

利用 GaAs 基 InGaAs 应变层制备有序排列的 InAs 量子点*

张春玲 赵凤瑗 徐波 金鹏 王占国

(中国科学院半导体研究所 半导体材料开放实验室, 北京 100083)

摘要: 在 GaAs 基 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.15$) 应变层上生长了 InAs 量子点(QD)层, 通过分析各层之间的应力状况和位错的演变过程, 配合生长过程中对反射式高能电子衍射仪(RHEED)实时监测, 并观察生长后的表面形貌, 发现可以通过控制应变层厚度来控制应变层表面布纹结构的宽度, 而且在应变层厚度低于位错增殖的临界厚度时布纹宽度较窄. 如果同时控制 QD 层在刚刚出点, 则 QD 主要沿着较窄的布纹结构排列, 从而得到有序排列的 QD.

关键词: III-V 族半导体材料; 应力; 量子点; 有序生长

PACC: 6116P; 6170G; 6855

中图分类号: TN304

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2004)12-1647-05

1 引言

量子点(QD)具有强量子限制效应, 可用于制备具有独特性能的 QD 激光器和探测器等. 目前常用的制备方法为平面应变自组装方法, 可以制备出无缺陷、尺寸较均匀的 QD 结构, 但是难以实现对 QD 成核位置的控制. 由于制备单电子晶体管等器件需要使用有序排列的 QD 结构, 所以 QD 的有序生长成为新的研究热点, 较常用的方法有利用掩膜衬底、高指数面衬底以及阳极氧化铝模板等^[1-4]. 此外, 对于低应变系统来说, 由于当应变层超过一定厚度时首先在衬底-应变层界面上出现位错网络, 且这些位错网络又具有一定的方向性, 所以人们希望能够基于这种位错网络制备出排列有序的 QD. 一些研究小组已经开展了这方面的研究^[5,6], 但是要真正实现通过控制应变层来控制 QD 的成核位置, 就需要综合分析应变层的应力释放情况、应变层的表面形貌和 QD 的成核机制等, 目前这方面的研究报道很少.

Fumito 等人^[5]曾在 GaAs 衬底上生长了 43~

1200nm 的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.07 \sim 0.21$) 应变层, 然后在上面沉积 1~2.5ML 的 InAs. 他们发现 InAs QD 具有主要沿 $[110]$ 方向排列的规律, 认为这主要是由于量子点优先在应变层的应力释放区成核. 应变层越厚, 应变层表面的应力释放区越宽, 量子点密集的区域也越宽. 但是, 他们生长的应变层厚度主要在 100nm 以上, 整体来说他们得到的 QD 密集排列的区域过宽, 有序性不够理想. 我们希望能够找到某种方法, 使应变层的应力释放区宽度尽可能小. 如果能够将该宽度减小到只能容纳一排 QD, 就可以更好地实现 QD 的有序生长.

对于低应变($\epsilon < 2\%$) 系统, 当应变层的厚度超过 Matthews 临界厚度(h_c) 时, 存在于衬底中的线位错开始弯折, 在衬底/外延层的界面上形成失配位错, 当应变层厚度进一步增加到超过临界厚度 h_p 时, 位错产生与增殖开始起作用^[7,8]. 所以通过分析 Fumito 及其他小组的实验结果, 我们认为他们得到的量子点集中区域较宽可能是由于他们生长的应变层过厚, 使得产生的位错密度比较高. 这些位错纵横交错, 产生的应力场比较复杂, 因而很难控制后续的

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: G2000068303), 国家自然科学基金(批准号: 60290071, 60276014, 90101004, 90201033) 和国家高技术
研究发展计划(批准号: 2002A A311070, 2002A A311170) 资助项目

张春玲 女, 1976 年出生, 博士研究生, 主要从事低维半导体材料研究.

2003-12-15 收到, 2004-02-16 定稿

©2004 中国电子学会

生长. 所以, 我们准备生长相对较薄的应变层, 并使其中某些样品的应变层厚度介于 h_c 和 h_p , 然后再生长不同厚度的量子点层, 观察应变层厚度对量子点生长的影响.

2 实验

2.1 确定生长的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(x=0.15)$ 应变层厚度

为了满足低应变的要求并且便于同其他研究小组的结果进行比较, 我们选择的应变层组分为 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(x=0.15)$. 为了使样品的应变层厚度符合 $h_p > h > h_c$, 需要首先计算出与 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 对应的 h_p 和 h_c , 然后确定符合要求的 h . 使用下式计算出现位错增殖的临界厚度 h_p ^[9],

$$K = h_p \epsilon$$

其中 $\epsilon = (a_p - a_0)/a_0$ 为赝晶层的应变, a_p 为应变层晶格常数(在赝晶情况下与衬底晶格常数相同), a_0 为 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 平衡晶格常数; K 是经验常数, 对于此材料体系为 $(0.8 \pm 0.1) \text{ nm}$. 计算得到 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 的 $h_p \approx 76 \text{ nm}$.

