

# GaAs 分子束外延生长的 Monte Carlo 模拟

茅惠兵 陆卫 马朝晖 刘兴权 沈学础

(中国科学院红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

(1993年7月8日收到)

用 Monte Carlo 方法模拟了 GaAs (001) 面的邻晶面上的分子束外延的生长过程, 模拟的基本模型是常用的 SOS 模型, 结果显示在 A 类邻晶面上二维成核模式起主要作用, 但在 B 类邻晶面低温下是二维成核模式起主要作用, 但在高温下台阶成核模式成了主要的成核模式. 另外在高温和低温下都存在成核原子数的饱和现象.

**PACC:** 6855;6845;8160C;6630L

## 1 引言

分子束外延 (MBE) 是研究超薄层材料的主要方法之一, 而材料生长机制则直接决定生长的条件, 并影响外延层的性质, 因此分子束外延的生长机制成了最近几年的一个重要研究领域.

从理论上讲, 研究材料的生长机制有两种不同的方法. 第一是分子动力学 (MD) 方法, 但这种方法需要求解体系中每个粒子的耦合运动方程, 因此在势能比较复杂条件下这将是非常困难的. 第二是所谓 Monte Carlo (缩写为 MC) 方法, 这种方法只要给出合适的势能, 就能对整个生长过程进行模拟.

邻晶面上的分子束外延是最近几年的一个新领域, 用其可生长侧向超晶格, 得到量子线结构, 因此正引起了广泛的注意. 本文将应用 Monte Carlo 方法模拟不对称迁移速率条件下的生长过程, 并深入讨论邻晶面上的成核过程.

## 2 基本模型

本文运用的模型是典型的 SOS 模型<sup>[1-3]</sup>. 为了简化讨论的问题, 假设所用的衬底是简单立方晶格, 并假定生长中没有空位产生. 由于 GaAs 外延生长是在富 As 条件下进行的 (通常 As 和 Ga 的束流比不小于 10), 所以 As 在表面上的迁移以及 As 和 Ga 的反应过程生长影响很小, 这样可以认为 GaAs 的外延生长只由 Ga 原子决定, 又由于 Ga 原子在富 As 条件下的吸附系数接近 1, 故在 SOS 模型中只考虑 Ga 在表面的沉积、迁移和成核过程. 整个生长过程可分为两个步骤, 第一是 Ga 原子在表面上的沉积, 这个过程与实际生长中 Ga 的束流有关, 并直接决定了外延层的生长速度. 在计算中认为这是一个

随机过程,即每隔一定的时间, Ga 原子沉积在衬底表面的一个随机位置。第二是 Ga 原子在 GaAs 表面的迁移。这个迁移过程是讨论的重点,是成核生长的关键。

吸附 Ga 原子的迁移由其束缚能决定。束缚能包括两部分:表面势垒  $E_s$  和最近邻 Ga 原子之间的相互作用能  $E_n$ ,即  $E = E_s + nE_n$ ,其中  $n = 0-4$ ,实际上, Shiraishi<sup>[4]</sup> 研究表明,在 As 稳定的 GaAs (001) 面上 Ga 原子的迁移是各向异性的, Ga 原子沿  $[\bar{1}10]$  方向迁移的势垒比沿  $[110]$  方向约小 0.4eV, 即  $E_{s([\bar{1}10])} > E_{s([110])}$ , 在(001)面的邻晶面外延中,势垒  $E$  还与倾斜角的大小和方向有关,分析表明,  $E_{[\bar{1}10]} > E_{[110]}$ ,但这个值远小于由  $E_s$  的各向异性导致的不对称。综合以上考虑,表面势垒可由  $E_s$  的平均值  $E_0$  和不对称度  $\Delta_E$  决定,其中  $\Delta_E = E_{[\bar{1}10]}/E_{[110]}$ 。

根据束缚能可由 Arrhenius 关系确定 Ga 原子的表面迁移率为

$$K(E, T) = K_0 \exp(-E/k_B T) \quad (1)$$

其中  $K_0$  是表面原子的振动频率,  $T$  是衬底的温度,  $E$  是 Ga 原子由吸附位置向最近邻位置迁移必须克服的势垒,但只考虑  $E_s$  中的平均值  $E_0$ ,  $k_B$  是 Boltzmann 常数。假设吸附的 Ga 原子已和衬底热平衡, Ga 原子在表面上的振动可由二维谐振子的振动来近似,则 Ga 原子的振动频率  $K_0$  可表示为:  $K_0 = 2k_B T/h$ , 其中  $h$  是 Planck 常数。为考虑  $E_s$  中的不对称部分,可定义相应的迁移率的不对称度  $\Delta_K$  为

