

GaAs 图形衬底上 InAs 量子点生长停顿的 动力学蒙特卡罗模拟*

何 为 郝智彪 罗 毅

(清华大学电子工程系 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100084)

摘要: 采用动力学蒙特卡罗模拟方法对 GaAs 图形衬底上自组织生长 InAs 量子点的停顿过程进行了研究. 用衬底束缚能的表面分布模拟衬底图形, 考察生长之后的停顿时间对量子点形成的影响. 结果表明, 合适的停顿时间使图形衬底上的量子点分布更趋规则化, 对量子点的定位生长有积极的影响.

关键词: 动力学蒙特卡罗模拟; 量子点; 外延生长

PACC: 7115Q; 8115N

中图分类号: TN304. 054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)04-0707-04

1 引言

半导体量子点在纳米电子学、纳米光子学和光电子学等领域具有相当广泛的应用前景, 基于量子点的固态量子器件在量子信息技术中将扮演重要角色, 如单电子晶体管^[1]、量子存储器^[2]以及应用于保密通信的单光子源^[3]等. 这些器件应用的关键之一是对量子点的尺寸和位置进行有效控制. 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这些位置上, 从而达到对量子点位置的控制. 其中, 图形衬底上生长量子点的方法由于其引入杂质少、可控性好而引起了人们越来越多的关注^[4].

动力学蒙特卡罗方法 (Kinetic Monte Carlo, KMC) 是一种用于模拟表面生长随时间变化过程的方法, 已经被用于 InAs/ GaAs 以及 Ge/ Si 量子点等外延生长过程的研究, 取得了与实际情况相符的结果. 用 KMC 方法研究外延生长的关键在于找到合适的物理模型, 既能够抽象各种实际生长条件, 又能够方便数学表达, 适于模拟. 如 Meixner 等人^[8]引入

Green 函数表示量子点边缘的应力, 考察了生长速率、生长温度以及停顿时间对生长结果的影响. 邓宁等人^[9]引入与量子点大小相关的能量来表示量子点边缘原子的应力作用. Nurminen 等人^[10]通过定义束缚能的分布来表示非平坦的衬底表面. 一般在量子点生长过程结束之后有一个短暂的停顿过程, 使吸附原子在表面进行适度的迁移、结合并形成量子点^[11]. 然而, 对于非平坦衬底上量子点生长后的停顿过程的研究, 还未见报道. 本文采用 KMC 方法对非平坦 GaAs 图形衬底上 InAs 量子点生长后的停顿过程进行模拟, 研究了停顿时间对量子点定位生长的影响.

2 动力学蒙特卡罗模拟的计算模型

动力学蒙特卡罗方法认为衬底是 SOS (Solid on Solid) 简单立方密排结构, 没有缺陷和位错, 通过模拟原子在表面的吸附和迁移过程来获得吸附原子在表面的位置信息. 在 KMC 模拟中, 一个原子的迁移速率被表征为它迁移到一个相邻位置的几率, 几率越大, 迁移到相邻位置的次数越多, 迁移速率越大.

*国家自然科学基金资助项目 (批准号: 60244001, 60390074)

何 为 男, 硕士研究生, 主要研究方向为 π - 族化合物分子束外延.

郝智彪 男, 讲师, 主要从事分子束外延生长以及新型器件的研究. Email: zbhao@mail.tsinghua.edu.cn

2004-04-26 收到, 2004-07-19 定稿

©2005 中国电子学会

一个原子迁移到相邻位置的几率为：

$$P = \exp\left(-\frac{E_s + nE_n}{k_b T}\right)$$

其中 E_s 是表面的束缚能； E_n 是相邻原子的束缚能； n 为相邻原子数； T 为生长温度； k_b 为玻尔兹曼常数； ν 为原子的振动频率. 对于 InAs/GaAs 系材料, 可以采用这种 SOS 简单立方密排结构来研究 InAs 量子点的生长过程. 在 ν 比远大于 1 的条件下, 可以仅考虑 In 原子在表面的吸附, 取 $n=0 \sim 4$, 表示有不同相邻原子数的情况, 并忽略 In 原子的解吸附过程.

