID: 0253-4177(2005)S0-0078-04

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China(No. 10347125), the State Key Development Program for Basic Research of China(No. 2003CB314702, 2003CB314706), and the Foundation of Doctoral Program of Ministry of Education(No. 20030286003)