

液滴外延自组织 GaAs 纳米结构*

詹 锋^{1,†} 黄社松² 倪海桥² 赵 欢² 熊永华² 周宏余¹ 牛智川²

(1 北京师范大学材料科学与工程系 射线束技术与材料改性教育部重点实验室, 北京 100875)

(2 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: 介绍了利用液滴外延法在晶格匹配体系 AlGaAs/GaAs 上自组织生长几种 GaAs 纳米结构. 实验证实 Ga 液滴的形貌随晶化温度和 As 束流的不同而发生变化, 形成一些有趣的 GaAs 纳米结构, 如量子点、量子单环、量子双环、耦合量子双环和中国古币形状等. 本文对这些纳米结构的生长机制进行了讨论.

关键词: 液滴外延; 量子点; 量子单环; 量子双环

PACC: 6855; 6146

中图分类号: TN304.2⁺3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0141-04

1 引言

近年来,人们对自组织半导体纳米结构进行了大量的研究,最常用自组织方法(如 SK 生长模式)只能生长几何形状相对简单的材料^[1~3]. 新奇半导体纳米结构受其形状的影响很可能出现新的光学、电学和磁学特性^[4],其中环状结构有可能应用于量子干涉效应和 Aharonov-Bohm 效应的研究中^[5].

最近,量子耦合体系引起了人们的关注,因为该体系可能应用于量子计算和自旋电子学领域^[6]或用来研究带有分子键的量子纳米结构^[7]. 虽然人们对耦合量子点在理论和实验上都有所研究^[8],但是耦合量子环的制备却鲜有报道. 需要建立一种有效合成量子环复合体的方法.

传统制备半导体环的方法是光刻^[9],但是随着环的直径变小,该方法会变得更复杂. 而自组织应变量子环^[10]仅能制备单环且覆盖层的应变对量子环的光学和电学特性有较大影响.

目前,人们利用液滴外延法在晶格匹配体系中生长半导体纳米结构^[11]. 这种方法主要是让 V 族元素与在 III-V 族化合物半导体衬底形成的 III 族元素的纳米液滴反应形成 III-V 纳米结构. 我们报道在晶格匹配体系中利用液滴外延法制备 GaAs 量子点、量子单环、量子双环、耦合双环以及中国古币形状纳米结构.

2 实验

所有的样品均以半绝缘 GaAs(100)晶片为衬底,在 VG80 固态源分子束外延设备中生长. 在衬底脱氧后,先后生长 500nm 的 GaAs 缓冲层和 200nm 的 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 层,关闭 As 快门,将衬底降至所需温度. 在无 As 气氛沉积 Ga 原子形成 Ga 液滴,打开 As 快门, Ga 液滴与 As 晶化成 GaAs 纳米结构. 使用原子力显微镜(AFM)对 GaAs 纳米结构进行测试.

3 结果与讨论

图 1 是 300°C 下沉积 6MLs 的 Ga 形成的 Ga 液滴的 AFM 图像. 液滴的大小比较均匀,面密度为 $3.7 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$,平均尺寸(高度)为 35nm(8.7nm).

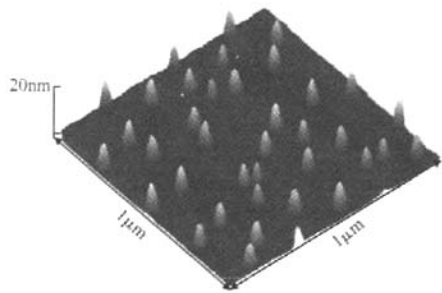


图 1 300°C 下沉积 6 单层(MLs)Ga 形成 Ga 液滴的 AFM 图像

Fig.1 AFM image of Ga droplets formed by depositing 6MLs Ga at 300°C

* 国家自然科学基金,国家高技术研究发展计划和国家重大基础研究专项基金资助项目

† 通信作者. Email:zhf@red.semi.ac.cn

2006-11-30 收到,2006-12-12 定稿

图 2 是不同温度下晶化 Ga 液滴形成 GaAs 纳米结构的表面形貌,其中 Ga 的淀积量为 6MLs,As 束流为 1.33×10^{-4} Pa. 在 150°C 的衬底温度下形成密度在 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 以上的高密度量子点,如图 2(a)所示,这与前人的工作相吻合^[12]. 当衬底温度升至 170°C,保持其他生长参数不变,量子点的表面形貌产生一些变化,在每个量子点的顶端出现了浅的凹陷,如图 2(b)所示.

