

原子氢辅助分子束外延生长台阶状 表面形貌的研究*

周大勇 澜 清 孔云川 苗振华 封松林 牛智川

(中国科学院半导体研究所 超晶格和微结构国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 研究了分子束外延中引入原子氢后, 原子氢对外延层表面形貌特征形成的诱导作用。原子力显微镜(AFM)测试表明, 在(311)A GaAs 表面, 原子氢导致了台阶状形貌的形成, 在这种台阶状表面进一步生长了 InAs 量子点, 测试结果表明其位置分布的有序化受到台阶高度和台阶周期的制约。这为实现量子点结构的有序化控制生长提供了一定的实验参考。

关键词: 分子束外延; 原子力显微镜; 台阶积累; 量子点

PACC: 0570; 8115C; 6822

中图分类号: O484.1

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2003)02-0148-05

1 引言

原子氢辅助分子束外延(MBE)生长是近年来发展的一种新型的半导体低维结构生长技术。原子氢被认为可以有效地提高 MBE 外延界面质量。其机制在于原子氢通过与 Ga、In 原子的相互作用, 可以改变他们在表面的迁移特性, 可以在较低的衬底温度下进行外延。原子氢通过激活样品表面残余的氧和碳原子^[1], 可以起到清洁表面的作用。特别是在高指数面上, 原子氢的加入可以促进表面微台阶的合并和积累, 从而形成规则的一维的原子台阶排列。因此, 研究人员一方面试图通过直接引入原子氢, 进行(100)面的 InAs/GaAs 系列的低维结构外延^[2]; 另一方面, 利用高指数面上固有的微台阶表面结构, 通过引入原子氢, 促使 MBE 外延生长进行台阶积累(step bunching), 使表面台阶的高度和宽度达到足够的尺寸, 呈现有选择性的表面结构, 从而形成低维量子结构的基础^[3]。如果在这样的结构上进行下一步的量子点、量子线的制作^[4], 材料质量以及工艺难度也将会大大降低。

以前, 通过电子束曝光^[5, 6]等办法进行衬底加工, 虽然可以获得纳米尺度上的低维结构, 但是由于制作工艺本身的限制, 会形成很多位错或者缺陷, 当进一步进行外延时, 很难获得高晶体质量的外延片。现在, 采用台阶积累的办法, 由于是自组织形成的结构, 样品的材料界面可以得到良好的控制, 非常适合后一步的外延加工。量子点作为一种低维结构, 在光学以及电学上有其特性。如果能够形成规则的量子点阵列, 那么在量子计算以及量子存储方面, 将会得到广泛的应用。如果能够充分利用台阶积累的基础, 进行量子点的生长, 可以获得完好的量子点质量, 这将克服传统腐蚀衬底然后进行外延的最大缺陷。但由于原子氢对表面生长过程诱导作用机理较为复杂, 生长工艺参数^[7]还不能很可靠地稳定重复, 因此, 这一技术还有待系统地加以探索。

本文在原子氢辅助的情况下, 通过改变衬底温度、V/III比等生长参数, 在合适的条件下, 成功获得(311)A 面 GaAs 衬底上较规则的台阶状表面。分析认为其机理在于由于氢原子和衬底表面原子结合, 减小了表面束缚能, 使得 Ga 原子的表面跃迁几率增大。由于 Ga 原子在上下台阶之间的迁移更自由,

* 国家自然科学基金(批准号: 60176006, 60025410)和中国科学院纳米科学技术资助项目

周大勇 男, 1977 年出生, 硕士, 从事 III-V 族半导体材料和低维结构的 MBE 生长等研究工作。

2002-04-29 收到, 2002-06-12 定稿

© 2003 中国电子学会

从而促进了台阶的自组织形成。我们在台阶表面还进行了量子点有序化控制生长的初步尝试。

2 实验

对所选用的(311)A高指数面GaAs衬底,首先采用H₂SO₄:H₂O₂:H₂O(1:8:40)溶液腐蚀去污5min,然后用清水冲洗,最后用高纯氮气吹干。然后采用衬底背面粘In的办法将衬底粘在高纯钼托上面。分子束外延设备为VG公司的V80H MK II系统,衬底表面的脱氧采用了低温下原子氢轰击清洁法,外延时衬底温度一般在580~620℃,V/III族束流比为10,衬底转速为20r/min,GaAs的生长速率为0.3μm/h。氢分子通过裂解炉1800℃裂解得到原子氢,在原子氢辅助MBE生长的时候,保持生长室内压强维持在5×10⁻⁵Pa。

