

GaAs(100)同质外延表面相变的动态过程研究

刘兴权 陆 卫 马朝晖 陈效双 乔怡敏 万明芳 沈学础

(中国科学院上海技术物理研究所 红外物理国家重点实验室 上海 200083)

(中国高等微结构科技研究中心 南京 210093)

摘要 本文叙述了用 CCD 系统对 MBE 生长中 RHEED 图案强度变化进行实时监测, 通过(00)级条纹的 RHEED 强度分析, 直接给出了不同生长条件下表面相变的动态过程, 得到了从 C(4×4) 到 α (2×4) 的连续相变过程, 进一步给出了不同条件下的表面化学配比情况.

EEACC: 6830, 6842, 6855, 8115

1 引言

分子束外延发展至今, 已经相当完善了, 尤其对Ⅲ-V 族中 GaAs 及相关系列材料生长. 分子束外延本身所配备的 RHEED 原位监测系统, 对材料生长动力学过程及静态表面的观察, 提供相当丰富的信息. 整数级 RHEED 强度随时间的周期性振荡, 反映了两维生长的动力学过程, 而其中某一时刻的静态强度, 则反映了该时刻晶体表面状况, 尤其是 CCD 系统的应用, 对 RHEED 图案的不同级次同时实时监测, 提供了更加丰富的信息^[1].

H. H. Farrell 等通过分数级的特征缺级或分数级间的相对强度变化, 把 GaAs(100) 不同的表面富 As(2×4) 状态划分为 α , β , γ 相^[2], 认为在不同的化学配比情况下, 表面将呈现不同的相. 这种不同相的不同种表面原子排列已得到了 STM 的证实^[3]. 各种相的存在已经得到了理论上的支持^[4]. 这种相的划分是针对某一表面化学配比的条件下静态表面而言, 因此不能给出生长前到生长开始后一段时间内, 表面相的动态变化. 我们知道 RHEED(00) 级强度随时间的振荡过程, 是由于两维生长过程中, 表面原子的粗糙度随时间周期性变化而引起的, 这些振荡对应着表面最粗糙的覆盖度 0.5 与表面平整度最好的覆盖度 1.0 之间的周期性往复. 已有研究表明静态的表面处在不同的相时, 表面原子的覆盖度是不同的, 在生长过程中, 随化学比的变化, 表面将发生相变过程, 这种相变过程反映在(00) 级上, 将是 RHEED 强度随相变而变化.

刘兴权 男, 1967 年生, 博士生, 从事Ⅲ-V 族化合物半导体材料分子束外延工作

陆 卫 男, 1962 年生, 研究员, 博士生导师, 从事半导体材料与器件物理研究

1996 年 4 月 5 日收到初稿, 1996 年 7 月 13 日收到修改稿

2 实验与结果

取向为(100)的GaAs 经过预处理后,在 RIBER 32R&D 系统上生长。在 600℃左右(热电偶温度,与实际温度有一定的差值)脱氧化膜,然后生长 500nm 的缓冲层,准备下面的 RHEED 监测实验。摄像头为 Si(512×512)CCD,采集频率为 50Hz,恒定 As₄/Ga 比(10:1)不变,电子束由正的[110]方向掠入射,改变生长温度以得到不同的表面化学配比,从而得到不同的表面相,由 CCD 系统实时监测,得到的 RHEED 强度在生长开始阶段随时间变化曲线如图 1 所示。

图中打开 Ga 快门为 t 时刻,RHEED 强度的变化趋势随生长温度不同而各不相同,在 560℃以下,开快门将出现强度的反常下降,随温度的升高该反常下降峰的强度逐渐减弱。在 570℃以上到 600℃间,出现反常上升,且随温度的升高反常上升的强度逐渐减弱,直到消失。而到 610℃以后,反常强度变化将融合于以后的振荡中。这种强度的反常下降和反常上升峰,并不同于两维生长而造成的 RHEED 强度振荡,因为这峰与下一个最大值间的时间差 t' ,不等于生长周期 t_0 即 $t' < t_0$ (如图 2 所示),而且反常上升与下降部分的强度远小于正常振荡峰的强度。