$$\Delta_K = K_{[\bar{1}10]}/K_{[110]}. \quad (2)$$

根据有关研究结果,平均势垒  $E_0$  可取为 1.3 eV,  $E_n$  为 0.5 eV, 但当  $E_n$  约为 0.5 eV 时,两个 Ga 原子碰撞结合后再迁移的概率远小于单原子迁移的概率,因此下面的模拟计算中假定两个 Ga 原子碰撞结合后不再迁移,从而成为一个成核中心。根据 Shiraishi 计算所得的结果,  $\Delta_E$  约为 0.4 eV,因此  $\Delta_K$  约为 100,但考虑到邻晶面上的情况,本文将对  $\Delta_K$  从 0 至 50 进行全面的讨论。一个需要指出的问题是,本文的模拟计算都与  $E_0$  这个参数有关,但根据公式(1),如果  $E_0$  发生变化,只需把温度进行相应的变化,就能得到所有同样的结论,因为最终决定生长过程的是迁移速率  $K$  与 Ga 原子速流  $J$  的比值。

为了深入探讨 Ga 迁移率的各向异性对生长过程的影响,本文将模拟的衬底是两种不同的邻晶面,它们是倾斜角都为  $1.4^\circ$  的  $120 \times 120$  的立方晶格,即水平方向每 40 个格点有一个台阶。其中第一类是向  $[110]$  方向倾斜的,称其为 A 类邻晶面,第二类是向  $[\bar{1}10]$  方向倾斜的,称其为 B 类邻晶面, Ga 原子的束流决定了生长速度,本文把生长速度取为实际生长中的典型值 1 层/秒。考虑到模拟计算的随机性,本文的全部结果都是 5 次独立的模拟结果的平均值。

### 3 结果与讨论

邻晶面上的 Ga 原子的成核方式有两种。第一种是台阶面上的生长。由于邻晶面上有若干自然的台阶面,当 Ga 原子迁移到该位置时, Ga 原子就结合在这个位置。把这种生长方式称为台阶成核模式。第二是两个或两个以上未成核的 Ga 原子在表面上任意位置的碰撞结合,由此产生一个成核中心,然后其他 Ga 原子再与其结合生长,把这种生长方式称为二维成核模式。在邻晶面上,这两类成核模式是互相竞争的。

Ga 原子在衬底表面上的无规扩散过程还可由扩散系数表示  $D$ , 对  $A$  类邻晶面 Ga 原子沿台阶方向的扩散系数可以表示为

$$D_A = [(1/2)/(1 + \Delta_K)] a^2 K_0 \exp(-E_s/k_B T); \quad (3)$$

对  $B$  类邻晶面 Ga 原子沿台阶方向的扩散系数可以表示为

$$D_B = [(\Delta_K/2)/(1 + \Delta_K)] a^2 K_0 \exp(-E_s/k_B T), \quad (4)$$

其中  $1/2$  表示有两个等价的扩散方向,  $a$  是最近邻的原子间隔, 根据生长速度为 1 层/秒的生长条件, 可以由  $L = \sqrt{2Dt}$  得到每个 Ga 原子到达衬底的时间间隔  $t$  内的扩散长度。为了讨论的方便, 下文把最近邻间隔  $a$  取为 1。

决定生长模式的首要因素是温度, 随着温度的增加, Ga 原子的扩散长度  $L$  增加, Ga 原子与台阶面的结合概率也增大, 因此高温下台阶成核原子的数目一定大于低温下的数目, 这种情况对  $A$  类和  $B$  类邻晶面都一样, 因此本文只就  $\Delta_K = 1$  进行了模拟, 它对两类邻晶面都成立。图 1 是 820—980 K 温度范围的模拟生长过程, 其中横坐标是台阶面上已被原子占据的归一化格点数, 纵坐标是台阶成核原子数与成核原子总数的比值, 它清楚地显示了上述温度特性, 同时也在同一个层的生长过程中也显示了不同的特性, 在生长的初期, 二维成核中心还未形成, 故台阶成核原子占的比例较大, 但随着二维成核中心的形成和增大, 二维成核原子数增加, 相应的台阶成核原子数减小, 但当成核原子数达到总数的 70% 左右时, 台阶成核原子数又迅速增大, 这是由二维成核生长的原子与台阶结合造成的。为了进一步讨论问题的方便, 取一个生长周期内台阶成核原子数比值的最小值  $X_0$  作为标志。

