

MOLEKULASUGÁR-EPITAXIÁS NANOSTRUKTÚRÁK ELŐÁLLÍTÁSÁNAK MŰSZAKI FELTÉTELEI

TECHNICAL CONDITIONS FOR THE FORMATION OF MOLECULAR-BEAM-EPITAXIAL NANOSTRUCTURES

Nemcsics Ákos^{1,2}, Réti István², Tényi V. Gusztáv³, Kucsera Péter³, Tóth László⁴,
Harmat Péter^{2,4}, Amadou Mieville^{1,2}, Csutorás Márton^{1,3}, Kupás-Deák Béla¹,
Sándor Tamás³, Bozsik Judit^{1,3}

ABSTRACT

The technique of molecular-beam-epitaxy is the most refined for making semiconductor nanostructures. This technique makes it possible the in-situ observation of the nanostructures, growing in a self-organising manner. The experimental setup described in this paper is the only one presently in this country. In this paper we describe our recent development work carried out on the setup, namely the sample heating arrangement, the control of the molecule sources and the computerised data collection and processing of the results from the in situ observations. For in situ monitoring a high energy electron beam is used. The data processing on the distribution of the reflected and diffracted beams and their intensities is being done with the help of a image processing software.

1. BEVEZETÉS

A nanostruktúrák alkalmazása forradalmasította többek között az anyagtudományt és az elektronikát. Példaként vehetjük a napelemeket. Egy hagyományos napelem hatásfoka 5 és 20% közötti értéket vehet fel. A nanostruktúrák segítségével a hatásfok lényegesen emelhető. A GaAs alapú napelemek nanostruktúrák alkalmazásával igen nagy hatásfokot is elérhetnek. A többszörös kvantum- völgyeket tartalmazó napelemek (multi-quantum-well solar cell MQW-SC) hatásfoka meghaladja a 40%-ot, míg a kvantumpontokat tartalmazó napelem (intermediate-band-quantum-dot solar cell IBQD-SC) hatásfoka a 60%-ot is meghaladja [1,2].

Az említett GaAs-alapú napelem-struktúrák megvalósításának feltétele a kontrollált félvezető-kristályrétegek és nanoszerkezetek növesztése. Ezek a néhány atomsoros rétegek és más nanoméretű objektumok elsősorban

molekulasugár epitaxiával (molecular-beam-epitaxy, MBE) valósíthatók meg [3]. Az MBE rétegnövesztés a nagy szabadúthossz és a réteg tisztasága miatt ultranagy vákuumban (ultra-high-vacuum, UHV) történik [4,5]. Az MBE kamrában a végvákuum legalább 10–10 Torr. A félvezető hordozó - a megfelelő migrációs úthossz beállítása miatt - szabályozottan fűthető mintatartón helyezkedik el. A leválási hőmérséklet III-V-anyagok esetében általában 200–550 °C között változhat. A mintatartóra irányulnak a molekulaforrások, az ún. Knudsen-cellák, melyek hőmérsékletének változtatásával és a felettük elhelyezett blendék mozgatásával a molekulafluxus változtatható. Az egyéb epitaxiás eljáráshoz képest az MBE eljárás több előnnyel is rendelkezik. Az alacsony leválasztási hőmérséklet nem segíti a hibahely generálódást a rétegben és csökkenti a rétegek közötti diffúzió lehetőségét. Valamint kontrollált, alacsony növesztési sebesség biztosítható (0.1–1 atomsor/sec). Az anyag összetétele és adalékolása élesen változtatható a Knudsen-cellák feletti blendék nyitásával-zárásával.

A vákuumtérben történő növesztés in-situ vizsgálati technika alkalmazását teszi lehetővé. A legelterjedtebb és az egyik legsokoldalúbb módszer a nagyenergiájú sűrűlőszögű elektrondiffrakció (reflection high-energy electron diffraction RHEED). A felülettel a 10–30 keV közötti energiájú elektronsugár 1–3° közötti besési szögben találkozik. A felületről távozó, azzal kölcsönható elektronsugár térbeli eloszlása és annak időbeli intenzitásváltozása igen sok információt hordoz a felületről [6]. Segítségével meghatározható a felület rekonstrukciója, morfológiája, a növekedés sebessége stb. [7]. A szabályos, rétegről rétegre történő növekedés során a megfigyelhető elektron-intenzitás oszcillál, melynek periódusa általános esetben pontosan egy monorétegnek felel meg. Az oszcilláció kezdőfázisa anyagtól, növesztési paraméterektől és a geometriától stb. függ. Ezek hatásának megfigyelése az oszcilláció kiértékelése szempontjából alapvető fontosságú feladat [8]. A RHEED alkalmas továbbá a fejlődő nanostruktúrák kinetikájának megfigyelésére is [9].

