

关于 RHEED 振荡技术优化 GaAs (110) 量子阱生长的研究*

刘林生^{1)B)} 刘 肃¹⁾ 王文新^{2)†} 赵宏鸣²⁾ 刘宝利²⁾ 蒋中伟²⁾
高汉超²⁾ 王 佳²⁾ 黄庆安^{1)B)} 陈 弘²⁾ 周均铭²⁾

1) 兰州大学物理科学与技术学院, 兰州 730000)

2) 中国科学院物理研究所凝聚态国家实验室, 北京 100080)

3) 东南大学 MEMS 教育部重点实验室, 南京 210096)

(2007 年 3 月 8 日收到, 2007 年 3 月 29 日收到修改稿)

在 GaAs (110) 衬底上生长的半导体材料有诸多优良性能, 使得在非极性 GaAs (110) 衬底上获得高质量各类异质结材料, 成为近年来分子束外延生长关注的课题. 考虑 GaAs (110) 表面是 Ga 和 As 共面, 最佳生长温度窗口很小; 反射式高能电子衍射的 (1×1) 再构图案对生长温度和 V/III 束流比不敏感, 难于通过观察再构图案的变化, 准确地找到最佳生长条件. 作者在制备 GaAs (110) 量子阱过程中, 观察到反射式高能电子衍射强度振荡呈现出的单双周期变化, 这意味着不同工艺条件下, 在 GaAs (110) 衬底上量子阱有单层和双层两种生长模式. 透射电子显微镜和室温光致荧光光谱测量结果表明: 在双层生长模式下量子阱样品光学性能较差, 而在单层生长模式下量子阱光学性能较好, 但是界面会变粗糙. 利用这一特点, 我们采用反射式高能电子衍射强度振荡技术, 找到了一种在 GaAs (110) 衬底上生长高质量量子阱的可行方法.

关键词: 反射高能电子衍射, 量子阱, 分子束外延

PACC: 6114R, 6322, 6855

1. 引 言

近年来, 用分子束外延 (MBE) 技术在 GaAs (110) 取向衬底上生长 III-V 族半导体材料引起了人们很大的兴趣^[1-3]. 在 GaAs (110) 衬底上生长的材料有着优良的电学和光学性能. 研究表明, 在 GaAs (110) 衬底上生长的 (In, Ga)As/GaAs 超晶格的超格子平面上会产生很大的横向极化场^[4]. 在 GaAs (110) 衬底上生长的波导结构比在其他取向衬底上生长的非线性二次谐波效应要强得多^[5]. 另外, 在自旋电子学领域, 近年也发现在 GaAs (110) 衬底上生长的 AlGaAs/GaAs 量子阱内的电子有非常长的自旋弛豫时间, 比在 GaAs (100) 衬底上生长的长了 1—2 个数量级^[6-9].

尽管在 GaAs (110) 衬底上生长的半导体材料有这么多优良的性能, 但到目前为止国内外对在 GaAs

(110) 衬底上的材料生长的研究仍很少. 这主要是由于在非极性的 (110) 表面上, Ga 和 As 共面, 表面的悬挂键数目比极性 (100) 表面的悬挂键数目少, As 在 (110) 面很难吸附, 这使得在非极性的 (110) 表面上生长材料要比在极性的 (100) 面上生长材料要困难许多^[10, 11].

反射式高能电子衍射 (reflection high energy electron diffraction, RHEED) 是一种原位检测外延层表面原子结构和平整度的有效手段^[12], 主要用它来研究表面再构、粗糙度、台阶和小面无序情况. GaAs (110) 表面上最佳生长温度窗口很小, 只有 10—20°C^[13]. 在这个表面上生长 GaAs 时, RHEED 的 (1×1) 再构图案对生长温度和 V/III 束流比不敏感, 因而不能通过观察再构图案的变化准确地找到最佳生长条件.

本文利用在 GaAs (110) 衬底上生长 GaAs 时, 不同生长条件下 RHEED 强度振荡发生单双周期变化

* 中国科学院知识创新工程, 国家自然科学基金 (批准号: J0504030) 和甘肃省自然科学基金 (批准号: 3ZS051-A25-034) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: wxwang@aphy.iphy.ac.cn

这一特点,找到了一种在 GaAs(110)衬底上生长高质量量子阱材料的简便方法.