其次成核模式和不对称度  $\Delta_K$  有着密切的关系, 并且对  $A$  类和  $B$  类邻晶面有着显著的差别。

在  $A$  类邻晶面上, 随着不对称度增大(即  $\Delta_K$  的减小), 由(3)式可以看出, 沿台阶方向的扩散系数减小, 相应的扩散长度也减小, 与台阶面的结合概率也减小, 所以台阶成核原子数将随着不对称度的增大而减小。图 2 是生长温度为 800 和 900 K 时  $A$  类邻晶面的模拟生长结果, 其中  $\Delta_K$  分别为 2 和 50, 其它参量同图 1。结果证实了上述论点, 如果以  $x_0$  等于 0.5 为两类成核模式的分界线, 则  $\Delta_K$  等于 2 时的转变温度为 1050 K, 因此在我们研

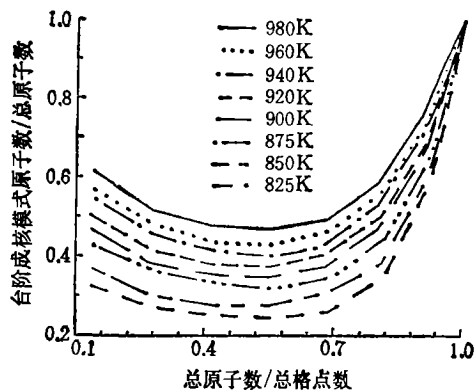


图 1 不同温度下的 MBE 生长过程  $\Delta_K = 1$

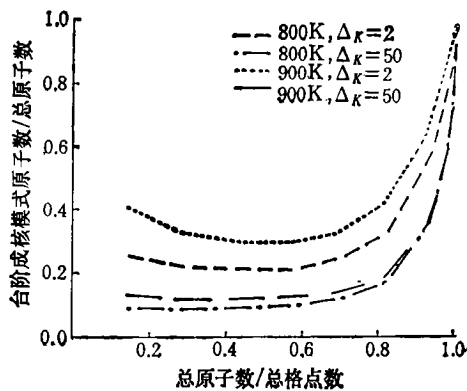


图 2 生长温度分别为 800 和 900 K 时  $A$  类邻晶面上的生长结果

究的温度范围内  $A$  类邻晶面上都是二维成核模式。

在  $B$  类邻晶面上,随着不对称度增大(即  $\Delta_k$  的增大),由(3)式可以看出,沿台阶方向的扩散系数增大,相应的扩散长度也增大,与台阶面的结合概率也增大,所以台阶成核原子数将随着不对称度的增大而增大。图 3 是  $B$  类邻晶面上的模拟生长过程,其中生长温度分别是 800 和 900 K,  $\Delta_k$  分别为 2 和 50。结果表明,在较低的温度下台阶成核数占少数,但随着温度的增加,由于 Ga 迁移率不对称性的存在,沿台阶方向的迁移迅速增大,使台阶成核的原子数迅速增加,外延生长从二维成核模式向台阶成核模式转变。图 4 显示不同的温度和  $\Delta_k$  时这两类成核模式的转变,二者的分界线是由最小台阶成核原子数占总数的 50% 定义的,其中的高温侧为台阶成核模式,低温侧为二维成核模式。由图 4 可以看出,随  $\Delta_k$  的增大,转变温度  $T$  下降。

邻晶面上外延生长的另一重要特点是饱和特性的存在,前面已经指出,温度增加时台阶成核原子的百分数也将单调地增加,但未成核 Ga 原子在表面上的运动方向是随机的,因此即使 Ga 原子的扩散长度已大于台阶的宽度,但还是存在部分原子在平面上结合,因