然后计算形成失配位错的临界厚度 h_c . Matthews 等提出当超晶格结构中各层厚度相同时, 使用下式计算形成失配位错的临界厚度^[10]

$$h_c = \frac{b(1 - \nu \cos^2 \alpha)}{2\pi f(1 + \nu) \cos \lambda} \times \ln\left(\frac{h_c}{b} + 1\right)$$

其中 b 是 Burgers 矢量值, $b = \sqrt{2}/2a_1$; ν 是泊松比; α 为 Burgers 矢量与位错线的夹角; λ 是界面内垂直于滑移面和界面交线的方向与滑移方向的交角. 由于在小失配应变体系内, 例如在 $\epsilon < 2.5\%$ 时, $1/2 \{110\} \{111\}$ 系统上的滑移位错的临界厚度最小, 所以在此系统中以 60° 失配位错为标准计算临界厚度. 此时, $\nu = 0.33$, $\cos \lambda = \cos \alpha = 0.5$. 需要注意上式适用于各层厚度相同的超晶格结构, 当系统只在衬底上有一层外延层时, 其临界厚度是上面计算所得结果的 $1/4$. 所以, 最后计算得到 GaAs 衬底上单层 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 的 $h_c \approx 12 \text{ nm}$.

由于实际生长中存在 In 原子的分凝效应^[11], 所以尽管 x 的额定值为 0.15, 可在实际生长一定厚度的应变层后, 应变层内部的 x 值一般会在 0.14~0.15 左右. 因此, 我们同时计算了 $\text{InGaAs}(x=0.14)$ 时的 h_p 和 h_c , 得到对应的 $h_p \approx 82 \text{ nm}$, $h_c \approx 13 \text{ nm}$. 最后, 我们将 h_p 和 h_c 定为 80 nm 和 12.5 nm .

为了使某些样品应变层的厚度 h 满足 $h_p > h > h_c$, 将这些样品应变层的厚度确定为 50 nm .

2.2 样品制备

使用 Riber 32P MBE 系统进行样品制备, 并且在整个生长过程中使用 RHEED 进行原位监测. 实验中使用的衬底为半绝缘的 (001) GaAs 衬底, 位错密度约为 10^4 cm^{-2} . 在生长过程中 As₄ BEP 稳定在 $7.98 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 左右.

将衬底脱氧之后首先生长 200 nm 的 GaAs 缓冲层, 衬底温度为 580°C , 生长速率为 0.7 ML/s . 然后将衬底温度降到 500°C , 生长 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 应变层, 生长速率为 0.4 ML/s . 样品 1~3 的应变层厚度均为 50 nm , 样品 4 为 180 nm , 样品 5 为 250 nm . 之后停顿 30s 再生长 InAs QD 层, 生长速率为 0.06 ML/s , 不同样品的 QD 层厚度不同. 为了减小扩散的影响以保持结构形貌, 在 QD 层生长完毕后立即将衬底温度降到 300°C 左右, 然后取出样品.

3 结果和讨论

3.1 应变层

在应变层生长中, 通过 RHEED 对生长过程进行实时监测, 发现每个样品在生长 50 nm 的应变层后, RHEED 衍射图形都已经转变为不连续的线状. 由于二维平面生长的 RHEED 衍射图形为线状, 三维成岛生长的 RHEED 衍射图形为点状, 所以不连续线状的出现说明表面已经出现了起伏, 而且这种起伏很可能是线状.

分析表明: 在外延生长的初期, $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 层可以通过发生形变以保持二维层状生长, 但是应变层内部已经出现应力. 当应变层厚度超过 h_c 时, 存在于衬底中的线位错开始在界面处发生弯折, 形成 60° 失配位错. 如果认为距离位错芯单位晶格常数处的应力为 100% , 则按照^[12]

$$\sigma \propto \frac{1}{r}$$

可计算出此时由于失配位错与应变层表面的距离只有十几纳米, 所以表面应力可以达到 4% 左右. 对于 InAs/GaAs QD 超晶格结构^[13], 表面应力与底层 QD 和表面距离的三次方成反比, 却可以在间隔层厚度为 40 nm 时保持 QD 的垂直对准; 对于多层