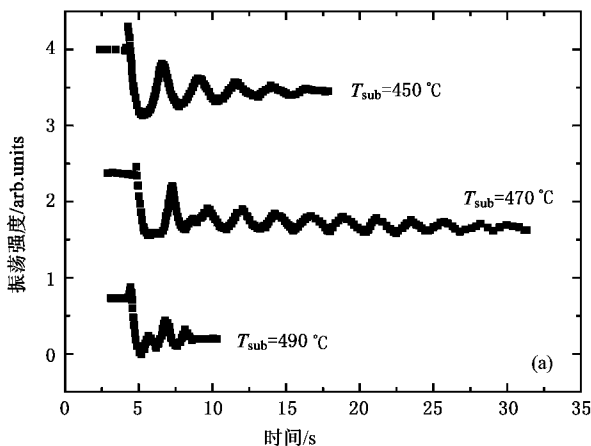
2. 实 验

本实验所有的样品是用 VG 公司 V80H 型 MBE 设备生长的.衬底为 AXI(American Xtal Technology)公司生产的 GaAs(110)取向半绝缘衬底.固态 As 源裂解区温度为 850℃,使样品在 As₂ 模式下生长.衬底的脱氧化膜温度为 580℃(经红外测温仪校正),与 GaAs(100)衬底脱氧化膜温度相当.当 RHEED 屏幕上呈现清晰的(1×1)再构图案时,表明衬底脱氧化膜完全脱去,接着我们在屏幕上选取 [110]衍射方向的镜面反射线,利用 RHEED 强度振荡的计算机采集系统,通过高品质 CCD 摄像头记录了不同衬底温度和 V/III 束流等效压强比(由衬底加热器处测温测得)下的 RHEED 强度振荡曲线.

根据振荡结果,本文选择了 V/III(As₂/Ga)束流等效压强比为 50,生长量子阱区时生长温度分别为 450, 470 和 490℃,垒区的生长温度为 530℃,生长了三个多量子阱样品(阱宽 8 nm, Al_{0.4}Ga_{0.6}As 垒宽 27 nm).本文采用离子减薄法制备透射电子显微镜(TEM)样品,使用 JEM 2011 型 TEM 操作电压 200 kV 对样品的截面进行了观察.同时还利用 Accent 公司 RPM2000 型快速光致荧光(PL)光谱仪,对样品进行了室温 PL 谱的测量.

3. 结果与讨论

图 1 是用 MBE 方法生长 GaAs(110)层时,



[110]衍射方向镜面反射点的 RHEED 强度振荡曲线.其中图 1(a)为固定 As₂/Ga 束流等效压强比 50,衬底温度 T_{sub} 为 450 470 和 490℃时的 RHEED 振荡曲线.从图 1(a)中可以看出,随着衬底温度的提高,RHEED 振荡曲线的振荡频率发生了变化,衬底温度为 490℃时振荡频率是衬底温度 450℃时的 2 倍,衬底温度为 470℃时在振荡开始的两个周期,出现了衬底温度为 490℃时的振荡频率成分. Ga 源的温度是固定的, GaAs 的生长速度是不变的,出现两种 RHEED 振荡周期,分别对应着双层生长模式和单层生长模式^[14]. RHEED 振荡周期的个数,衬底温度为 470℃时最多,衬底温度为 450℃时次之,衬底温度为 490℃时振荡衰减很快,只观测到 3 个周期.这主要是由于在固定 As₂/Ga 束流等效压强比时,温度升高,衬底表面 As 脱附增加,提供与 Ga 结合的有效 As 量减少,处于富 Ga 状态,表面变得粗糙^[15].图 1(b)为衬底温度为 470℃时,不同的 As₂/Ga 束流等效压强比下的 RHEED 振荡曲线.从图 1(b)中可以看出,随着 As₂/Ga 束流等效压强比的降低,RHEED 振荡曲线的振荡频率发生了变化,As₂/Ga 束流等效压强比为 35 时的振荡频率是 As₂/Ga 束流等效压强比为 70 时的 2 倍,As₂/Ga 束流等效压强比为 50 时在振荡开始的两个周期,出现了 As₂/Ga 束流等效压强比为 35 时的振荡频率成分.与图 1(a)相同,不同的 As₂/Ga 束流等效压强比下出现了 GaAs 的单层和双层生长模式. As₂/Ga 束流等效压强比为 35 时,振荡衰减很快,主要是由于 As₂/Ga 束流等效压强比降低,提供与 Ga 结合的有效 As 量减少,处于富 Ga 状