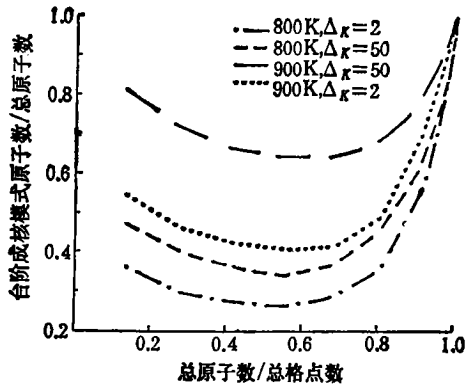


图 3 生长温度分别为 800 和 900 K 时  $B$  类邻晶面上的生长结果

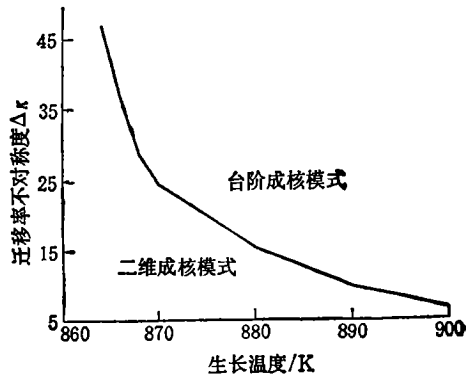


图 4  $B$  类邻晶面上的两种成核模式,其中高温侧是台阶成核模式,低温侧是二维成核模式

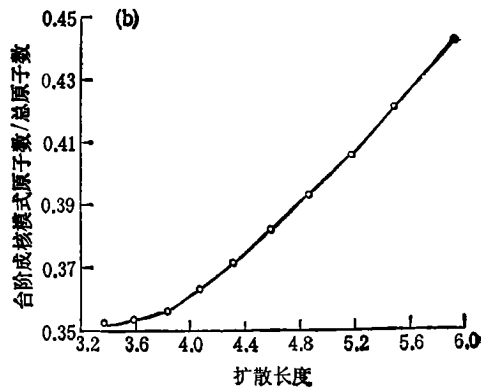
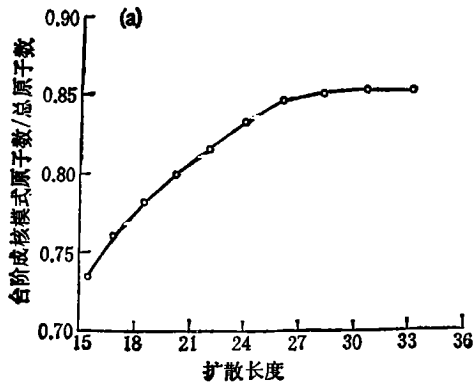


图 5 高温下 (a) 和低温下 (b)  $B$  类邻晶面上的饱和现象

此存在高温端台阶成核原子数的饱和。另一方面由于台阶的存在,使原子在台阶面上的结合概率大于在其它位置的概率。图5是B类邻晶面的高温和低温下的模拟结果,两者的 $\Delta x$ 都是50,为了与扩散性质相比,并具有更普遍的意义,图5中以扩散长度为横坐标,实际的温度分别为790—825 K和930—1020 K。由图5可以看出,当扩散长度 $L$ 小于4时,一个生长周期中台阶成核原子比值的最小值 $x_0$ 出现低温端的饱和,当 $L$ 大于20时,开始出现高温端的饱和。饱和出现的位置是与扩散长度密切相关的,高温端的饱和现象出现在扩散长度大于台阶宽度的二分之一时,这个结果与Ohta等<sup>[5]</sup>的实验结果基本一致。它表明这时大多数自由原子已能和台阶碰撞,但由于运动的无规性,总有部分原子不能与台阶结合。在第二节中已假设两个Ga原子结合后不再分开,而成为一个成核中心,如果考虑到两个Ga原子结合后还有分开的概率,则饱和值将增大,这个问题在高温下将更严重。

## 4 结 论

本文运用 Monte Carlo 方法模拟了A类和B类邻晶面上分子束外延生长的成核过程。计算结果表明,在邻晶面上存在两种成核模式,这两种模式是互相竞争的过程。在A类邻晶面上,二维成核模式始终起主要作用,但在B类邻晶面上,低温下二维成核模式起主要作用,而高温下则是台阶成核模式起主要作用。另外在高温端和低温端多存在饱和现象,分别显示了原子的随机运动和台阶面的影响。

[1] Shaun Clarke *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **63** (1988), 2272.

[2] T. Shitara *et al.*, *Phys. Rev.*, **46** (1992), 6815.

[3] T. Shitara *et al.*, *Phys. Rev.*, **46**(1992), 6825.

[4] Kenji Shiraiishi, *Appl. Phys. Lett.*, **60**(1992), 1363.

[5] Ohta *et al.*, *J. Crystal Growth*, **95**(1989), 71.

## MONTE CARLO SIMULATION OF MBE GROWTH ON GaAs VICINAL SURFACE

MAO HUI-BING LU WEI MA ZHAO-HUI LIU XING-QUAN SHEN XUE-CHU

(State Key Laboratory for Infrared Physics, Academia Sinica, Shanghai 200083)

(Received 3 July 1993)

### ABSTRACT

In this paper the MBE nucleation mode on vicinal GaAs(001) surface is simulated by Monte Carlo method. The results show that on A-surface the 2-dimension nucleation mode is dominant at 800—1000K. On B-surface the 2-dimension nucleation mode is dominant at low temperatures, but at high temperatures the step flow mode is dominant. And at both high and low temperature, there is a saturation phenomenon.

PACC: 6855; 6845; 8160C; 6630L