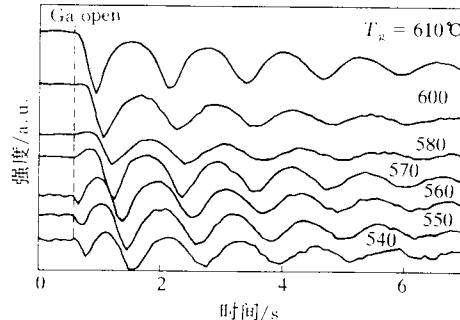


图 1 不同生长温度下 RHEED(00)级强度随时间的振荡

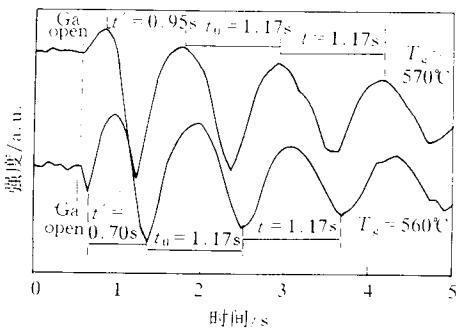


图 2 t' 与 t_0 的比较

t' 为反常峰与后面峰间的时间差,
 t_0 为生长周期。

3 实验结果讨论

STM 已经观察到了不同富 As(2×4) 表面相的表面原子排列情况。认为 $\alpha(2\times4)$ 相表面是由两个 As-As 和两个 As-As 的空位为单元组成, $\beta(2\times4)$ 是由三个 As-As 和一个 As-As 空位为单元组成, $\gamma(2\times4)$ 是在 $\beta(2\times4)$ 结构中每两个 As-As 上多一个 As-As。C(4×4)是在 As 原子形成的 C(1×1) 格子上再吸附 As-As 形成的。H. H. Farrell 等在划分表面相时,用简单的理论^[2]分析了不同相情况下电子衍射分数级强度,本文则考虑不同的表面相对(00)级 RHEED 强度的贡献,不同相表面 As 原子覆盖度如下:

$$\theta_{\alpha(2\times4)} = 0.5; \theta_{\beta(2\times4)} = 0.75; \theta_{\gamma(2\times4)} = 1.0; \theta_{C(4\times4)} = 1.75;$$

而各自的表面粗糙度如下:

$$\Theta_{\alpha(2\times4)} = 0.5; \Theta_{\beta(4\times4)} = 0.25; \Theta_{\gamma(2\times4)} = 0.5; \Theta_{C(4\times4)} = 0.25;$$

因此,不同相对(00)级 RHEED 强度的贡献比较如下:

$$I_C(4 \times 4) = I_\beta > I_\gamma = I_\alpha$$

实际上,一般表面是处于几种相的混合状态下,因此,对(00)级 RHEED 强度的贡献是综合结果,随着表面的化学配比变化,各相的比例逐渐的变化,从上面的结果可以看到,随着生长条件的变化,开始生长一段时间内,RHEED(00)级强度变化趋势也随着变化,如图在生长温度低于 570℃的情况下,开始生长时,出现 RHEED 强度的反常下降,而在 570℃以上直到 610℃,出现强度的反常上升,610℃以上,则开始生长后强度总是下降。这种反常的强度变化,随生长条件的不同而不同,只能是来自于表面情况的变化,即是由于表面的粗糙度在变化。生长温度的变化,实际上是改变表面化学配比比值,因此将改变表面状态,在富 As 的条件下使之呈现 C(4×4)或(2×4)的几种不同的相,生长开始后,RHEED(00)级强度变化,反映了生长开始阶段到表面再构消失这段时间内表面相变的过程。