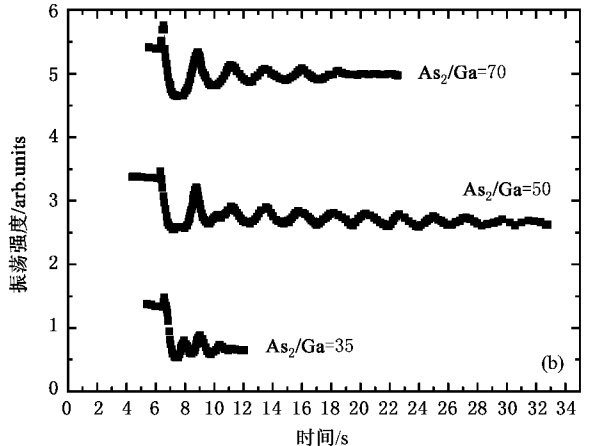


图 1 生长 GaAs(110)外延层时 [110]衍射方向镜面反射点的 RHEED 强度振荡曲线 (a)固定 As₂/Ga 束流等效压强比为 50,衬底温度 T_{sub} 为 450 470 和 490℃ (b)衬底温度 470℃时,不同的 As₂/Ga 束流等效压强比下的 RHEED 振荡曲线(通过改变 As 束流来改变 As₂/Ga 束流等效压强比)

态,表面变得粗糙^[15].

此外,从图 1 中还可以看出,在临界条件时(470℃或者束流比为 50 时)RHEED 强度振荡的周期数明显比双层生长时多.这个结果与文献[15]中观察到的相似.随着生长温度的降低或 As_2/Ga 束流比的提高,在生长表面 As 的有效布局增加,使得 Ga 的迁移长度缩短,双层生长开始向多层生长转变,表面变得粗糙,RHEED 强度振荡周期数减少.Holmes 等人研究表明,如果生长温度很低或 As_2/Ga 束流比很高,RHEED 强度振荡会消失^[14].

由图 1 可以看出,GaAs 在(110)表面上生长时,单层和双层生长模式发生转化的温度范围($\sim 20^\circ C$)和 As_2/Ga 束流等效压强比范围(~ 15)都很窄,在双层生长模式(或单双模式临界情况)下生长的表面比较平整.

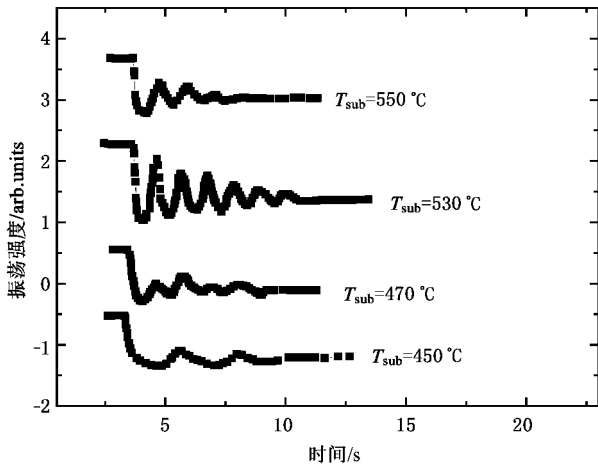


图 2 在 GaAs(110)衬底上生长 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As(110)$ 外延层时,固定 As_2/Ga 束流等效压强比为 50,衬底温度 T_{sub} 分别为 450、470、530 和 550℃时 $[1\bar{1}0]$ 衍射方向镜面反射点处的 RHEED 振荡曲线