样品表面形貌采用原子力显微镜(AFM)进行测试,测试设备为Park公司的VP2测试系统。测量时在大气环境中进行,采用接触模式。

3 结果及讨论

首先,为监测原子氢的脱氧效果,我们记录了反射式高能电子衍射(RHEED)图。图1是传统方式和原子氢轰击法脱氧效果的对比RHEED图。图1(a)是传统方式580℃脱氧,图1(b)是原子氢轰击衬底表面,300℃15min后脱氧。比较RHEED图可以看到原子氢轰击的办法对样品表面的脱氧清洁效果良好。传统的分子束外延方式,必须将衬底温度升高至580℃,等待衬底的脱氧;而现在由于原子氢的诱导作用,在较低的温度,原子氢就可以和表面杂质O等迅速结合,并将其带离衬底表面,从而实现衬底低温脱氧。在原子氢辅助的条件下进行下一步外延时,对衬底温度的要求也不像传统方式那么苛刻。这样就可以避免长时间高温外延下的热退火效应,降低了半导体器件材料生长的难度,也为提高材料外延质量提供了一种新的途径。

然后,我们进行了高指数面上原子氢辅助分子束外延形成台阶状表面的研究。图2(a)是在衬底温度为620℃时,没有引入原子氢,采用传统MBE方式在(311)A衬底上外延100nm GaAs后,在大气环境下,测得的表面AFM视图。可以看到样品表面存在有微台阶,但是台阶的高度只有单个原子层量

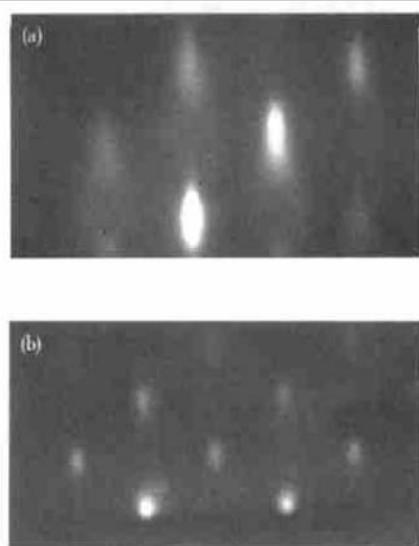


图1 (a) 传统方式 580℃ 脱氧 RHEED 图; (b) 300℃ 原子氢轰击脱氧 RHEED 图

Fig. 1 (a) RHEED image by traditional cleaning method; (b) RHEED image by atomic hydrogen cleaning method

级。图2(b)是在原子氢辅助的条件下,同样外延100nm GaAs完毕后,得到的表面结构的AFM视图。从图中可以清楚的看到在原子氢辅助的情况下,样品表面形貌呈现了台阶状的有序结构,沿着[233]方向上,形成了规则条纹,台阶延伸几个微米而没有发生错乱和交叠,台阶横向准周期约为50~100nm,台阶的高度为2~3nm。

对于在原子氢辅助条件下(311)A面上出现的这种规则化有序结构,我们给出一个初步的解释。(311)A面是典型的高指数面,表面存在固有的与晶格常数同量级的微台阶。当通过外界条件使得台阶进一步积累,通过原子在台阶间的迁移和沉积,就可以使微台阶合并,从而转变成为较高的台阶,同时,台阶周期也随之变大。

台阶的整个转变过程如图3所示。一般认为台阶状形貌的形成是通过微台阶之间的积累形成的。当从上台阶向下台阶迁移的原子数目比原子从下台阶向上台阶迁移的数目多时,可以认为原子向下滑移占主导地位。这样,当新的一层原子尚未到来之前,原子已经通过在台阶边缘的迁移,填充了下台阶的空位,在局部几个微台阶的范围内形成了平整的外延面,因此通过不断地这样的迁移过程,最终形成稳定的大台阶,台阶高度变高,周期变长^[8]。台阶的形成机制要求首先表面要存在固有微台阶,其次

