

# GaAs 和 AlGaAs MBE 外延生长动力学研究\*

陈益栋<sup>1,2)</sup> 刘兴权<sup>1)</sup> 陆卫<sup>1)</sup> 乔怡敏<sup>1)</sup> 王贤仁<sup>2)</sup>

(<sup>1)</sup>中国科学院上海技术物理研究所, 红外物理国家实验室, 上海, 200083;

<sup>2)</sup>吉林大学电子工程系, 吉林, 长春, 130023)

TN304.23

**摘要:**研究了在 GaAs(001) 衬底上外延生长 GaAs、AlGaAs 材料过程中反射高能电子衍射(RHEED)的各级条纹及其强度随生长过程的变化。通过对各级条纹强度振荡周期和位相的分析,应用二维成核层状生长模型解释了实验结果;生长表面形貌的周期性变化导致了 RHEED 各级条纹及其强度的周期性变化。

**关键词:**分子束外延, 反射高能电子衍射, 实时监测, GaAs, AlGaAs.

砷化镓 半导体

## STUDY OF THE GaAs, AlGaAs MBE GROWTH DYNAMICS\*

CHEN Yi-Dong<sup>1,2)</sup> LIU Xing-Quan<sup>1)</sup> LU Wei<sup>1)</sup> QIAO Yi-Min<sup>1)</sup> WANG Xian-Ren<sup>2)</sup>

(<sup>1)</sup> National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China;

<sup>2)</sup> Electronic Engineering Department, Jilin University, Changchun, Jilin 130023, China)

**Abstract** The intensity oscillations in the various beams in RHEED pattern were observed during MBE growth of GaAs and AlGaAs. The two-dimensional layer-by-layer mode was used to analyze the experiment results and (00), (01) beams intensity oscillations were attributed to the periodic variations of the surface roughness. The existence of the various fractional-order beams indicated that the reconstructed surface existed on the GaAs (001) substrate surface during growth in the present growing conditions, their intensity oscillations were attributed to the reconstruction periodic variations on the two-dimensional island surface.

**Key words** MBE, RHEED, real-time monitoring, GaAs, AlGaAs.

### 引言

近年来,由于光电器件等领域的发展,大大促进了低维半导体结构如量子阱、量子点在其中的应用,而许多半导体结构的性质受到其表面或界面形貌的很大影响,因而对于表面及界面的研究提出了新的要求。薄膜材料生长过程中产生的表面形貌是由生长过程中的表面动力学过程或生长系统达到的热力学过程来控制的,热力学过程和动力学过程之间形成竞争机制,由其中的主导过程来控制生长表面的形貌。对于薄膜外延生长,在热力学平衡条件下能获得光滑的表面,但是只有在非常低的生长速率和足够高的温度下才能达到,因为此时动力学过程为快过程<sup>[1]</sup>。分子束外延(MBE)作为一种外延生长技术是远离热力学平衡的生长过

程,MBE 外延材料的表面形貌主要取决于生长动力学过程。人们对于 MBE 外延生长表面动力学过程进行了极为广泛的研究。

反射高能电子衍射(RHEED)作为 MBE 外延生长的一种原位检测技术,为人们从事 MBE 外延生长研究提供了丰富的信息。由其测量机理决定不但能用它测量材料表面结构,还能进行 MBE 外延生长动力学过程研究。从 RHEED 图案及其强度变化中,我们可以得到生长的表面相变<sup>[2]</sup>、生长机制<sup>[3,4]</sup>、表面扩散<sup>[5]</sup>和生长速率等信息。本文给出了在 GaAs 衬底(001)表面进行 GaAs、AlGaAs MBE 同质和异质外延生长中观察到 RHEED 各级条纹及其强度变化,并对由此而反映出的表面生长动力学等信息进行了深入地讨论。

\* 国家自然科学基金(编号 69776018)和国家杰出青年基金(编号 19525409)资助项目

稿件收到日期 1999-02-03,修改稿收到日期 1999-03-08

\* The project supported by the National Natural Science Foundation and National Foundation for Outstanding Youth of China