图 2 是在 GaAs(110)衬底上生长 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As(110)$ 外延层时, As_2/Ga 束流等效压强比为 50 时,衬底温度分别为 450、470、530 和 550℃时 $[1\bar{1}0]$ 衍射方向镜面反射点处的 RHEED 振荡曲线.从图中可以看出,振荡情形与生长 GaAs 时相似,随着衬底温度的提高,RHEED 振荡曲线的振荡频率发生了变化,衬底温度为 530 和 550℃时振荡频率是衬底温度为 450℃时的 2 倍,衬底温度为 470℃时振荡包含两种振荡频率成分.RHEED 振荡周期的个数,衬底温度 530℃时最多,衬底温度 550℃时振荡衰减很快,只观测到 3 个周期.这主要是由于在固定 As_2/Ga 束流等效压强比时,温度升高,衬底表面 As 脱附增加,提供与 Ga 和 Al 结合的有效 As 量减少,V 族元素过量,表面变得粗糙.对比图 1 和 2 可以看出,生长 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As$ 和 GaAs 时,振荡由双周期到单周期转变的温度相同,生长 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As$ 时,振荡周期数最多的不在单双周期转变的临界温度,而是偏高约 60℃,这是因为 Al 在表面比较难迁移,提高温度使得 Al 在表面更好的迁移,表面变得更平整^[16].低于临界温度时,跟图 1 讨论相似,表面 As 的有效布局增加,V 族元素迁移降低,表面变得粗糙,振荡周期数下降.

图 3 是固定 As_2/Ga 束流等效压强比为 50 不变,不同量子阱区生长温度下的 GaAs(110)衬底上生长的 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs$ 多量子阱样品横截面的 TEM 照片.图 3(a)和(b)是生长温度为 450 和 470℃时的样品横截面的 TEM 照片,从图中可以看出,量子阱界面比较平整,视场中没有位错.图 3(c)是生长温度为 490℃时样品横截面的 TEM 照片,从图中看出量子阱界面不平整,图中与衬底的界面是平整的,说明量子阱截面不平整是量子阱区生长粗糙引起的.

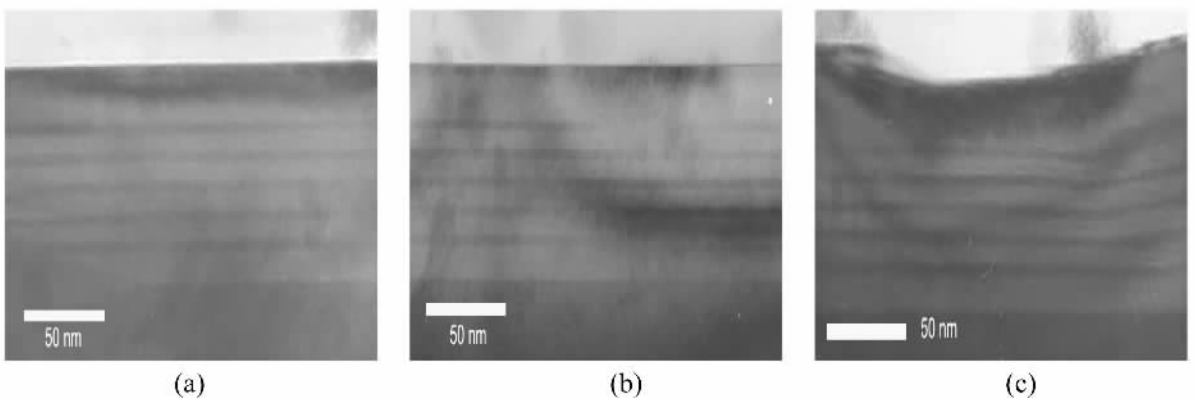


图 3 固定 As_2/Ga 束流等效压强比为 50 不变,不同量子阱区生长温度下的 GaAs(110)衬底上生长的 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs$ 多量子阱样品横截面的 TEM 照片 (a) 生长温度 450℃;(b) 生长温度 470℃;(c) 生长温度 490℃

将图 3 与图 1(a)对照可以看出, GaAs 在(110)表面上生长时,在双层生长模式(或单双模式临界情况)下生长表面比较平整.近年来, Holmes 等人对(110)表面上生长 GaAs 外延层进行研究的結果证明了这一结论^[14].