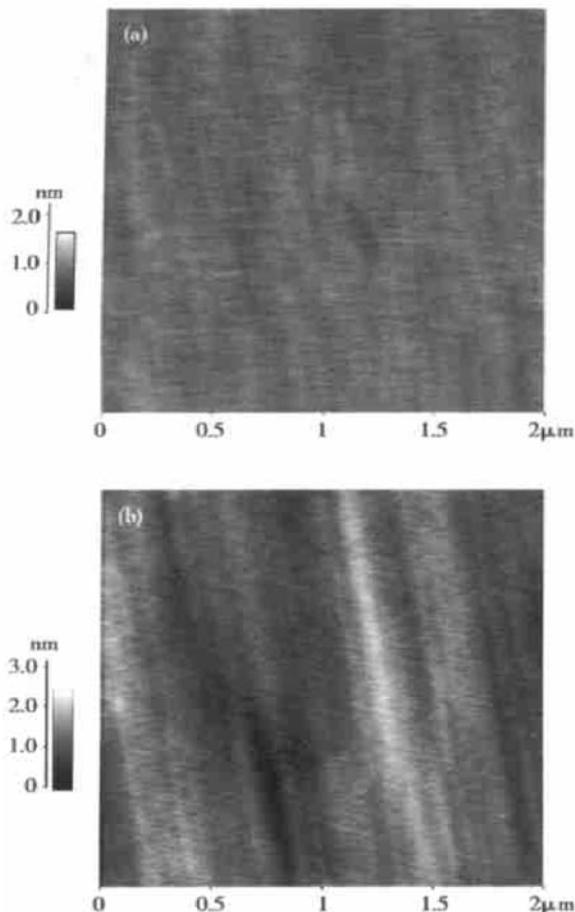


图 2 (a) 采用传统方式在(311)A 面 620℃ 外延 100nm GaAs 后的 AFM 视图; (b) 采用原子氢辅助方法形成的台阶积累的 AFM 视图

Fig. 2 (a) AFM top view of 100nm thick GaAs layer grown on (311)A substrate at 620°C; (b) AFM top view of step bunching structures by atomic hydrogen assisted MBE

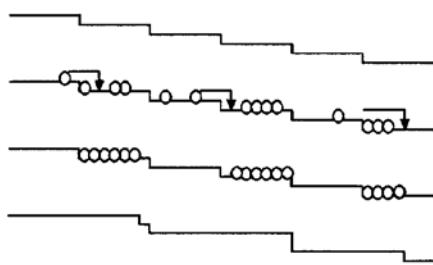


图 3 台阶转变示意图

Fig. 3 Transformation process of steps

要通过外界条件促进原子在台阶之间的迁移,进而促进台阶积累。

从生长动力学的角度来看,原子在表面的迁移

是以一定的几率跳跃至其相邻位置完成的。这个跳跃几率由该原子的周围环境束缚能以及由应变产生的弹性势能决定。根据固-固模型(solid on solid model)^[9~11],我们知道原子在表面的迁移几率 R_n 由下面的公式决定:

$$R_n = R_0 \exp^{-E/k_B T}$$

其中 R_0 是特征振动频率; k_B 是波尔兹曼常数; T 是衬底温度; E 是原子迁移的激活能。

我们这里采用的是(311)A 面衬底, 表面存在固有微台阶。传统外延方式中, 由于 Ga 原子在表面没有获得足够的迁移, 因此台阶积累效应很不明显, 在外延了 100nm 的 GaAs 之后, 表面形貌并没有发生明显的变化。但是在氢辅助的条件下, 由于原子氢和表面原子结合, 降低了 Ga 原子迁移跳跃时所需的激活能 E , 使得 Ga 原子在台阶边缘非常容易进行迁移, 促进了微台阶的积累, 从而也促进了表面台阶形貌的自组织形成, 最终形成了这种规则的台阶束的结构。