在模拟过程中, 每个单位时间内, 都重复如下两步. 首先, 晶格表面的点被随机选取, 以选中的点为中心, 在边长 $2R_i + 1$ 的方形区域内进行搜索, 将有最多相邻原子数的点作为吸附原子的附着点. 然后, 计算表面所有吸附原子的迁移几率, 有 4 个相邻原子的被认为不迁移. 每计算得到一个原子的迁移几率后都与一个 $[0, 1]$ 区间上的随机数做比较, 如果几率大于该随机数, 则认为该原子会迁移, 并让其随机迁移到某个相邻的位置上, 否则认为该原子不迁移^[12].

本文研究的图形衬底上有周期性分布的倒金字塔形凹坑. 我们采用如图 1 所示的模型来表示图形衬底, 认为图形衬底造成了 E_s 的表面分布, 即表面分布一些边长为 $2a+1$ 的区域, 对应于凹坑. 这些区域的中心位置对应凹坑的最深处, 表面束缚能最高 (E_{s2}); 边缘与平面相同, 表面束缚能最低 (E_{s1}). 凹坑的间隔为 d . 对于 InAs/GaAs 系统, 选取参数如下^[8,10]: $E_{s1} = 1.3\text{eV}$, $E_{s2} = 1.6\text{eV}$, $E_n = 0.15\text{eV}$, $T = 620\text{K}$, $\nu = 10^{13}\text{Hz}$, $a = 10$, $d = 19$, $R_i = 1$.

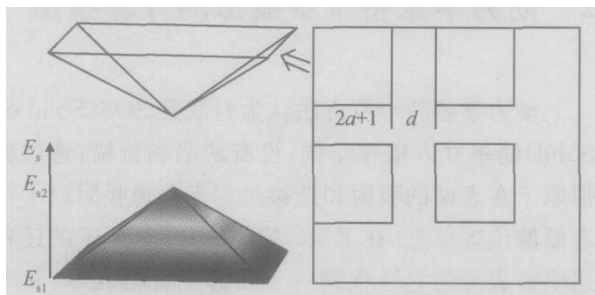


图 1 图形衬底表面束缚能分布

Fig. 1 Distribution of surface energy on patterned substrate

在得到的模拟结果中, 我们认为迁移几率大的点将会是浸润层的一部分, 主要进行二维生长; 而迁

移几率小或不会发生迁移的点将作为岛状生长的一部分, 是量子点的雏形. 因此我们把由迁移几率小的点组成的二维岛作为主要的考察对象.

3 结果与讨论

我们选择的模拟区域为 400×400 晶格, 生长温度为 620K , 生长速度为 0.003ML/s . 模拟了 100s 生长, 以及生长之后分别停顿 $100, 200, 300, 400$ 和 500s 共六种不同的情况, 模拟得到的表面状态如图 2 所示. 由图可见, 刚刚生长结束时, 除了凹坑之外, 在平坦的衬底表面也随机分布着很多小岛, 而凹坑处岛的形状和尺寸非常杂乱. 随着停顿时间加长, 平坦表面上的小岛明显减少, 凹坑处岛的尺寸逐渐增大, 其尺寸和形状分布趋于规则化. 由此可见, 生长后的停顿是有利于量子点定位生长的.