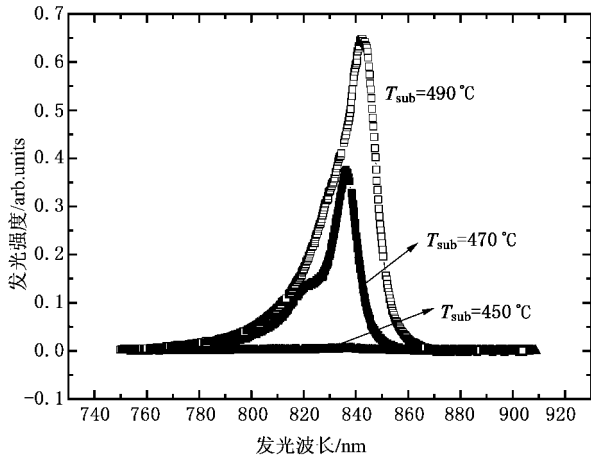


图 4 固定 As_2/Ga 束流等效压强比为 50,不同衬底温度 T_{sub} 下生长的 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs$ (110)多量子阱的室温 PL 光谱的测试曲线

图 4 是不同生长温度下生长的 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As/GaAs$ (110)多量子阱的室温 PL 光谱的测试曲线.从图 4 中可以看出,随着衬底温度 T_{sub} 的提高,多量子阱样品的发光强度跟着提高.当衬底温度为 450 °C 时,生长的多量子阱样品发光很弱,主要是由于温度降低,衬底表面 As 脱附减少,提供与 Ga 结合的有效 As 量增加,生长材料中的深能级中心和杂质都会随着增加^[17],发光就会大大减弱.衬底温度提高,提供

与 Ga 结合的有效 As 量减少,由 As 引入的杂质和深能级中心减少,样品的发光强度增加.从图 4 中还可以看出,衬底温度为 490 °C 时的发光峰位相对于衬底温度为 470 °C 时有红移并且发光峰半高宽(FWHM)较宽.由图 3 可知,这归因于衬底温度为 490 °C 时量子阱样品的界面粗糙,电子弛豫到阱比较宽的地方与空穴复合发光,造成了发光峰位红移.由于界面粗糙,发光峰的 FWHM 也较宽.当衬底温度为 470 °C 时,发光主峰(导带电子基态到价态第一重空穴能级 $e1-hh1$ 跃迁)短波长侧有一个明显的肩膀(822 nm)对应于量子阱中导带电子基态到价态第一轻空穴能级 $e1-lh1$ 跃迁,表明该条件下生长的量子阱样品质量很好.

综上所述可以看出,量子阱样品在双层生长模式下光学性能很差,在单层生长模式下光学性能比较好,但是量子阱界面变得粗糙.

4. 结 论

GaAs 在(110)表面上生长时,单层和双层生长模式发生转化的温度范围($\sim 20^\circ C$)和 As_2/Ga 束流等效压强比范围(~ 15)都很窄,在双层生长模式(或单双模式临界情况)下生长表面比较平整.本文的研究表明,量子阱样品在双层生长模式下光学性能很差,在单层生长模式下光学性能比较好,但是量子阱界面会变粗糙.我们采用 RHEED 振荡的技术可以很容易地找到生长光学性能和界面比较好的量子阱材料的最佳生长条件.