在生长温度低时,生长前,表面的 As_4/Ga 比高,使表面呈现 C(4×4)再构为主的表面状态,当生长开始时,Ga 束流入射到表面,使表面的 As_4/Ga 比下降,表面由 C(4×4)再构转变为 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主的状态,随着 As_4/Ga 比的进一步降低,表面 C(4×4)和 $\gamma(2 \times 4)$ 相成分降低,而 $\beta(2 \times 4)$ 相成分增加,到表面再构消失。表面粗糙度的变化过程为:0.25 到 0.5,再到 0.25,反映在 RHEED(00)级强度上为:强-弱-强,因此出现反常减弱的峰,这种反常下降的峰随生长温度的升高而减小,说明,生长温度变高,在生长前表面的 $\gamma(2 \times 4)$ 相所占的比例在不断的提高,同时, $\beta(2 \times 4)$ 相开始出现,在开始生长后,维持 $\gamma(2 \times 4)$ 相所需的 As_4/Ga 比很快就降低,致使 $\gamma(2 \times 4)$ 相很快消失,因此,反常减弱的峰随生长温度的提高而渐渐变小,进一步升高生长温度,使得生长前的 As_4/Ga 比不断的降低,到 C(4×4)相逐渐消失, $\gamma(2 \times 4)$ 相为主要成分时,生长开始时 Ga 束流入射,表面立即转为 $\beta(2 \times 4)$ 相,因此表面的相变过程为 $\gamma(2 \times 4)$ 到 $\beta(2 \times 4)$ 转变,因此表面的粗糙度变化为 0.5 到 0.25,故此 RHEED 强度在开始生长时反常上升,到再构消失,随生长温度的进一步提高,生长前的 $\gamma(2 \times 4)$ 相成分进一步降低, $\beta(2 \times 4)$ 相成分进一步上升,开始生长后, $\alpha(2 \times 4)$ 相成分出现并不断随温度上升而增加,至使反常上升不断降低,直到消失,各相的成分变化,可以由规一化的反常 RHEED 强度随温度的变化给出,如图 3 所示。图中 ABC 段的 RHEED 强度随温度升高而逐渐升高,说明随温度升高,在生长前表面再构成分由 C(4×4)为主到由 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主,以及生长开始后由 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主到 $\beta(2 \times 4)$ 相为主的变化过程,CD 段则表示,生长前由 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主到由 $\beta(2 \times 4)$ 相为主,生长后由 $\beta(2 \times 4)$ 到由 $\alpha(2 \times 4)$ 相为主的过程,DE 段表示生长前由 $\beta(2 \times 4)$ 相为主到由 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主,生长后由 $\alpha(2 \times 4)$ 相为主的变化过程。

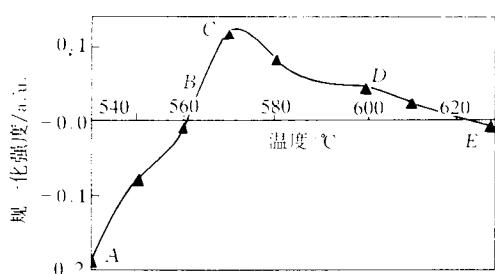


图 3 RHEED 强度反常变化用生长前的 RHEED 强度规一化后的值与生长温度的关系
由 $\beta(2 \times 4)$ 相为主到由 $\gamma(2 \times 4)$ 相为主,生长后由 $\alpha(2 \times 4)$ 相为主的变化过程。

由该实验结果,可以判断出,生长时表面化学配比情况,对于不同的材料结构,对生长有不同的要求,有的要求界面陡峭,两维生长性质好,例如超晶格样品,则要求 As_4/Ga 比适当的低,使得生长开始时的表面再构主要是 $\alpha(2 \times 4)$ 相,这样表面的 As_4 覆盖度低,Ga 束流入射后将有利于两维生长^[5]。

4 结论

本文通过对 RHEED(00)级强度的监测,直接给出了生长前后 GaAs(100)表面相变的动态过程引起的 RHEED 强度振荡的瞬态反常现象,并由此获得表面化学配比的情况,从而为指导不同要求的材料生长提供了一种判断手段.

参 考 文 献

- [1] J. S. Resh, Rev. Sci. Instrum., 1990, **61**(2): 771~774.
- [2] H. H. Farrell, J. Vac. Sci. Technol., 1990, **B8**(4): 903~909.
- [3] Tomihiro Hashizume, Phys. Rev. Letts, 1994, **73**: 2208~2211.
- [4] E. John, Phys. Rev. Letts, 1993, **71**: 2276~2279.
- [5] J. Hopkins, Applied Surface Science, 1995, **84**: 299~305.

Study of Transient Surface Phase Transition on GaAs (100) During MBE Growing

Liu Xingquan, Lu Wei, Ma Zhaozui, Chen Xiaoshuang,
Qiao Yimin, Wan Mingfang and Shen Shuechu

(National Laboratory for Infrared Physics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083)

(Center for Advanced Study of Science and Technology of Microstructure, Nanjing 210093)

Received 5 April 1996, revised manuscript received 13 July 1996

Abstract This paper discusses the transient process of surface phase transition during MBE growing on GaAs(100) substrate by observing the intensity changing of specular line of RHEED pattern. The different intensity changing during growing shows the dynamic process of surface transition directly.

EEACC: 6830, 6842, 6855, 8115