分子束外延原位脉冲激光驱动金属 Ga-droplet 迁移的实现和研究

霍大云, 石震武*, 徐超, 邓长威, 陈晨, 张伟, 陈林森, 彭长四*

苏州大学光电信息科学与工程学院, 苏州纳米科技协同创新中心, 苏州 215006

* 联系人, E-mail: zwshi@suda.edu.cn; changsipeng@suda.edu.cn

2017-02-06 收稿, 2017-03-24 修回, 2017-03-27 接受, 2017-07-26 网络版发表

国家自然科学基金(11504251, 51302179)、江苏高校优势学科建设工程项目、科技部国际合作项目(2013DFG12210)、江苏省高校自然科学研究重大项目(12KJA140001)和江苏省普通高校研究生科研创新计划(KYLX15_1252)资助

摘要 在液滴外延生长过程中金属液滴承担着生长前驱体的角色, 直接决定着后续量子环、量子点、纳米线等量子结构的密度、尺寸、位置等参数. 本文开展了在MBE(molecular beam epitaxy)液滴外延过程中通过原位激光作用调控金属Ga-droplet的前沿研究. 首先利用MBE在GaAs (001)衬底上(150℃)沉积6 ML Ga原子以获得Ga-droplet密度约为 $5.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 的表面, 然后原位引入单脉冲单束激光辐照衬底表面. 实验观察到: Ga-droplet在激光辐照(能量密度大于 10 mJ/cm^2)的条件下将开始克服表面各个方向的迁移势垒发生显著而丰富的迁移行为, 且这种迁移的剧烈程度与激光能量具有强烈的正相关规律. 伴随这种迁移, 不同Ga-droplet之间将发生随机的融合, 从而强烈影响其密度以及尺寸. 统计表明: 当激光能量从 10 mJ/cm^2 提高至 30 mJ/cm^2 时, Ga-droplet的密度将迅速减小到近原来的三分之一, 同时尺寸则迅速地增大, 且整体分布由传统的“窄带”向“宽带”特点过渡. 故通过本文的研究, 证实和发现了液滴存在着极为敏感的表面“光致迁移”特性. 凭借这一特性, 不仅可实现对液滴整体尺寸、密度的二次修饰, 获得一些在传统液滴外延中难以实现的分布特点, 而且在将来我们完全有望凭借多光束干涉图形化调控液滴, 最终实现人为可控的液滴外延技术, 从而极大地推动整个低维纳米半导体材料的生长.

关键词 Ga-droplet, 分子束外延, 原位激光, 光致迁移

低维纳米半导体材料凭借对载流子运动的强烈限制, 从而表现出量子约束效应、库仑阻塞效应以及量子隧穿等诸多低维特性, 在各类光电器件中有着重要的应用^[1~4]. 液滴外延是一种新兴的材料生长技术, 可广泛应用于低维纳米结构的半导体材料制备. 它由日本Koguchi等人^[5]在1991年提出, 其主要的原理过程可概括为: (以III-V族半导体材料为例)预先在基底表面沉积一定量的III族元素以形成相应的金属液滴, 然后以这些金属液滴为前驱体通过后续特殊地调控和生长诱导催生出量子点^[6]、量子点对(团

簇)^[7]、量子环^[8]和纳米线^[9]等各种特定的低维量子结构. 目前, 围绕液滴外延的报道主要集中在“由前驱体-金属液滴如何转化为各类目标量子结构的生长动力学行为”的研究^[9,10], 而针对液滴本身的动力学现象的研究报道却十分少见. 2009年, Tersoff等人^[11]在Science上报道了GaAs(001)表面上的镓滴在衬底温度升到足够高的条件下将主要沿[110]方向自主往返运动, 镓滴(Ga-droplet)的迁移被解释为液滴周围表面出现热波动(thermal fluctuation), 由于其属于一种热力学随机过程, 故该迁移行为不能被精确控制. 我们

引用格式: 霍大云, 石震武, 徐超, 等. 分子束外延原位脉冲激光驱动金属 Ga-droplet 迁移的实现和研究. 科学通报, 2017, 62: 3379–3384

Huo D Y, Shi Z W, Xu C, et al. Demonstration and study of Ga-droplet migrating propelled by *in-situ* laser based on MBE (in Chinese). Chin Sci Bull, 2017, 62: 3379–3384, doi: 10.1360/N972016-01440