Received 1999-02-03, revised 1999-03-08

### 1 实验与结果

实验所用 MBE 系统为 RIBER32R&D 型 III-V 族 MBE 系统, GaAs(001) 衬底片经过清洗、抛光、腐蚀等工艺, 装入 MBE 系统. 在预处理室, 在 150 C、260 C、370 C 3 种温度下进行除气, 而后送入生长室, 在 640 C As<sub>2</sub> 气氛保护下进行表面脱氧, 待温度降到 605 C 时, 生长 1μm 缓冲层后, 开始表面生长动力学过程研究, 我们生长了 2 种样品: 一种是 GaAs 材料同质外延, 束源炉温度分别为: Ga 源炉 T<sub>Ga</sub> = 960 C, As 源炉 T<sub>As</sub> = 198 C; 另一种为 AlGaAs 材料异质外延, Al 源炉 T<sub>Al</sub> = 1080 C. 在生长过程中, 用 RHEED 对表面进行实时监测, 入射电子量为 10keV, 沿正 [110] 方向掠入射, 用 CCD 图像采集系统记录下 RHEED 各级衍射条纹在生长过程中的变化.

对于 GaAs 同质外延, RHEED 各级条纹及其强度变化如图 1 所示, 我们不但观察到了 (00)、(01) 整数级条纹及其强度的周期性振荡, 而且观察到了 (1/4)、(1/2)、(3/4) 等分数级条纹及其强度的周期性振荡. 从图中可以清楚地观察到, 各级条纹强度振荡周期均相同, 但位相却不一致, (00)、(01) 两整数级条纹强度振荡几乎是同位相的, 同时 (1/4)、(1/2)、(3/4) 等分数级条纹强度振荡位相是相互一致的, 但它们相对于 (00)、(01) 级条纹强度振荡是反位相的. 另外, 各级条纹强度振荡持续的时间也不相同, (00) 级条纹振荡持续的时间最长, 其次是 (01) 级条纹, (1/4)、(1/2)、(3/4) 等分数级条纹振荡持续的时间最短. 对于 AlGaAs 异质外延, RHEED 各级条纹及其强度变化如图 2 所示, 我们发现它和 GaAs 同质外延中 RHEED 各级条纹有相同的变化特性. 不同的是: 对于 GaAs 同质外延材料,

AlGaAs 异质外延生长中对应各级条纹振荡周期比较小, 振荡幅度也不同, GaAs 生长中 (00)、(01) 级条纹强度振荡幅度小于 AlGaAs 生长中 (00)、(01) 级条纹强度的振荡幅度, 如图 3 所示, 而 GaAs 生长中各分数级条纹强度振荡幅度大于 AlGaAs 生长中相应各分数级条纹强度的振荡幅度, 从图 1 和 2 可明显看出.

### 2 实验结果讨论

对于 (00) 级条纹振荡人们研究了很多<sup>[1]</sup>, 最普遍的解释是: 强度振荡行为反映出生长机理为二维成核层状生长, 一个振荡周期相应于一个单分子层 (一个 Ga 原子层加上一个 As 原子层) 的生长, 随着二维成核逐步分布于不同的表层, 振荡强度逐渐衰减, 生长模式由二维成核层状生长向三维生长模式转变, 最后转变为三维生长, 振荡消失, 生长最初强度的反常上升或下降则是由于生长之初表面 As/Ga 比变化而导致的表面再构的瞬时相变而引起的<sup>[2]</sup>.

与已有的 RHEED 条纹强度振荡研究, 不同的是, 实验中我们还清楚地观察到了 (1/4)、(1/2)、(3/4) 等分数级条纹强度的周期性振荡. 由于分数级条纹是由于表面再构引起的<sup>[3]</sup>, 因而可以推知, 在生长过程中表面存在再构, 各分数级强度振荡周期、位相均相同, 而且振荡周期等于 (00) 级条纹强度振荡周期, 说明表面再构状态在生长过程中也存在一种无序和有序的周期性变化, 各级条纹强度振荡位相之间的不同, 及持续时间的差异, 这是由于引起各级条纹强度振荡的具体因素不同而引起. 对以上情况, 应用二维成核层状生长模型来解释.

由生长前观察到的 (1/4)、(1/2)、(3/4) 等分数级条纹及生长开始瞬间 (00) 级条纹微小的反常下降和上升可知, 在此条件下, 生长前衬底表面为 C(4×4) 和 (2

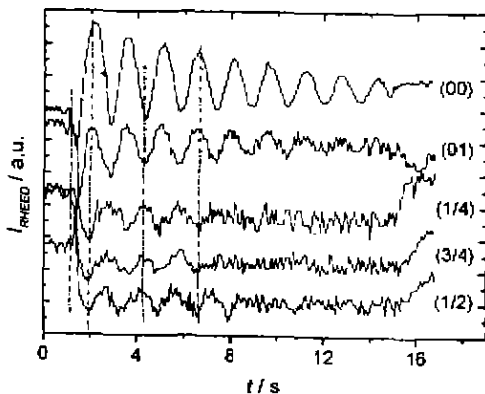


图 1 GaAs MBE 生长中 RHEED 各级条纹强度的振荡  
Fig. 1 Various beams oscillations of RHEED during GaAs MBE growth