当衬底温度升至 200°C,形成密度为 $1.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 的单量子环,环的直径和高度分别为 40 和

2.5nm,如图 2(c)所示. 当衬底温度升至 300°C,许多独特的量子双环形成,如图 2(d)所示,内环和外环平均直径为 40 和 97nm.

当衬底温度升至 350°C,量子环高度减小,其中部分量子环消失,如图 2(e)所示. 当衬底温度升至 400°C,所有的量子环均消失,只留下一些小洞及其周围的小岛,如图 2(f)所示. 从图 2(f)样品的正上方看,就像中间留有方孔的中国古币,孔在 $[0\bar{1}1]$ 方向的长度比 $[011]$ 方向的长度略长,如图 2(g)所示.

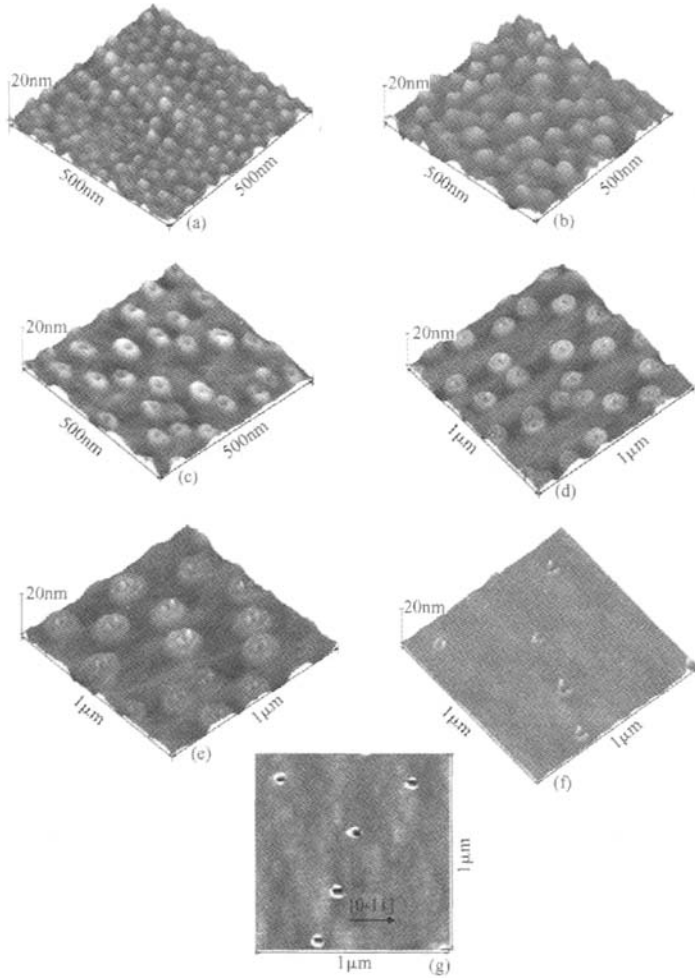


图 2 在不同温度下晶化 Ga 液滴形成 GaAs 纳米结构的 AFM 图像 (a) 150°C; (b) 170°C; (c) 200°C; (d) 300°C; (e) 350°C; (f) 400°C; (g) 为 (f) 平面视图

Fig.2 AFM images of surface morphologies after crystallization of 6MLs Ga droplets under different temperatures (a)150°C; (b)170°C; (c)200°C; (d)300°C; (e)350°C; (f)400°C; (g) Top view of Fig. 2(f)