知道:当液滴间发生迁移,除了可能会间接影响其尺寸、密度、均匀性,最重要的是其直接决定了液滴的空间位置,从而最终决定了目标量子结构的位置^[12~16].而对量子结构材料的有序可控生长是实现各类新型量子器件的设计、开发以及集成时面临的巨大技术挑战^[17].例如,目前限制量子点结构在量子通信^[18]、量子计算^[19]等前沿领域的应用就是因为当前最广泛应用于获得高质量量子点的S-K生长手段难以对量子点的成核位置做到人为高度可控^[20].因此实现对“液滴”迁移行为的人为调控对液滴外延乃至整个半导体材料量子结构的生长均有着极其重要的技术地位和科学意义.然而目前关于“液滴”迁移行为的人工调控,尤其是针对液滴外延中这一特殊前驱体迁移特性的“原位调控技术的研究”相关系统报道相对较少.

基于此,我们通过在传统的MBE外延系统上增开激光窗口,首次开展了在MBE液滴外延过程中原位引入单束脉冲激光作用金属Ga-droplet的前沿研究和尝试,系统地观察了原位脉冲激光对Ga-droplet的调制规律.实验发现:Ga-droplet在激光(能量密度大于10 mJ/cm²)的驱动下将克服表面的迁移势垒发生显著而丰富的迁移行为;伴随这种迁移,不同Ga-droplet之间将发生随机的融合,从而强烈影响其表面的密度以及尺寸.统计表明:当激光能量从10 mJ/cm²提高至30 mJ/cm²时,Ga-droplet的密度将迅速减小到近原来的三分之一(由 $5.22 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 降到 $2.23 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$),同时尺寸则迅速地增大(从原来主要集中在“横向直径(35~65 nm)/纵向高度(1~7 nm)”转变成“横向直径(65~95 nm)/纵向高度(7~16 nm)”占主导),这表明Ga-droplet表面迁移的剧烈程度与激光能量具有强烈的正相关规律.通过本文的研究,有力地证明了:在将来我们完全有望凭借激光这一手段实现对金属液滴高效、精准的人工调控,进而极大地推动整个低维纳米半导体材料与器件领域的发展.

1 实验

我们选用1/4的2 in GaAs(001)为衬底,经去气和脱氧化膜后,首先在600℃下生长300 nm厚的GaAs缓冲层(生长速率为600 nm/h).然后,在As₂(3.2×10^{-6} Torr (1 Torr=133.3 Pa))保护下衬底温度降至400℃;接着关闭As针阀直至生长室背景真空降至 1.0×10^{-8} Torr后(为避免后续Ga沉积过程中,生长室真空氛围

中As参与反应),衬底继续降温沉积6 ML Ga(沉积速率0.18 ML/s)以获得Ga-droplet;最后原位引入单脉冲单光束激光辐照表面后取出样品,具体参数见表1.本实验所使用的激光器是三倍频的掺钕钇铝石榴石(Nd:YAG)激光器,波长355 nm,脉宽10 ns,光斑直径8 mm.所有样品表面形貌表征均由AFM (Bruker, Dimension Icon)完成.由于激光光束面积远小于样品,激光只对样品中心区域进行辐照,分别测试无激光辐照的区域作为激光辐照区域作为对照,以保证在研究激光的作用效果时其他生长条件相同.

2 实验结果与分析

当Ga原子单独沉积在GaAs表面,因其与GaAs表面浸润性差,当厚度达到数个原子层时,将在表面形成Ga-droplet.如图1(a)所示,当沉积了6 ML(monolayer) Ga的样品A,其表面出现了大量的Ga-droplet.由于沉积温度较低(150℃),原子迁移不充分,表面Ga-droplet的密度较大约 $5.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

接着我们分别选用能量密度为10, 20和30 mJ/cm²的脉冲激光原位辐照样品A(相同生长条件不同样品),激光光斑在样品表面位置图1(a)插图所示,激光仅对圆点处进行单个脉冲辐照,从而依次获得了样品B, C和D.我们同样对这3个样品进行了AFM的测试,结果如图1(b)~(d)所示.可以发现:受激光辐照调制,样品B, C和D的Ga-droplet密度、高度和直径都发生了不同程度的变化,且随激光辐照能量密度增大变化越剧烈.为了定量地分析这种变化,我们对每种实验条件下制备的样品进行大量的AFM测试,并选取具有代表性3组(如图1(a)~(d))AFM测试图(1 μm×1 μm)分别进行Ga滴的高度、直径和密度统计,统计结果如图2所示.为了进一步评价尺寸分布的均匀性,我们还对每个样品整体的分布进行了高斯拟合(见图中拟合虚线).

