

氢原子辅助 MBE 生长对 GaAs 外延面形貌的影响

牛智川^{1,2} Richard Noetzel¹ 周增圻² 吴荣汉² Klaus H. Ploog¹

(1 Paul-Drude-Institut for Solid State Electronics, Hausvogteiplatz 5-7, D-10117, Berlin, Germany)

(2 中国科学院半导体研究所 国家光电子工艺中心 北京 100083)

摘要 本文研究了 MBE 通常生长条件和氢原子辅助生长条件下 (100)、(331)、(210)、(311) 等表面外延形貌的变化。原子力显微镜 AFM 测试的结果表明: (100) 表面在氢原子辅助生长条件下外延面的岛状起伏变得更为平坦, 二维生长模式得到增强; (331) 面在两种条件下均显示出台阶积累 (step bunching) 式生长, 而氢原子辅助生长则减小了台阶结构的横向周期; (210) 面在氢原子辅助生长下也使原表面存在的岛状结构尺寸减小; 在 (311) 表面氢原子诱导的作用明显地增强了台阶积累生长模式。本文认为氢原子诱导作用机制在于: 外延面台阶处 As 原子和 H 原子结合减小了表面结合能, 导致 Ga 原子表面迁移长度的减小, 增强了台阶积累生长效应; 而对于平坦的 (100) 表面氢原子的诱导作用使得 Ga 迁移长度增加, 导致二维生长模式的进一步增强。预期氢原子辅助 MBE 生长导致的台阶积累效应可以用于低维结构的直接生长。

PACC: 6855, 611D, 6820

1 引言

近年来, 氢原子辅助外延生长被认为是一种可以有效地提高外延材料质量的方法^[1~5]。由于氢原子可以改变外延表面原子的生长行为^[3,4], 增强选择生长模式^[6,7], 因此可以考虑把这种方法应用到低维结构的直接生长。除了已经尝试使用的多种低维结构的直接生长方法外^[8~10], 最近发展了一种利用衬底表面, 如 (110), (210), (775) 和 (311) 等具有的微台阶结构, 用 MBE^[11~13] 或 MOVPE^[14] 产生的台阶积累 (step bunching) 效应, 使微台阶外延到一定

牛智川 男, 博士, 在中国科学院半导体研究所国家光电子工艺中心从事 III-V 族材料、低维结构的 MBE 生长等研究工作

Richard Noetzel 男, 博士, 在德国 PD I 研究所负责 III-V 族材料低维结构的 MBE 生长、特性及其应用研究项目
1997-02-17 收到, 1997-06-04 定稿

尺寸形成低维量子限制结构的方法 在MOVPE的外延过程中,氢原子始终参与了外延过程,对台阶积累必然存在相应的作用 然而目前还没有关于氢原子辅助MBE生长对微台阶积累效应的研究报道,此外无论是MOVPE或MBE的生长过程,氢原子在外延表面诱导作用的物理机制也有待进一步研究

本文研究了用MBE通常生长条件和氢原子辅助生长条件下,GaAs(100),(331),(210)和(311)等取向外延表面形貌的变化 发现对平坦的(100)表面,氢原子诱导下外延表面的岛状结构变的更加平坦,即增强了二维生长模式;而在(331)表面显示出明显的台阶积累(step bunching)生长效应,氢原子诱导生长下进一步减小了台阶的横向周期;在(210)表面氢原子辅助生长使得表面存在的岛状结构尺寸减小;在(311)表面,氢原子诱导的作用明显地增强了台阶积累生长模式,获得了非常均匀的线状结构外延面 本文讨论了在平坦表面和台阶状表面氢原子诱导作用的差别,认为衬底表面台阶区域的As原子和H原子的结合减小了表面结合能,从而减小了Ga原子的表面迁移长度,导致外延层台阶积累生长模式的增强;同时不同取向指数面原子排列的差异决定了氢原子诱导作用的强弱;而对于较为平坦的(100)面,氢原子诱导作用却增加了Ga原子的表面迁移长度,使得二维生长模式得到进一步增强 我们预期氢原子诱导对台阶积累效应的增强作用可以用于低维结构的直接生长

2 生长实验

对所选用的(100),(331),(210),和(311)等衬底,首先进行纯硫酸超声清洗—水冲洗—氮气吹干—加热到300℃(形成表面氧化层)等化学处理过程 这种化学处理方法的优点在于其腐蚀速率较小,对不同取向表面具有的微台阶的腐蚀速率的差异可以忽略,腐蚀后原有的台阶结构得到保护 将这些衬底用粘In的方法同时固定在钼托上 MBE设备为RBER 2300系统 通常的生长条件为生长温度620℃,生长速率为0.3 $\mu\text{m}/\text{h}$,V/III束流比为5,外延层厚度设计为100nm.生长时衬底以6转/分钟的速率旋转,保证分子束均匀地入射到衬底表面 在进行氢原子辅助生长时,原子氢由氢分子经过裂解炉1800℃的加热裂解得到,生长室压强保持为 $1.33 \times 10^{-4}\text{Pa}$