[1] Yang G, Santos P V 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 4327 (in Chinese)
[杨光, Santos P V 2006 物理学报 **55** 4327]

[2] Cheng W Q, Liu S 1993 *Acta Phys. Sin.* **42** 1529 (in Chinese)
[程文芹,刘双 1993 物理学报 **42** 1529]

[3] Lan T, Xu F Y 1989 *Acta Phys. Sin.* **38** 357 (in Chinese) [蓝田,徐飞岳 1989 物理学报 **38** 357]

[4] Smith D L, Mailhot C 1990 *Rev. Mod. Phys.* **62** 173

[5] Vakhshoori D, Fischer R J, Hong M, Sivco D L, Zyzdzik G J, Chu G S, Cho A Y 1991 *Appl. Phys. Lett.* **59** 896

[6] Ohno Y, Terauchi R, Adachi T, Matsukura F, Ohno H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4196

[7] Kong L G, Liu X Y, Du G, Wang Y, Kang J F, Han R Q 2006 *Chin. Phys.* **15** 654

[8] Adachi T, Ohno Y, Matsukura F, Ohno H 2001 *Physica E* **10** 36

[9] Zutic I, Fabian J, Das Sarma S 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323

[10] Zhou J M, Huang Y, Li Y K, Jia Y W 1987 *J. Crystal Growth* **81** 221

[11] Pfeiffer L, West K W, Stormer H L, Eisenstein J P, Baldwin K W, Gershoni D, Spector J 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 1697

[12] Bobel F G, Moiler H 1994 *J. Vac. Sci. Technol. B* **12** 1207

[13] Sørensen C B, Gislason H, Hvam J M 1997 *J. Crystal Growth* **175** 1097

[14] Holmes D M, Tok E S, Sudijono J L, Jones T S, Joyce B A 1998 *J. Crystal Growth* **192** 33

[15] Holmes D M, Belk J G, Sudijono J L, Neave J H, Jones T S, Joyce B A 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2848

[16] Saito J, Kondo K. 1990 *J. Vac. Sci. Technol. B* **8** 1264

[17] Kohrbruck R, Munnix S, Bimber D, Larkins E C, Harris J S 1989 *Appl. Phys. Lett.* **54** 623

Optimization of GaAs(110) quantum well material growth technology by reflection high energy electron diffraction^{*}

Liu Lin-Sheng^{1,2,3)} Liu Su¹⁾ Wang Wen-Xin^{2)†} Zhao Hong-Ming²⁾ Liu Bao-Li²⁾ Jiang Zhong-Wei²⁾
Gao Han-Chao²⁾ Wang Jia²⁾ Huang Qing-An^{1,3)} Chen Hong²⁾ Zhou Jun-Ming²⁾

¹⁾ School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

²⁾ Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

³⁾ MEMS Ministry of Education Key Laboratory, Southeast University, Nanjing 210096, China)

(Received 8 March 2007 ; revised manuscript received 29 March 2007)

Abstract

Recently, there is an increasing interest in the molecular beam epitaxy growth of various high quality heterostructures on the nonpolar GaAs(110) surface for the unique properties which arise from this unconventional orientation. Considering that the Ga and As atoms are coplanar in GaAs(110) surface, the range of best growth temperature is small. It is difficult to find the best growth condition by observing the change of reflection high energy electron diffraction(RHEED) pattern because this kind of(1×1) RHEED pattern is insensitive to growth temperature and V/III beam equivalent pressure ratio. In the process of the GaAs(110) quantum well growth, we observed the single and double period variation of oscillation of RHEED intensity. This implies that there are two growth modes(monolayer-by-monolayer and bilayer-by-bilayer) of GaAs quantum wells growing on the GaAs(110) substrate under different growth conditions. The measurements of transmission electron microscopy and photoluminescence at room temperature showed that the quantum wells have very bad optical property under the bilayer-by-bilayer growth mode, while the quantum wells grown under the monolayer-by-monolayer growth mode have much better optical property with rough interfaces. By means of RHEED oscillations, high quality quantum wells have been grown on GaAs(110) substrate under optimized growth conditions.

Keywords : reflection high energy electron diffraction, quantum well, molecular beam epitaxy

PACC : 6114R, 6322, 6855

^{*} Project supported by the Knowledge Innovation Project of the Chinese Academy of Sciences and the National Natural Science Foundation of China(Grant No.10504030) and the Natural Science Foundation of Gansu Province, China(Grant No.3ZS051-A25-034).

[†] Corresponding author. E-mail: wxwang@aphy.iphy.ac.cn