表1 样品生长条件

Table 1 The growth conditions for samples

样品编号	生长温度	能量密度(激光辐照)
	(Ga-droplet)(℃)	(mJ/cm ²)
A	150	0
B	150	10
C	150	20
D	150	30

图 1 (网络版彩色)(a)~(d)分别是样品A, B, C和D的AFM测试结果, 插图是激光辐照光斑所在衬底位置示意图, 圆点为激光光斑位置

Figure 1 (Color online) (a), (b), (c) and (d) are the AFM images for sample A, B, C and D, respectively. The illustrate shows that quarter-circle is GaAs substrate and circular sport is the laser spot

首先, 图2(a)是密度的统计结果, 可以看出: 当辐照激光的能量密度为 10 mJ/cm^2 时, Ga-droplet的密度略微有所减小, 这说明 10 mJ/cm^2 大概处于一个Ga-droplet响应的能量密度临界值. 当辐照能量密度增加到20和 30 mJ/cm^2 时, Ga-droplet的密度出现显著下降, 分别降为原来的52.5%和38.9%. 伴随这种密度的巨大改变, Ga-droplet的尺寸同时也发生了变化. 图2(b)和(c)分别统计了Ga-droplet“纵向高度”以及“横向直径”的尺寸分布. 数据表明: 未受任何激光辐照的样品A, 其表面Ga-droplet的高度主要分布在 $4\sim 7 \text{ nm}$ (近80%); 直径宽度则集中分布在 $35\sim 50 \text{ nm}$ (同样达到了近80%), 故整体尺寸分布较均一, 呈“窄带”特性(见图2(b)和(c)中高斯拟合虚线). 当受到能量密度为 10 mJ/cm^2 的激光辐照后, 样品B表面的Ga-droplet的直径宽度较样品A出现了整体增大的趋势, 主导的尺寸由 $35\sim 50 \text{ nm}$ 向 $50\sim 65 \text{ nm}$ 转移, 并出现了更大尺寸 $65\sim 80 \text{ nm}$ 宽的Ga-droplet(约2%), 整体尺寸分布呈展宽趋势(见图2(c)中高斯拟合虚线); 然而有趣的是如图2(b)中互相重合的两条高斯拟合虚线所示: 样品A和B中Ga-droplet高度尺寸分布几乎未发生变化. 类似的现象由Lee等人^[19]在研究GaAs衬底上生长In-droplet时曾有报道, 当In原子的沉积量由3 ML增加至6 ML时, 获得液滴的直径将从 52.0 nm

图 2 (网络版彩色)不同激光能量密度辐照后, Ga滴密度变化(a), 高度(b)和直径(c)分布统计. 虚线是高度(或直径)的分布高斯拟合曲线

Figure 2 (Color online) The Ga-droplet density (a), height distribution (b) and diameter distribution (c) as a function of laser energy density. The dashed curves are the Gauss fittings for the distribution of height and the diameter

升至 74.7 nm , 但是高度一直锁定在 $11.3\sim 11.6 \text{ nm}$ 不变. 这说明液滴在长大过程中, 会经历一个高度冻结的过程. 本实验中随着辐照能量继续提高, Ga-droplet将迅速打破这一“只变宽不长高”的过程, 样品C和D中Ga-droplet无论是直径还是高度都出现了剧烈的增大, 尤其是能量最高的D样品(30 mJ/cm^2)表面约80%的Ga-droplet的高度超过了 7 nm , 其中还包括一些超过 13 nm 高的液滴(~10%), 类似高度的液滴并未在其

余3个样品观察到. 同时横向尺寸中产生了大量超过80 nm(~40%)的液滴, 且占比最大, 其余50~65 nm以及65~80 nm两个区间依次占20%和30%, 而原来辐照前最主流的35~50 nm范围内的Ga-droplet锐减到不足10%. 除此之外, 经过较大能量辐照后的样品D, 其液滴尺寸整体呈现极其显著的“宽带”分布特点(见图2(b)和(c)中的虚线). 而我们知道在很多要求“宽谱响应”的实际应用中, 往往需要光电器件中负责光电转换的量子结构在尺寸上具备较大的分布带宽, 然而利用传统沉积Ga原子方法获得Ga-droplet尺寸分布相对较均匀, 不尽可能满足设计需求, 故可通过原位激光辐照对液滴进行快速灵活的修饰.