InAs/Al_{0.52}Ga_{0.48}As 量子线结构, 在间隔层厚度为 20nm 时保持斜对准^[14], 所以我们认为此时界面上位错的应力场足以对表面生长产生影响。

由于 60°失配位错在界面上沿[110]方向, 位错线两侧分别为张应力区和压应力区, 不同位错产生的应力场发生叠加, 最终将在表面产生沿[110]方向较强的调制应力场. 这种应力场的起伏会决定上层结构出现线状还是密排的点状, Walther^[15]等人认为在 InP 基上生长 InAs 应变层得到 InAs 量子线, 在 GaAs 基上生长 InAs 应变层得到 QD, 是由于 InP 与 InAs 晶格失配小(约 3%), InAs 可以在 InP 上充分扩散, 从而形成量子线; GaAs 与 InAs 晶格失配大(约 7%), InAs 在 GaAs 上扩散的不够充分, 从而形成 QD. 从 Walther 的观点出发可以推断, 由于 In_{0.15}Ga_{0.85}As/GaAs 的晶格失配度为 1%, 属于小失配, 所以 In_{0.15}Ga_{0.85}As 在 GaAs 表面也应该形成线状起伏。

因此, 通过观察实验现象配合计算位错在表面产生的应力场, 再加上考虑原子在表面的扩散情况, 可以预计 In_{0.15}Ga_{0.85}As 可以在位错增殖之前在表面形成沿[110]方向的线状起伏. 这也与 González^[16]在研究生长速率对表面形貌的影响时得到的实验结果基本相似。

3.2 量子点层

对于样品 1, 我们发现当 InAs 层厚度达到 0.8 ML 时, [110] 方向的 RHEED 图形突变为点状, [110] 方向的图形为燕尾状, 表明 InAs 层开始转变为三维点状生长. 此时立即停止生长, 其表面形貌可以反映 QD 最初的择优成核位置. 上述现象同时表明虽然开始的时候 InGaAs 应变层已经出现了线状起伏, 但是 InAs 层只有到了一定厚度时才受应变层的影响而发生突变。

图 1 是样品 1 的原子力显微镜(AFM)像. 由图可见表面上大多数 QD 沿十字交叉分布的线状排列, 规律性较强, 同时还有少数 QD 分散在其他区域。

我们认为表面出现线状起伏后, 线状结构顶部的 In_{0.15}Ga_{0.85}As 的弛豫程度最大, 接近于 In_{0.15}Ga_{0.85}As 固有的晶格常数. 如果这时继续生长 InAs, 由于 InAs 与顶部 In_{0.15}Ga_{0.85}As 之间的应力相对较小, 与其他位置之间的应力相对较大, InAs 会在线状结构顶部择优成核. 同时由于 InAs 与

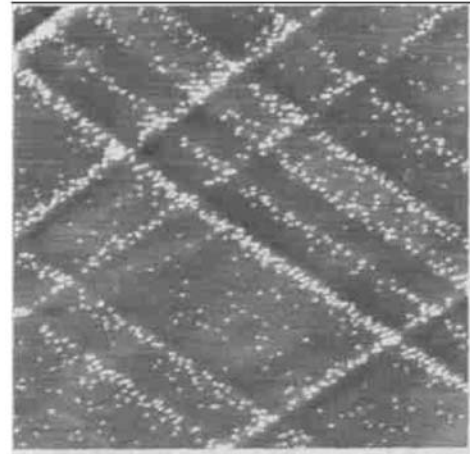


图 1 在 50nm 的 In_{0.15}Ga_{0.85}As 应变层上生长 0.8ML InAs 量子点的 AFM 像 扫描范围为 2 μ m \times 2 μ m.

Fig. 1 AFM image of 0.8ML InAs grown on 50nm In_{0.15}Ga_{0.85}As layer The scan area is 2 μ m \times 2 μ m.

In_{0.15}Ga_{0.85}As 晶格失配相对较大, 所以如前所述, 此时扩散作用会减弱, 从而形成成串排列的 QD. 因此, 在 InAs 层生长初期形成 QD 的瞬间, QD 将沿应变层表面的线状结构形成有序排列. 对于那些随机分布的 QD, 我们认为这是由于生长前沿的波动造成的. 另外, QD 主要沿着十字交叉的布纹结构排列也反过来证明了在应变层表面形成的线状结构是沿十字交叉排列的, 呈现出网格状。

对于样品 2, 3, 它们的应变层厚度与样品 1 相同, 但是 InAs 层的厚度分别为 1.2ML 和 2.0ML. 图 2 是样品 2 的 AFM 照片. 可以看出与图 1 相比,