3 测试结果与讨论

图1(见图版D)分别给出了通常条件和氢原子诱导条件下,在(100),(331),(210),和(311)等样品表面上原子力显微镜的测试结果,测量所用设备为Park SFM-BD2-210型AFM测试系统 测试是在空气中进行的 扫描面积为 $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$.图中横向标尺长度为 $1\mu\text{m}$,纵向标尺高度为5nm.比较两种生长条件下不同的外延表面的形貌可以看到:

(1) (100)面在氢原子诱导生长条件下其表面的岛状结构(表面尺寸大小 μm 量级)明显地变得更为平坦,说明在这样的生长条件下,在(100)面上氢原子诱导的作用明显地增强了MBE二维生长模式

(2) 在(331)面无论是否使用氢原子诱导,MBE生长的结果均显示出了台阶积累的生

长模式,其台阶分布均匀,互相没有交错。这些特性应该可以用于量子线结构的直接制备。然而重要的是,氢原子诱导生长的结果使(331)面台阶列阵的横向周期尺寸从180nm减小到40nm(这一数据是AFM测试结果的剖面数据的平均值),高度也相应变浅。从AFM剖面测试数据来看,氢原子辅助生长导致(331)面台阶密度增加了四倍,为保持原晶面取向,其台阶宽度必然减小四倍左右。即使台阶高度的变化较大,而且有可能每一个台阶变化并不完全相同,但从整个外延面的平均变化来看,这种差异不导致表面取向的变化。原(331)面台阶的高度约在6nm左右,远在四个原子层以上的高度范围,因此,氢原子辅助生长使得台阶横向尺寸减小四倍是可以理解的。

(3) (210)面在两种生长条件下均显示出岛状结构形貌,而氢原子诱导生长条件下,其表面存在的岛状结构平均尺寸从90nm减小到50nm。

(4) (311)面在没有氢原子辅助的生长条件下,其表面呈现较为平坦的岛状结构,同时也可以看到表面存在微台阶;而在氢原子诱导生长下,其原有的微台阶获得了明显的外延积累——外延生长至几十nm的尺寸,而表面形貌的岛状结构起伏基本消失,表面变为平坦均匀的线状结构。

我们知道这些高指数面表面结构是密度较大的台阶状表面^[8]。在台阶状表面氢原子诱导生长下的结果反映出了共同的趋势,即表面岛状结构尺寸变小,同时增强了台阶积累生长模式。实际上^[14],在相似的生长温度下用MOVPE在(311)面的生长结果也获得了台阶积累效应。因此可以认为^[9],这种存在于两种生长方法中的类似的现象,是由于衬底表面台阶处的As-As键(AsDimer)或悬挂键As(A s Dangling Bonds)受到氢原子的诱导作用,形成结合能较小的As-H键,使得外延表面的Ga原子更容易与As结合进入稳定格点,即Ga原子的表面迁移长度减小。这一过程在台阶处发生的几率最大,因此生长的结果是增强了台阶的积累式生长。

而对于(100)面非台阶状表面或台阶密度很小的表面,由于不存在或少量存在台阶状表面所具有的As-As键或As悬挂键,氢原子的这种改变表面结合能的作用显然要小得多^[15],相反地从实验结果所反映的现象可以认为,氢原子在(100)面的诱导作用增加了Ga原子的表面迁移长度,一种可能的机制在于H原子和Ga原子结合形成了Ga-H键,使得Ga原子与As原子的结合速率降低,增加了Ga原子实际的迁移长度,导致二维生长模式的进一步增强。

从氢原子诱导作用的不同结果可以预期:氢原子诱导下MBE生长对台阶积累效应的增强作用,可以用于在高指数面衬底下低维结构的直接生长,而且有可能利用氢气压这一生长参数,来控制其台阶积累生长使其横向尺寸在10nm左右,从而获得理想的量子线结构。此外,我们曾经研究过通常生长条件下MBE非平面生长形成脊形结构的生长机理^[18],结合氢原子辅助MBE生长的实验结果可以进一步预期:选择适当取向的衬底,经过腐蚀形成非平面表面,进行氢原子诱导生长时,使得Ga原子的迁移长度在侧面上增加,而在沟底和台面上减小,其外延层的形貌和组分将在横向产生相应的变化,用以形成横向势垒从而得到低维结构。我们将进一步开展这两方面的研究。