上述一系列实验现象可解释为: 激光辐照将驱动Ga-droplet在GaAs表面上迁移运动, 期间不同液滴间可能发生随机的合并融合, 从而导致密度减小, 尺寸增加, Jiang等人^[20]也报道了液滴因迁移发生合并融合现象. 通过进一步分析AFM测试数据找到了这一解释的“直接证据”. 以样品C为例, 通过调整纵向亮度标尺(即高度显示效果), 如图3所示, 其表面可清晰地观察到各种各样Ga-droplet迁移的痕迹以及融合变大的形式(为了便于讨论, 以Droplet-a, Droplet-b分别表示参与迁移融合前两个不同的Ga-droplet), 例如: (i) Droplet-a迁移正面撞向静止的Droplet-b合并; (ii) Droplet-a和Droplet-b各自发生直线迁移, 以一定夹角相遇并融合; (iii) Droplet-a迁移过程中擦上静止的Droplet-b变向融合. 值得强调的是: 我们观察到了Ga-droplet迁移痕迹方向没有明显的一致性, 然而通过衬底加热方法致使Ga-droplet在GaAs(001)表面迁移基本沿[110]方向.

现有涉及固体表面液滴迁移行为的解释, 人们普遍采用Chaudhury等人^[21]提出的温度梯度调制的表面能驱动模型. 这一理论同样可用来理解本工作中的迁移现象. 在激光辐照前, 样品表面温度处于较低的150℃, 这时由于衬底加热器发热不均匀带来的温度涨落不足以驱动表面Ga-droplet的迁移, 故此时液滴处于相对稳定的状态如图4(a)所示($\theta_A \approx \theta_B$). 激光辐照可在材料表面实现有效的热效应^[22], 当引入激光辐照, 衬底表面将吸收能量而升温, 样品表面自由能整体下降^[23]. 但由于光斑能量的不均匀性以及样品表面被液滴无序覆盖势必造成最终样品表面温度将随机出现显著的起伏, 这时一些Ga-droplet附近将出现明显的局部温度梯度, 如图4(b)所示. 由于表面

图3 (网络版彩色)液滴迁移及融合的分析. (a) C样品AFM测试图; (b) 在Ga-droplet迁移过程中发生的3种不同(i, ii, iii)的融合长大过程

图4 (网络版彩色)激光辐照驱动Ga滴迁移示意图. (a) 激光辐照前Ga-droplet与衬底表面接触状态($\theta_A \approx \theta_B$); (b) 激光辐照引入表面温度梯度时Ga-droplet与衬底表面接触状态($\theta_H < \theta_L$)以及Ga-droplet在温度梯度诱导下发生表面迁移; (c) Ga-droplet在运动方向表面自由能不等而继续表面迁移

Figure 4 (Color online) Schematics of Ga-droplet migrating by laser irradiation propelling. (a) The surface contact state of Ga-droplet before the laser irradiation ($\theta_A \approx \theta_B$); (b) the thermal gradient modified surface contact state of Ga-droplet caused by the laser irradiation ($\theta_H < \theta_L$); (c) Ga-droplet migrating under the thermal gradient produced by laser

能是温度函数($\theta_H < \theta_L$), 此时液滴受到的表面合力 F_{tot} 可表示成^[21]

$$F_{\text{tot}} = \gamma_{\text{LV}} (\cos \theta_{\text{H}} - \cos \theta_{\text{L}}) D, \quad (1)$$

其中, γ_{LV} 是液-气表面张力, D 是 Ga-droplet 直径. 当接触角 θ_{H} 小于 θ_{L} 时, 液滴将朝着低温端发生迁移, 如图 4(c) 所示, 最终在这种局部温度场梯度驱动下宏观表现为我们观察到的“光致迁移”现象. 而这种局部温度场梯度的产生直接受表面镓滴分布特性决定, 即使对于几百纳米范围内的镓滴而言, 每个镓滴周围紧邻的镓滴分布特性(密度、空间分布相对方位、大小、间距等)并不完全等价, 故而对于每个镓滴其周围的光致温升效应存在显著的随机性, 再加上实验选用激光为纳秒脉冲激光, 因此在时间尺度上一定程度抑制了由热传导而引起的空间温度均匀化效应, 最终在表面(即使几百纳米范围内)将有效形成瞬时且随机分布的局部温度场梯度, 从而正如图 3(a) 所示, 我们可以在几百纳米的范围内就能同时清楚地观察到多种不同方向的迁移行为.