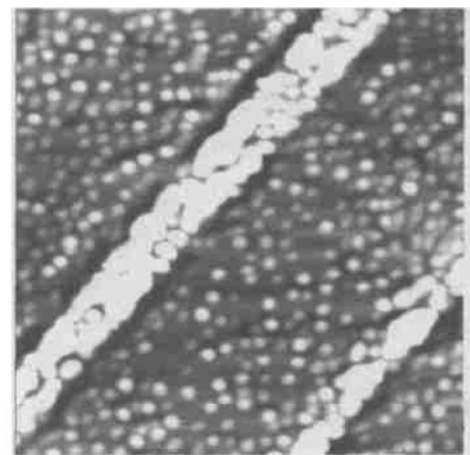


图 2 在 50nm 的 In_{0.15}Ga_{0.85}As 应变层上生长 1.2ML InAs 量子点的 AFM 像 扫描范围为 1 μ m \times 1 μ m.

Fig. 2 AFM image of 1.2ML InAs grown on 50nm In_{0.15}Ga_{0.85}As layer The scan area is 1 μ m \times 1 μ m.

除了沿线状排列的 QD 之外, 还有大量 QD 杂散排

列,表明当 QD 占据了择优排列位置之后将在其他位置大量成核.

图 3 是样品 4 的 AFM 像,其应变层厚度为 180nm, InAs 层厚度为 2ML. 可以看出密集点区域的宽度大于图 1 和图 2. 这是由于当应变层厚度进一步增加时,应变层表面出现的线状结构的宽度增大,也就是可以通过控制应变层的厚度来控制线状结构的宽度. 当接下来生长 QD 层时, QD 在线状结构顶部择优成核,因而 QD 的密集区域也会变宽.

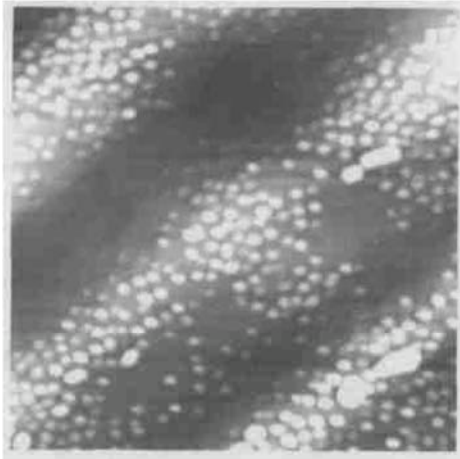


图 3 在 180nm 的 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 应变层上生长 2ML InAs 量子点的 AFM 像. 扫描范围为 $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$.

Fig. 3 AFM image of 2ML InAs grown on 180nm $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ layer. The scan area is $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$.

此外,样品 4 与样品 5 的应变层厚度分别为 180nm 和 250nm,都超过了失配位错增殖的临界厚度,它们分别在 InAs 层厚度达到 1.0ML 和 1.1ML 时开始出点. 通过对比 1~5 号样品,表明应变层生长初期,随着应变层增厚表面应力逐渐积累,出点时间逐渐提前. 当刚开始出现失配位错时,虽然位错已经开始释放应力,但表面残余应力仍较大,在生长 QD 层时可以较早出点. 如果继续增加应变层的厚度,则失配位错释放大量应力,表面残余应力减小,从而使出点变晚.

4 结论

在 GaAs (100) 衬底上生长了较薄的 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 应变层和不同厚度的 InAs QD 层. 实验结果表明,可以通过控制应变层的厚度来控制应变层表面布纹结构的宽度,而且在应变层厚度低于位错增殖的临界厚度时布纹结构较窄. 在随后生长 InAs

层时, QD 首先沿十字布纹结构排列,然后在其他位置分散成核,可以通过控制量子点层厚度来控制量子点的分布. 因此,通过选择合适的应变层厚度以控制布纹结构宽度,并且将 QD 层厚度控制在刚刚出点,控制了 QD 的成核位置,形成了沿着十字布纹结构有序排列的 QD.