应当指出, 影响台阶大小和形状的因素较多, 原子氢促进台阶生长的作用机理也比较复杂, 仍然需要进行深入地理论和实验研究。

进而, 我们在已获得的台阶表面结构上, 进行了量子点有序化制作的探索。首先如上所述, 衬底在原子氢辅助的条件下, 低温脱氧, 然后在 620°C 的衬底温度下, 在(311)A 衬底上淀积 100nm 的 GaAs, 形成台阶积累结构。然后, 将衬底温度降低至 450°C, 淀积 1.7ML 的 InAs, 形成量子点。图 4(a)是典型的在没有原子氢辅助的情况下, 按照传统方式生长的 2.0ML InAs 量子点的 AFM 视图。图 4(b)是该样品的 AFM 视图。可以看到, 传统方式生长的量子点的位置分布是随机的。

从图 4(b)中我们可以看到量子点分布在台阶状表面结构之上, 与图 4(a)相比, 量子点的分布沿着台阶的走向排列受到一定的约束, 但是还不十分明显。我们认为, 这是由于量子点的尺度仍然比较大, 衬底形貌还没有达到足以约束量子点形成序排列的程度。从图中我们可以看到, 形成的量子点的高度大约在 4nm 左右, 这个高度要比台阶本身的高度大一些, 而且量子点的宽度也和台阶的周期相当。因此, 量子点与量子点之间的位置关系没有受到下层台阶状结构的影响。如果使台阶进一步积累, 台阶高度达到 10nm, 宽度达到 100nm, 那么台阶状表面结

构对量子点在其上面的排列限制应该有所增强, 这也是我们下一步的研究目标。通过进一步调整外延

参数条件, 或者采用表面微台阶起伏更大的(331)A面的衬底进行外延, 都是可行的探索道路。

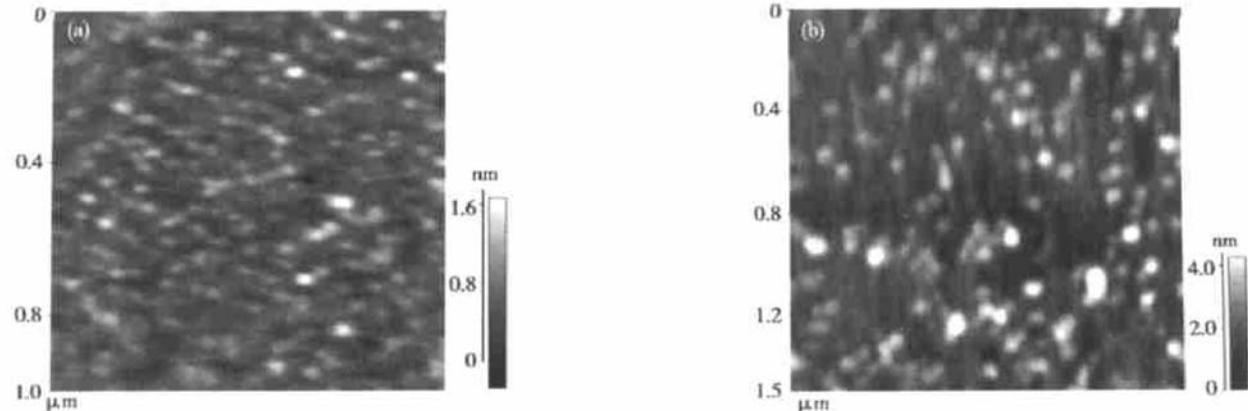


图4 InAs 量子点 AFM 视图 (a) 采用传统方式在(100)面生长的 2.0ML InAs 量子点; (b) 在原子氢辅助下先形成台阶结构, 然后生长的量子点

Fig. 4 AFM top view of InAs quantum dots (a) InAs quantum dots on (100) substrate by traditional MBE; (b) InAs quantum dots above step-bunching structures by atomic hydrogen assisted MBE

值得一提的是, 在原子氢辅助条件下, 在台阶表面生长的 InAs 量子点尺寸明显大于传统方式生长的量子点。我们认为, 由于 GaAs(311)A 面上的 InAs 量子点 2D-3D 转变厚度要比在(100)面上小, 1.7ML 的 InAs 淀积量足以成岛, 并且在原子氢辅助的作用下, InAs 岛之间有聚合的现象, 所以图 4(b) 中量子点尺寸偏大, 且不均匀。这也正是导致量子点分布受台阶形貌影响不大的原因。