3 总结

本文验证了在 MBE 液滴外延过程中利用原位引入单束单脉冲激光驱动金属 Ga-droplet 在 GaAs (001) 表面发生有效的迁移运动. 实验观察发现: 脉冲激光辐照可高效地实现表面温度的原位调制, 同时能够在液滴周围引入局部的温度梯度进而提供一个驱动力, 使得液滴能克服表面各个方向的运动势垒而发生自由地迁移, 且与激光能量成正比关系, 可控性强. 凭借这种“光致迁移”, 不仅可实现对液滴整体尺寸、密度的二次修饰, 获得一些在传统液滴外延中难以实现的分布特点, 从而极大地促进对特殊纳米量子材料的生长和器件的设计; 而且在将来我们完全有望凭借多光束干涉图形化调控液滴, 最终实现可精准人工调控的液滴外延技术, 推动整个低维纳米半导体材料生长领域的发展.

参考文献

- Chand N, Becker E E. Excellent uniformity and very low ($<50 \text{ A/cm}^2$) threshold current density strained InGaAs quantum well diode lasers on GaAs substrate. *Appl Phys Lett*, 1991, 58: 1704–1706
- Guo L, Leobandung E, Chou S Y. A silicon single-electron transistor memory operating at room temperature. *Science*, 1997, 275: 649–651
- Chen H R, Yang L A, Zhu Z M, et al. Theoretical study on degradation phenomenon on AlGaIn/GaN resonant tunneling diode(in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2013, 62: 217301 [陈浩然, 杨林安, 朱樟明, 等. 基于 AlGaIn/GaN 共振隧穿二极管的退化现象的研究. *物理学报*, 2013, 62: 217301]
- Ryzhii V. The theory of quantum-dot infrared phototransistors. *Semicond Sci Technol*, 1995, 11: 759–765
- Koguchi N, Takahashi S, Chikyow T. New MBE growth method for InSb quantum well boxes. *J Cryst Growth*, 1991, 111: 688–692
- Heyn C, Stemmann A, Welsch H, et al. Regimes of GaAs quantum dot self-assembly by droplet epitaxy. *Phys Rev B*, 2007, 76: 075317
- Wang Z M, Holmes K, Mazur Y I, et al. Self-organization of quantum-dot pairs by high-temperature droplet epitaxy. *Nanoscale Res Lett*, 2006, 1: 57–61
- Huang S, Niu Z, Fang Z, et al. Complex quantum ring structures formed by droplet epitaxy. *Appl Phys Lett*, 2006, 89: 031921
- Kim Y H, Park D W, Lee S. Gallium-droplet behaviors of self-catalyzed GaAs nanowires: A transmission electron microscopy study. *Appl Phys Lett*, 2012, 100: 033117
- Wang Z M, Liang B L, Sablon K A, et al. Nanoholes fabricated by self-assembled gallium nanodroplet on GaAs (100). *Appl Phys Lett*, 2007, 90: 113120
- Tersoff J, Jesson D E, Tang W X. Running droplets of gallium from evaporation of gallium arsenide. *Science*, 2009, 324: 236–238
- Mano T, Koguchi N. Nanometer-scale GaAs ring structure grown by droplet epitaxy. *J Cryst Growth*, 2005, 278: 108–112
- Watanabe K, Koguchi N, Gotoh Y. Fabrication of GaAs quantum dots by modified droplet epitaxy. *Jpn J Appl Phys*, 2000, 39: L79–L81
- Dubrovskii V G, Xu T, Álvarez A D, et al. Self-equilibration of the diameter of Ga-catalyzed GaAs nanowires. *Nano Lett*, 2015, 15: 5580–5584
- Somaschini C, Bietti S, Sanguinetti S, et al. Self-assembled GaAs/AlGaAs coupled quantum ring-disk structures by droplet epitaxy. *Nanotechnology*, 2010, 21: 125601
- Kumah D P, Shusterman S, Paltiel Y, et al. Atomic-scale mapping of quantum dots formed by droplet epitaxy. *Nat Nanotechnol*, 2009, 4: 835–838
- Lan H B, Ding Y C. Ordering, positioning and uniformity of quantum dot arrays. *Nano Today*, 2012, 7: 94–123
- Shi F, Sharma D J, Hussain F, et al. Nanostructures with long-range order in monolayer self-assembly. *Phys Rev E*, 2008, 78: 025203(R)
- Lee J H, Wang Z M, Kim N Y, et al. Size and density control of In droplets at near room temperatures. *Nanotechnology*, 2009, 20: 285602
- Jiang W, Wang Z M, Li A Z, et al. Nanoscale footprints of self-running gallium droplets on GaAs surface. *PLoS One*, 2011, 6: 20765
- Chaudhury M K, Whitesides G M. How to make water run uphill. *Science*, 1992, 256: 1539–1541
- Zhang W, Huo D Y, Guo X X, et al. Periodic nanostructures fabricated on GaAs surface by UV pulsed laser interference. *Appl Surf Sci*, 2015, 360: 999–1002
- Jiang W, Wang Z M, Li A Z, et al. Critical size of self-propelled motion of droplets on GaAs (100) surface. *J Appl Phys*, 2012, 112: 043523