参考文献

- [1] Koo H C, Ju P Y, Kyu E K, et al. Selective formation of one- and two-dimensional arrayed InGaAs quantum dots using Ga_2O_3 thin film as a mask material. *Appl Phys Lett*, 1998, 73 (17): 2479
- [2] Richard N, Johann M, Manfred R, et al. Selectivity of growth on patterned GaAs (311)A substrates. *Appl Phys Lett*, 1996, 68(8): 1132
- [3] Liang Jianyu, Chik Hope, Yin Aijun, et al. Two-dimensional lateral superlattices of nanostructures: Nonlithographic formation by anodic membrane template. *J Appl Phys*, 2002, 91 (4): 2544
- [4] Wang Zhiming, Deng Yuanming, Feng Songlin, et al. Vertically coupled multilayers of self-assembled InAs quantum dots. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1997, 18(7): 550 (in Chinese) [王志明, 邓元明, 封松林, 等. 自组织生长多层垂直耦合 InAs 量子点的研究. *半导体学报*, 1997, 18(7): 550]
- [5] Fumito H, Koichi Y. Selective growth of self-organizing InAs quantum dots on strained InGaAs surfaces. *Appl Surf Sci*, 1998, 130~132: 737
- [6] Leon R, Chaparro S, Johnson S R, et al. Dislocation-induced spatial ordering of InAs quantum dots: Effects on optical properties. *J Appl Phys*, 2002, 91(9): 5826
- [7] Beanland R, Aindow M, Joyce T B, et al. A study of surface cross-hatch and misfit dislocation structure in $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}/\text{GaAs}$ grown by chemical beam epitaxy. *J Cryst Growth*, 1995, 149: 1
- [8] Barnett S J, Keir A M, Johnson A D, et al. In situ X-ray topography studies during the molecular beam epitaxy growth of InGaAs on (001) GaAs: effects of substrate dislocation distribution on strain relaxation. *J Phys D*, 1995, 28: A17
- [9] Dunstan D J, Kidd P, Beanland R, et al. Predictability of plastic relaxation in metamorphic epitaxy. *Mater Sci Technol*, 1996, 12: 181
- [10] Matthews J W, Blakeslee A E, Mader S. Use of misfit strain to remove dislocations from epitaxial thin films. *Thin Solid Films*, 1976, 33: 253
- [11] Toyoshima H, Niwa T, Yamazaki J, et al. In surface segregation and growth-mode transition during InGaAs growth by molecular-beam epitaxy. *Appl Phys Lett*, 1993, 63(6): 821
- [12] Lin Dongliang. *Crystal defect*. Shanghai: Shanghai Jiaotong

- University Publishing Company, 1996 (in Chinese) [林栋梁. 晶体缺陷. 上海: 上海交通大学出版社, 1996]
- [13] Xie Q H, Madhukar A, Chen P, et al. Vertically self-organized InAs quantum box islands on GaAs(100). *Phys Rev Lett*, 1995, 75: 2542
- [14] Chen Yonghai, Wu Ju, Sun Zhongzhe, et al. Vertical anticorrelation of quantum wire arrays. The Second Sweden-China Meeting on Nanometer Science and Technology, Lund, Sweden, 1999
- [15] Walther C, Hoerstel W, Niehus H, et al. Growth, structural, and electrical investigation of self-assembled InAs quantum wires on (001) InP. *J Cryst Growth*, 2000, 209: 572
- [16] González M U, González Y, González L, et al. In situ laser light scattering studies on the influence of kinetics on surface morphology during growth of $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{GaAs}$. *J Appl Phys*, 2001, 89(5): 2665

Ordering Growth of InAs Quantum Dots with Ultra-Thin InGaAs Strained Layer on GaAs Substrates*

Zhang Chunling, Zhao Feng'ai, Xu Bo, Jin Peng and Wang Zhanguo

*(Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)*

Abstract: InAs quantum dots (QDs) are grown on $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ strained layers. By analyzing the evolvement of dislocations and strain between different layers, combining real time inspection by reflection high-energy electron diffraction (RHEED) and the surface morphology measurement after growth, the width of fabric structure on the surface of the strained layer can be controlled by changing the thickness of the strained layer, and the width of fabric structure is quite narrow when the thickness of $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ layer is less than the critical thickness of dislocation multiplication. If controlling the QDs layer just to form QDs, QDs will be mainly arranged along the narrow fabric, and spatial ordering of QDs can be achieved.

Key words: semiconducting III-V materials; stress; quantum dots; ordering growth

PACC: 6116P; 6170G; 6855

Article ID: 0253-4177(2004)12-1647-05

* Project supported by State Key Development Program for Basic Research of China (No. G2000068303), National Natural Science Foundation of China (Nos. 60390071, 60276014, 90101004, 90201033), and National High Technology Research and Development Program of China (Nos. 2002AA311070, 2002AA311170)

Zhang Chunling female, was born in 1976, PhD candidate. She is engaged in the research on low dimensional material.

Received 15 December 2003, revised manuscript received 16 February 2004

©2004 The Chinese Institute of Electronics