4 结论

通过在分子束外延中引入原子氢, 获得了 GaAs(311)A 表面的台阶状形貌。研究认为, 原子氢辅助分子束外延通过改变表面原子的束缚能, 从而改变了表面原子的位置迁移几率特性, 进而在(311)A 面上获得规则排列的台阶状结构。我们认为这种台阶状表面形成的机理主要是氢原子与衬底表面原子结合, 改变了表面的束缚能。初步对在这种台阶状表面上生长 InAs 量子点位置分布进行了研究。这些结果对于今后自组织量子点阵列的制备提供了实验参考。

参考文献

[1] Sugaya T, Kawabe M. Low-temperature cleaning of GaAs

substrate by atomic hydrogen irradiation. *Jpn J Appl Phys*, 1991, 30: L402

- [2] Chun Y J, Okada Y, Kawabe M. Effect of atomic hydrogen in highly lattice-mismatched molecular beam epitaxy. *J Cryst Growth*, 1995, 150: 497
- [3] Nötzel R, Ploog K H. Atomic hydrogen induced step bunching on high-index GaAs substrates for fabrication of novel quantum wire and quantum dot arrays by molecular beam epitaxy. *Jpn J Appl Phys*, 2000, 39: 4588
- [4] Nötzel R, Ramsteiner M, Niu Zhichuan, et al. Atomic hydrogen assisted molecular beam epitaxy on patterned GaAs (311)A substrates: formation of highly uniform quantum-dot arrays. *J Electron Mater*, 1998, 27: 36
- [5] Lee H, Johnson J A, Speck J S, et al. Controlled ordering and positioning of InAs self-assembled quantum dots. *J Vac Sci Technol B*, 2000, 18: 2193
- [6] Tatebayashi J, Nishioka M, Someya T, et al. Area-controlled growth of InAs quantum dots and improvement of density and size distribution. *Appl Phys Lett*, 2000, 77: 3382
- [7] Masuda M, Nishinaga T. Microstep formation and growth condition dependence in MBE of GaAs (111)B vicinal surface. *J Cryst Growth*, 1999, 198/199: 1098
- [8] Kasu M, Kobayashi N. Surface-diffusion and step-bunching mechanisms of metalorganic vapor-phase epitaxy studied by high-vacuum scanning tunneling microscopy. *J Appl Phys*, 1995, 78: 3026
- [9] Larsson M I. Surface diffusion mechanism for step bunching. *Phys Rev B*, 1997, 56: 15157
- [10] Khor K E, Das Sarma S. Quantum dot self-assembly in

- growth of strained-layer thin films: a kinetic Monte Carlo study. *Phys Rev B*, 2000, 62: 16657 [11] Haider N, Wilby M R, Vvedensky D D. Growth kinetics on non-planar substrates. *J Cryst Growth*, 1993, 127: 922

Step-Like Morphology Surfaces Formed by Atomic Hydrogen Assisted Molecular Beam Epitaxy^{*}

Zhou Dayong, Lan Qing, Kong Yunchuan, Miao Zhenhua, Feng Songlin and Niu Zhichuan

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: The effects of atomic hydrogen on surface morphology of epitaxial layers grown by molecular beam epitaxy are investigated. AFM pictures show that atomic hydrogen leads to the formation of step bunching on (311)A GaAs surface. The sites distribution of InAs quantum dots (QDs) grown on this step-like morphology surfaces is slightly positioned by the steps of the surfaces. All these results give useful experimental references to the site controlled growth of QDs.

Key words: MBE; AFM; step bunching; quantum dots

PACC: 0570; 8115C; 6822

Article ID: 0253-4177(2003)02-0148-05

* Project supported by National Science Foundation of China(Nos. 60176006 and 60025410) and Nano-Science and Technology Project of The Chinese Academy of Science

Zhou Dayong male, was born in 1977. His research interests focus on III-V series semiconductor materials and MBE growth of low-dimensional structures.