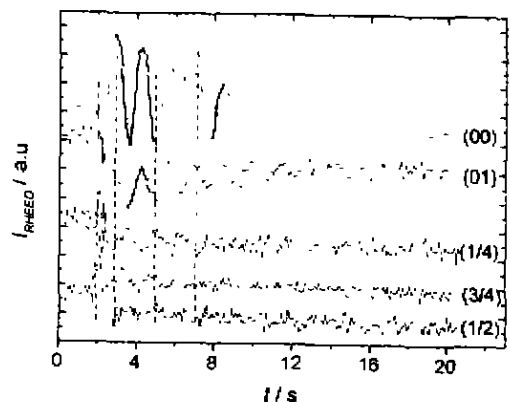


图 2 AlGaAs MBE 生长中 RHEED 各级条纹强度的振荡  
Fig. 2 Various beams oscillations of RHEED during AlGaAs MBE growth

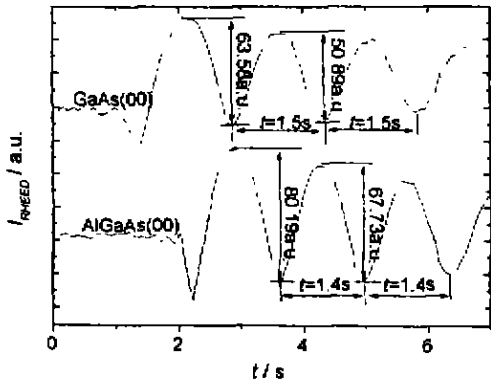


图3 GaAs AlGaAs MBE 生长中 RHEED (00) 级条纹振荡周期及振荡幅度的比较  
Fig.3 A comparison between the RHEED (00) beams period and intensity during GaAs and AlGaAs MBE growth

$(2 \times 4)$ 型混合再构表面<sup>[21]</sup>,随着生长开始 Ga 原子的入射,生长表面 As/Ga 比发生变化,表面转化为 $(2 \times 4)-\beta$ 型再构;随着 As/Ga 比进一步减小,表面再构迅速消失, $(1/4)$ 、 $(1/2)$ 、 $(3/4)$ 等分数级条纹强度在生长之初的反常下降说明了这一点,同时表面的粗糙度发生变化,这可以从(00)、(01)整数级条纹强度在生长之初的反常变化看出,在正常的二维成核生长过程中,表面吸附原子相互碰撞形成二维核,二维核捕获周围的吸附原子形成二维岛,在二维岛生长过程中,小岛的半径小于吸附原子的平均扩散长度,因此到达二维岛表面上的吸附原子在岛上扩散后均被小岛边缘捕获,小岛表面上的吸附原子浓度很低,形成相当于没有 Ga 原子入射的“真空”表面,又处于富 As 的状态,因而小岛表面又逐步恢复 $(2 \times 4)-\beta$ 型再构状态,随着生长的进行,二维岛的长大,表面台阶浓度逐步增加,对电子的反射衍射作用减弱,同时二维岛表面上也相当于整个生长表面上的 $(2 \times 4)-\beta$ 型再构成份逐步增强,从而(00)、(01)整数级条纹强度逐渐减弱,而 $(1/4)$ 、 $(1/2)$ 、 $(3/4)$ 等分数级条纹强度逐步增强,但随着生长的进行,二维岛之间相互吞并形成更大的二维岛,台阶浓度逐渐减小,表面对电子的反射衍射作用增强,这时吸附原子的表面扩散长度小于二维岛的半径,从而二维岛表面上的 Ga 吸附原子浓度又逐步增多,表面 As/Ga 比减少,导致二维岛表面上也相当于整个生长表面上的 $(2 \times 4)-\beta$ 型再构成份逐步减少,从而(00)、(01)整数级条纹强度逐渐增强,而 $(1/4)$ 、 $(1/2)$ 、 $(3/4)$ 等分数级条纹强度逐步减弱,当一层生长接近完成之时,新的一层生长已经开始,表面粗糙度又逐步增大,表面再构成份又逐步增加,这个反复的过程导致生长表面形貌发