Summary for “分子束外延原位脉冲激光驱动金属 Ga-droplet 迁移的实现和研究”

Demonstration and study of Ga-droplet migrating propelled by *in-situ* laser based on MBE

HUO DaYun, SHI ZhenWu^{*}, XU Chao, DENG ChangWei, CHEN Chen, ZHANG Wei, CHEN LinSeng & PENG ChangSi^{*}

School of Optoelectronics Information Science and Engineering, Collaborative Innovation Center of Suzhou Nano Science and Technology, Soochow University, Suzhou 215006, China

^{*} Corresponding authors, E-mail: zwshi@suda.edu.cn; changsipeng@suda.edu.cn

In droplet epitaxy, as is well known that the metallic droplets would closely determine the density, size and site of the following quantum structures such as quantum dot/ring, nano wire and so on because they usually act as the precursors. Recently, to search for the method of effectively manipulating the droplets shows great significance. In this paper, we have conducted a pioneering study of *in-situ* laser manipulating droplets in the droplet epitaxy basing MBE. A layer of Ga-droplets (density: $5.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) on GaAs (001) was first prepared by MBE deposition of 6ML Ga at the temperature of 150°C with a growth rate of 0.18 ML/s and an interrupt of as flux. Then a single pulse of mono-beamed laser (355 nm/10 ns) was *in-situ* introduced to shoot on it and the morphology evolution was carefully studied by AFM and the mechanism was also discussed simply. It is observed: As (laser) energy density reached above 10 mJ cm^{-2} , the Ga droplet was able to escape from the surface potential trap in all-direction and began to migrate randomly and even in a very small area of several hundred nanometers various migrations (along different surface orientations) could be seen. This was explained as: since the Ga droplets are disorderly locating on the GaAs surface, even for two closest neighbor droplets within a typical distance of hundred nanometers, the surrounding situations for them might be distinctly non-equivalent in the terms of the droplet size (height/diameter), density and the inter-droplet relative position. So when the laser pulse heated the surface, such disorder will cause a chaotic fluctuation in surface local thermal field. Then as a consequence, the droplets will move around with the diffusion force under the gradient of temperature. Accompanying with the migration, coalescence (among different droplets) might take places during the collision which could remarkably modify the Ga-droplet morphology. And this kind of modifying strongly depended on laser energy density. Statistically, as the energy density increased from 10 mJ cm^{-2} to 30 mJ cm^{-2} , the density of droplet would reduce 1/3 from $5.22 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ to $2.23 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ and rapidly the dominant size was enlarged with corresponding increase of diameter from (35–65 nm) to (65–95 nm) and height from (1–7 nm) to (7–16 nm) respectively. And meanwhile, the overall size linewidth broadened a lot resulting in an extreme “wide-band” distribution and it was hardly observed in the normal droplet growth. Such wide character of droplet size distribution would find huge use in the photoelectric detection or conversion with the special need of “broad-spectrum absorption” in many actual occasions. Herein, we have demonstrated a novel finding of “photo-induced diffusion” on droplets and moreover it seems that the diffusion has less relation with the surface orientation and the size of droplets but the energy density of laser straightly. So, it is promising to realize a highly controlled-droplet epitaxy by taking use of laser interference patterning in the future which will must make significant developments for the whole fabrication area of quantum semiconductor.

Ga-droplet, molecular beam epitaxy, *in-situ* laser, photo-induced migration

doi: 10.1360/N972016-01440