现在讨论这些纳米结构的形成机制. 结晶形貌与表面吸附原子迁移及 Ga 液滴的晶化速度有关. 当温度低于 150°C (远未达到 MBE 的平衡生长条件) 时, 生长模式将从二维的 Frank-van der Merwe 模式转化到三维的 Volmer-Weber (V-W) 模式^[13]. 在此低温下 Ga 原子难以迁移, Ga 液滴晶化成 GaAs 量子点. 将温度升至 170°C , Ga 原子迁移能力稍微提高, 导致量子点的表面形貌有所变化, 在每个点的顶端出现了浅的凹陷. 继续升温至 200°C , 在液滴边缘处 Ga 原子晶化速度比在液滴中间的要快, 使得液滴中间的 Ga 原子向边界迁移并在液滴边界附近晶化, 形成量子单环. 生长温度升至 300°C , Ga 原子可以迁移得更远, 除了一些 Ga 原子在液滴的边界晶化形成双环中的内环, 其它原子则向液滴外 As 原子浓密分布的表面迁移并晶化形成量子双环的外环.

当衬底温度升至 350°C , Ga 原子可以从液滴向

外迁移得更远, 导致量子双环的高度减小甚至消失. 继续升高衬底温度至 400°C , 量子双环完全消失, 留下中国圆形古币状的纳米结构——方孔周围环绕着一些小岛(见图 2(g)). 我们认为那些小岛是由最初 Ga 液滴的边界晶化所成, Ga 原子的不断向外迁移使 Ga 液滴中部留下了孔. 而且, 各向异性的迁移特性使得 Ga 原子沿着 $[0\bar{1}1]$ 方向比沿 $[011]$ 方向迁移得更远, 导致孔沿 $[0\bar{1}1]$ 方向的长度比 $[011]$ 方向略长.

为了更进一步研究这些量子环复合物的形成机制, 改变 As 束流研究形貌变化. 在 As 束流为 $6.67 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 时, 一些量子双环两两耦合, 如图 3(a) 所示. 保持其他生长参数不变, 当 As 束流进一步降至 $3.33 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 时, 出现了一些三个量子环相互耦合的结构, 如图 3(b) 所示. 耦合量子环的制备为研究交叉耦合分子体系中出现的量子干涉效应提供了机会.

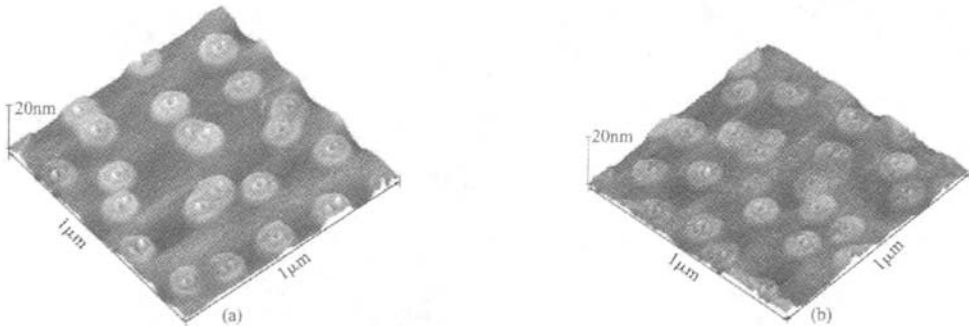


图3 改变 As 束流 GaAs 表面形貌变化 (a) $6.67 \times 10^{-5} \text{ Pa}$; (b) $3.33 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 其中 Ga 淀积量是 6MLs, 晶化温度为 300°C .

Fig.3 AFM images of surface morphologies after crystallization of Ga droplets under different As flux with 6MLs Ga deposition at 300°C (a) $6.67 \times 10^{-5} \text{ Pa}$; (b) $3.33 \times 10^{-5} \text{ Pa}$

当 As 束流减小时耦合量子环会出现的事实为前面所述的生长机制理论提供了直接的证据, 当晶化温度固定时, 晶化速率随着 As 束流的减小而降低, 因此 Ga 原子可以扩散到离 Ga 液滴更远的地方, 增加了与邻近量子双环的耦合概率.