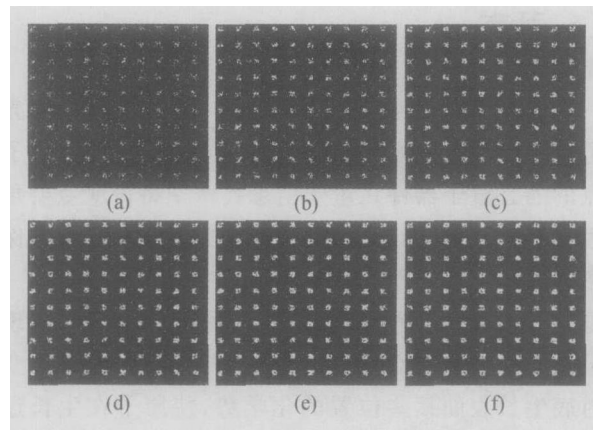


图 2 生长 100s (a), 以及生长之后停顿 100s (b); 200s (c); 300s (d); 400s (e); 500s (f) 的表面状态模拟结果

Fig. 2 Island morphologies obtained after 100s growth (a) and different pause time after growth: 100s (b); 200s (c); 300s (d); 400s (e); 500s (f)

我们对以上不同情况下衬底表面二维岛的总原子数目进行了统计, 结果见图 3, 图中横轴所示的时间为生长 100s 之后的停顿时间. 显然, 随着停顿时间的增长, 越来越多的吸附原子从浸润层迁移到二维岛周围, 使表面二维岛的分布更趋集中, 尺寸变大. 这与图 2 所示的情形是一致的.

为考察停顿时间对表面二维岛分布的影响, 我们以每个岛所含原子数统计了不同时间下二维岛的尺寸分布, 如图 4 所示. 为清楚见, 不同时间的数据在纵向作了等间隔的偏移, 图中所示时间同样为生

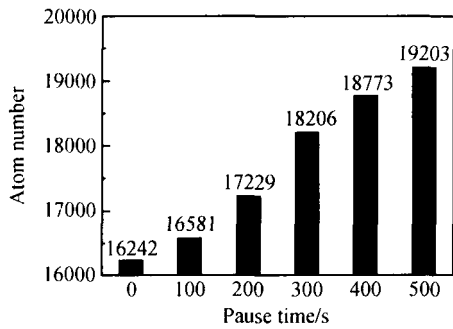


图 3 不同停顿时间下表面二维岛的原子总数 量子点的生长时间为 100s

Fig. 3 Number of atom in islands after different pause time The growth time of quantum dots is 100s

长 100s 之后的停顿时间. 可见, 当生长后停顿 200s 以上时, 表面二维岛的尺寸分布规律趋于稳定. 大尺寸二维岛的总数基本不再变化, 而岛的尺寸逐渐增大. 很显然, 大尺寸二维岛的总数受限于图形衬底上的凹坑总数. 另一方面, 在实际生长中, 停顿时间的增加意味着混入杂质增多, 从而影响量子点的光学质量. 因此, 生长之后的停顿时间存在最优值, 使量子点的分布最规则, 同时具有较好的光学特性. 在本文模拟条件下, 该最优停顿时间在 200s 左右.

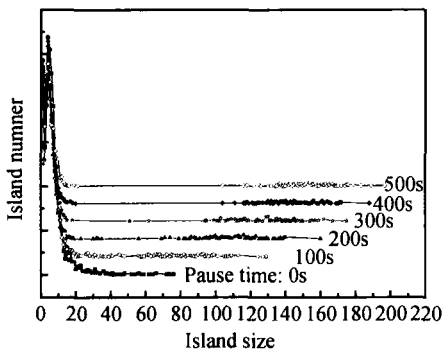


图 4 不同停顿时间下表面二维岛的尺寸分布 量子点的生长时间为 100s.

Fig. 4 Distribution of island size as a function of pause time The growth time of quantum dots is 100s.

4 结论

本文采用动力学蒙特卡罗方法, 对 GaAs 图形衬底上自组织生长的 InAs 量子点的停顿过程进行了模拟研究, 衬底图形用衬底束缚能分布来表示. 结

果表明, 在量子点生长结束后引入停顿有利于使量子点的分布更加规则; 而在一定停顿时间之后, 量子点的尺寸分布规律将趋于稳定. 为使量子点的分布规则, 同时具有较高的光学质量, 生长之后的停顿时间存在最优值.