生周期性变化,从而导致了 RHEED 各级条纹强度不断振荡,由于生长表面逐步分布在几个不同的表层,所以强度振荡逐步衰减,最后生长转变为三维生长,各级条纹强度振荡消失,在生长过程中,二维岛表面的再构成份相对于生长前整个表面上的再构来说非常小,所以各分数级条纹强度振荡的最大值远小于生长前相应各级条纹强度,且随着生长过程中二维生长所占比例的减小,表面再构恢复成份也越来越小,达到一定程度,已不足以引起分数级条纹振荡,而且随着生长向三维生长模式转变,每一生长周期内表面平滑度的恢复也越来越弱,对电子的反射衍射作用也越来越弱,但是由于反射衍射作用对(00)级条纹的贡献最明显,从而,相对于(01)级条纹来说,(00)级条纹振荡更明显,持续的时间更长。

另外,在相同条件下,由于增加了 Al 束流,因而 AlGaAs 生长较快,RHEED 各级条纹振荡周期较小,由于 Al 的扩散长度相对于 Ga 来说较短<sup>[2]</sup>,因而吸附的 Al 原子相对来说较容易成核,更有利于二维成核层状生长,由于 AlGaAs 生长中形成数量多而尺寸较小的二维岛,使二维岛表面再构恢复的程度较小,所以相对于 GaAs 生长来说,AlGaAs 生长中 RHEED 各整数级条纹振荡幅度较大,而各分数级条纹振荡幅度较小。

### 3 结论

通过对 GaAs、AlGaAs 材料 MBE 外延生长过程中 RHEED 各级条纹的研究,我们发现 RHEED 各级条纹都呈现出周期性振荡行为,且它们的振荡周期相同,在我们的实验条件下,发现整数级条纹振荡位相相同,各分数级条纹振荡位相相同,而整数级条纹振荡位相和分数级条纹振荡位相却相反,我们应用二维成核层状生长模型对此作了解释:整数级条纹振荡归因于生长表面粗糙度的变化,生长过程中 $(1/4)$ 、 $(1/2)$ 、 $(3/4)$ 等分数级条纹的存在,说明在生长过程中生长表面存在 $(2 \times 4)-\beta$ 型的再构;而分数级条纹的振荡归因于生长过程中二维岛表面再构的周期性变化。

### REFERENCES

- [1] Heller H J, Lagally M G. In situ scanning tunneling microscopy observation of surface morphology of GaAs(001) grown by molecular beam epitaxy, *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **60**, (21) 2675
- [2] LIU Xing-Quan, LU Wei, MA Zao-Hui, et al. Study of transient surface phase transition on GaAs (001) during MBE growth, *Chin. J. Semiconductors* (刘兴权, 陆卫, 马

- 朝晖,等. GaAs (001) 同质外延表面相变的动态研究, *半导体学报*, 1997, **18**(6), 408
- [3] Lewis B F, Lee J C, Grunthaner F J, *et al.* RHEED oscillation studies of MBE growth kinetics and lattice mismatch strain-induced effects during InGaAs growth on GaAs (001), *J. Vac. Sci. Technol.* B2(3), 1984, **2**:419
- [4] Chen P, Madhuka A, Kim J Y, *et al.* Existence of metastable step density distributions on GaAs(001) surfaces and their consequence for molecular beam epitaxy growth, *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**(10), 650
- [5] Vanhove J M, Choen P I. Reflection high energy electron diffraction measurement of surface diffusion during the growth of gallium arsenide by MBE, *J. Crystal. Growth*, 1987, **81**:13
- [6] Neave J H, Joyce B A, Dobson P J. Dynamic RHEED observation of the MBE growth of GaAs, *Appl. Phys. A*, 1984, **34**: 179; Shaun Clarke, Dimitri D Vvedensky. Growth kinetics and step density in reflection high-energy electron diffraction during molecular-beam epitaxy, *J. Appl. Phys.*, 1988, **63**(7): 2272; Joyce B A, Shitara I, Shingaga A Y, *et al.* Elementary processes in the MBE growth of GaAs, *Appl. Surf. Sci.*, 1992, **60/61**:200
- [7] Farrell H H, Palstrom C J. Reflection high energy electron diffraction characteristic absences in GaAs(001) (2 \* 4)-As: A tool for determining the surface stoichiometry, *J. Vac. Sci. Technol.*, 1990, **B8**(4):903
- [8] Hopkins J, Leys N R, Brubach J, *et al.* A RHEED study of the dynamics of GaAs and AlGaAs growth on a (001) surface by MBE, *Appl. Surf. Sci.*, 1995, **84**:299