4 结 论

从实验结果和分析讨论可以得出结论, 氢原子辅助MBE生长对于平坦的表面氢原子的诱导作用增加了Ga原子的表面迁移长度, 从而增强了MBE的二维生长模式, 表面变得更加平坦。而对于高指数表面(台阶状结构表面)氢原子的诱导作用减小了表面微结构的尺寸, 增强了台阶积累生长效应。认为其原因在于氢原子与台阶区域As原子的结合形成了较低的表面结合能, 导致Ga原子迁移长度的减小。其生长机制还需要作进一步的研究。我们预期氢原子诱导作用对台阶表面和平坦表面的不同效应可以用于在高指数表面上或腐蚀图形衬底上低维结构的直接生长。

参 考 文 献

- [1] M. Copel and R. M. Tromp, *Appl Phys Lett*, 1991, **58**: 2648
- [2] H. Shimomura, Y. Okada and M. Kawabe, *Jpn J. Appl Phys*, 1992, **31**: L628
- [3] H. Asahi, T. Hisaka, S. G. Kim *et al*, *Appl Phys Lett*, 1992, **61**: 1054
- [4] Y. Okada, T. Sugaya, S. Ohta *et al*, *Jpn J. Appl Phys*, 1995, **34**: 238
- [5] M. Yokozeki, H. Yonezu, T. Tsuji *et al*, *Jpn J. Appl Phys*, 1996, **35**: 2561
- [6] T. Sugaya, M. Kaneko, Y. Okada *et al*, *Jpn J. Appl Phys*, 1993, **32**: L1834
- [7] M. Yokozeki, H. Yonezu, T. Tsuji *et al*, *Jpn J. Appl Phys*, 1996, **35**: 2561
- [8] L. N. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Stmer *et al*, *Appl Phys Lett*, 1990, **56**: 1697
- [9] E. Kapon, M. C. Tamargo and D. M. Huang, *Appl Phys Lett*, 1987, **50**: 347
- [10] M. Tsuchiya, J. M. Gaines, R. H. Yan *et al*, *Phys Rev Lett*, 1989, **62**: 466
- [11] M. Takeuchi, K. Shiba, H. K. Huang *et al*, *J. Cryst Growth*, 1995, **150**: 441
- [12] R. Notzel, D. Eissler, M. Hohenstein *et al*, *J. Appl Phys*, 1993, **74**: 431
- [13] M. Higashiwaki, M. Yamamoto, S. Shimomura *et al*, *Proc. of 9th International Conference On MBE*, Aug 5~9, 1996, California, USA. P33
- [14] R. Notzel, J. Temmyo and T. Tamamura, *Appl Phys Lett*, 1994, **64**: 3557
- [15] Y. Miyamoto and S. Nonoyama, *Phys. Rev. B*, 1992, **46**: 6915
- [16] R. Notzel, L. Daweritz and K. Ploog, *Phys. Rev. B*, 1992, **46**: 4736
- [17] Y. Horikohi, H. Yamaguchi, F. Borines *et al*, *J. Cryst Growth*, 1990, **105**: 326
- [18] 牛智川, 周增圻, 林耀望, 等, *半导体学报*, 1996, **17**(3): 227~230

Effects of Atomic Hydrogen on Surface Morphology of GaAs Grown by MBE on High Index Substrates

Niu Zhichuan^{1,2}, Richard Noetzel¹, Zhou Zengqi², Wu Ronghan², Klaus H. Ploog¹

(1 Paul-Drude-Institut für Solid State Electronics, Hausvogteiplatz 5-7, 10117 Berlin, Germany)

(2 National Research Center for Optoelectronic Technology, Institute of Semiconductors, Beijing 100083)

Received 17 February 1997, revised manuscript received 4 June 1997

Abstract The effects of atomic hydrogen on step bunching of GaAs grown by MBE on high index substrates including (100), (210), (311), and (331) are investigated by atomic force microscopy measurements. Comparative results with and without atomic hydrogen show that atomic hydrogen assisted MBE results in a reduction of the Ga diffusion length on high index surfaces which exhibit a high density of steps at typical growth conditions. On (311) surfaces step bunching is promoted by atomic H. (331) surfaces exhibit step arrays whose lateral periodicity of steps become smaller with atomic H. On (210) surfaces, the morphology shows a smaller size island structures with atomic H. Only on (100) surface, the shapes of island on the surface are similar with and without atomic H, while the surface becomes more flat under atomic H. We considered that the increment of Ga diffusion length improved by atomic H enhance the 2D growth mode on (100) surface. While the reduction of the Ga diffusion length on step structures surfaces is caused by atomic H, which are relevant for the accumulation of the complex microscopic step structures by passivating As dangling bonds to be terminated by atomic H. It is expected that the improvement of step bunching by atomic H could be applied to the direct growth of low dimensional structures in a controlled way.

PACC: 6855, 6110, 6820