参考文献

- [1] Friesen M, Tahan C, Joynt R, et al. Spin readout and initialization in a semiconductor quantum dot. *Phys Rev Lett*, 2004, 92 (3) :37901
- [2] Imamura K, Sugiyama Y, Nakata Y, et al. New optical memory structure using self-assembled InAs quantum dots. *Jpn J Appl Phys*, 1995, 34:L1445
- [3] Kim J, Benson O, Kan H, et al. A single-photon turnstile device. *Nature*, 1999, 397:500
- [4] Ishikawa T, Nishimura T, Kohmoto S, et al. Site-controlled InAs single quantum dot structures on GaAs surfaces patterned by in situ electron-beam lithography. *Appl Phys Lett*, 2000, 76(2) :167
- [5] Borgstrom M, Bryllert T, Gustafson B, et al. Electron beam pre-patterning for site-control of self-assembled InAs quantum dots on InP surfaces. *J Electron Mater*, 2001, 30(5) :482
- [6] Gerardot B D, Subramanian G, Minvielle S, et al. Self-assembling quantum dot lattices through nucleation site engineering. *J Cryst Growth*, 2002, 236(4) :647
- [7] Kohmoto S, Nakamura H, Ishikawa T, et al. Site-controlled self-organization of individual InAs quantum dots by scanning tunneling probe-assisted nanolithography. *Appl Phys Lett*, 1999, 75(22) :3488
- [8] Meixner M, Kunert R, Scholl E. Control of strain-mediated growth kinetics of self-assembled semiconductor quantum dots. *Phys Rev B*, 2003, 67(19) :195301
- [9] Deng N, Xiao H, Chen P Y, et al. Kinetic Monte Carlo simulation of initial nucleation stage of 2D Ge islands. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2003, 24(Supplement) :56 (in Chinese) [邓宁, 肖鸿, 陈培毅, 等. 二维 Ge 岛成核早期阶段的动力学蒙特卡罗模拟. *半导体学报*, 2003, 24(增刊) :56]
- [10] Nurminen L, Kuronen A, Kaski K. Kinetic Monte Carlo simulation of nucleation on patterned substrates. *Phys Rev B*, 2000, 63(3) :35407
- [11] Madhukar A, Xie Q, Chen P, et al. Nature of strained InAs 3-dimensional island formation and distribution on GaAs(100). *Appl Phys Lett*, 1994, 64(20) :2727
- [12] Kotrla M. Numerical simulations in the theory of crystal growth. *Computer Physics Communications*, 1996, 97:82

Kinetic Monte Carlo Simulation of InAs Quantum Dots Growth Pause on GaAs Patterned Substrate *

He Wei , Hao Zhibiao , and Luo Yi

(*State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, Department of Electronic Engineering,
Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

Abstract : The self-organized growth of InAs quantum dots on patterned GaAs substrate ,especially the influence of growth pause on the characteristics of quantum dots is studied with Kinetic Monte Carlo method. The patterned substrate is described by the distribution of surface energy. The simulation results show that an appropriate pause time tends to make the quantum dots more uniform and regular ,hence facilitating site-control of quantum dots.

Key words : Kinetic Monte Carlo simulation; quantum dots; epitaxial growth

EEACC: 7115Q; 8115N

Article ID : 0253-4177(2005)04-0707-04

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Nos. 60244001 ,60390074)

He Wei male ,master postgraduate. His main research interest is MBE growth of III-V compound semiconductors.

Hao Zhibiao male ,lecturer. His current research interests include MBE growth and fabrication of novel devices. Email :zbhao@mail.tsinghua.edu.cn

Received 26 April 2004 ,revised manuscript received 19 July 2004

©2005 Chinese Institute of Electronics