4 结论

在晶格匹配体系中用液滴外延法在 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 表面通过改变 Ga 液滴的晶化温度成功制备了 GaAs 量子点、量子单环、量子双环. 通过改变 As 束流, 获得耦合量子双环, 这为研究耦合量子环光学及电学性质提供了机会, 为量子干涉效应的测量开辟

了途径. 本文还对这些纳米结构的生长机制进行了解释.

参考文献

- [1] Bimberg D, Grundmann M, Ledentsov N N. Quantum dots heterostructures. New York: Wiley, 1999
- [2] Petroff P M, Lorke A, Imamoglu A. Epitaxial self assembled quantum dots. Phys Today, 2001, 54: 46
- [3] Gong Z, Niu Z C, Fang Z D, et al. Surface morphology control of strained InAs/GaAs(331)A films: from nanowires to island-pit pairs. Appl Phys Lett, 2005, 86, 013104
- [4] Osterkamp T H, Fujisawa T, Van der Wiel W G, et al. Microwave spectroscopy of a quantum-dot molecule. Nature, 1998, 395: 873

- [5] Keyser U F, Borck S, Haug R J, et al. Aharonov-Bohm oscillations of a tuneable quantum ring. *Semicond Sci Technol*, 2002, 17; L22
- [6] Imamoglu A, Awschalom D D, Burkard G, et al. Quantum information processing using quantum dot spins and cavity QED. *Phys Rev Lett*, 1999, 83; 4204
- [7] García J M, Medeiros-Ribeiro G, Schmidt K, et al. Intermixing and shape changes during the formation of InAs self-assembled quantum dots. *Appl Phys Lett*, 1997, 71; 2014
- [8] He L, Bester G, Zunger A. Singlet-triplet splitting, correlation and entanglement of two electrons in quantum dot molecules. *Phys Rev B*, 2005, 72; 195307
- [9] Fuhrer A, Luscher S, Ihn T, et al. Energy spectra of quantum rings. *Nature*, 2001, 413; 822
- [10] Garica J M, Silveira J P, Briones F, et al. Strain relaxation and segregation effects during self-assembled InAs quantum dots formation on GaAs(001). *Appl Phys Lett*, 2000, 77; 409
- [11] Huang S S, Niu Z C, Fang Z D, et al. Complex quantum ring structure formed by droplet epitaxy. *Appl Phys Lett*, 2006, 89; 031921
- [12] Watanabe K, Koguchi N, Gotoh Y, et al. Fabrication of GaAs quantum dots by modified droplet epitaxy. *Jpn J Appl Phys*, 2000, 39; L79
- [13] Sanguinetti S, Watanabe K, Tateno T, et al. Modified droplet epitaxy GaAs/AlGaAs quantum dots grown on a variable thickness wetting layer. *J Cryst Growth*, 2003, 253; 71

GaAs Nanostructures Formed by Self-Assembled Droplet Epitaxy*

Zhan Feng^{1,†}, Huang Shesong², Ni Haiqiao², Zhao Huan², Xiong Yonghua²,
Zhou Hongyu¹, and Niu Zhichuan²

(1 Key Laboratory of Beam Technology and Material Modification of Ministry of Education,
Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

(2 State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: Several GaAs nanostructures are self-assembly realized by droplet epitaxy in a lattice-matched system (AlGaAs/GaAs). Some interesting GaAs nanostructures, such as GaAs quantum dots, quantum single rings, quantum double rings and ancient Chinese coin shaped nanostructures are fabricated by varying the temperature of the crystallizing Ga droplets. The growth mechanism of these complex nanostructures is addressed.

Key words: droplet epitaxy; quantum dots; quantum single rings; quantum double rings

PACC: 6855; 6146

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0141-04

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China, the National High Technology Research and Development Program, and the Special Funds for Major State Basic Research Project

† Corresponding author. Email: zhf@red.semi.ac.cn

Received 30 November 2006, revised manuscript received 12 December 2006

©2007 Chinese Institute of Electronics