¹ Óbudai Egyetem, Mikroelektronikai és Technológiai Intézet, nemcsics.akos@kvk.uni-obuda.hu

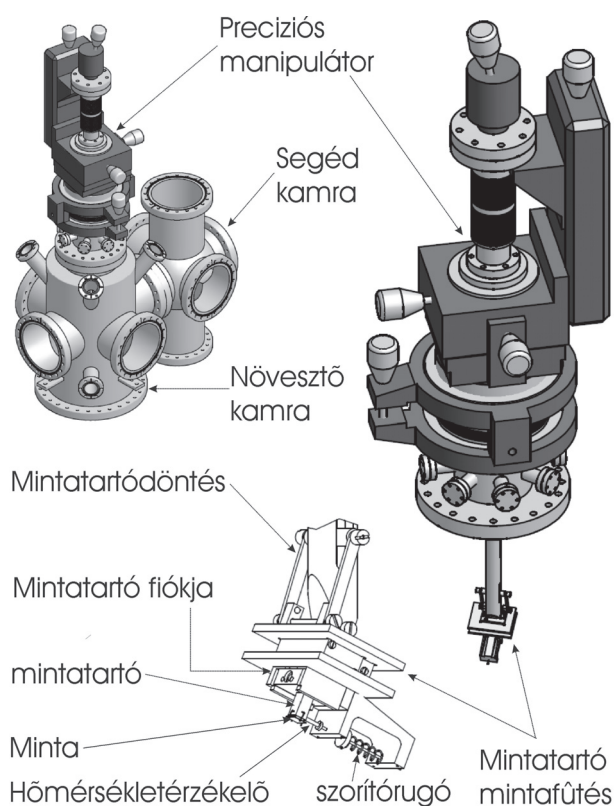
² Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Kutatóintézet

³ Óbudai Egyetem, Műszer és Automatika Intézet

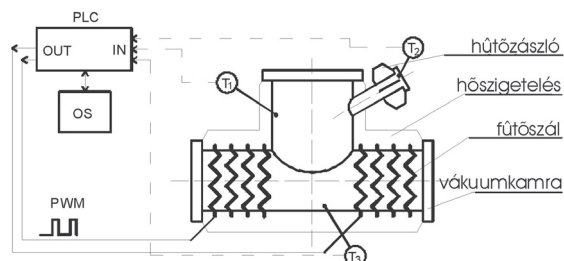
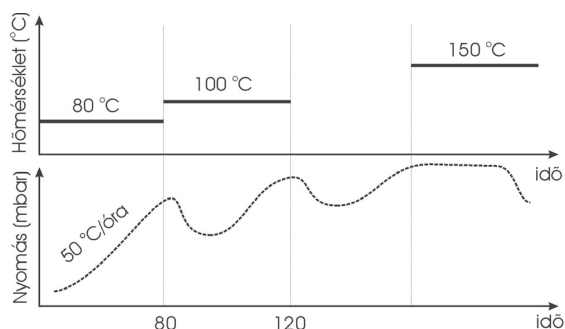
⁴ ANTE Innovatív Technológiák Kft.

2. A TECHNIKAI HÁTTÉR

Az MBE berendezésünk három kamrából áll. A főkamrában történik a kristálynövesztés (1. ábra). Ehhez a kamrához közvetlenül csatlakozik egy segédkamra, ahová a turbómolekuláris- (Balzers TPU 520) és az iongetter szivattyú (Varian Diode) csatlakozik. Az iongetter szivattyút egy vákuumszeppel tudjuk leválasztani a főkamráról. Az MBE berendezés része még egy zsilipkamra is, melybe egyszerre több mintát tehetünk, azért hogy egymás után több növesztést végezhesünk az UHV rendszer megnyitása nélkül. A zsilipkamra lezívását egy kisebb turbómolekuláris szivattyú (Pfeiffer HiPace 80) végzi. A zsilipkamra szintén leválasztható egy vákuumszeppel a főkamra vákuumterétől. A mintát a vákuumtérben mágneses mozgató rudazattal továbbítjuk egyik kamrából a másikba.



1. ábra Az MBE kamra főbb egységei és a precíziós manipulátor

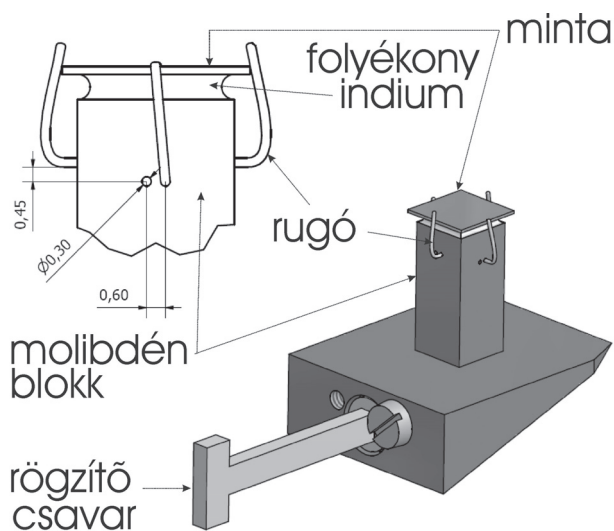


2. ábra A PLC vezérelt kamrakifűtő rendszer blokkvázlata

A főkamra alján négy molekulaforrás (As, Ga, In, Al) helyezkedik el. A cellák hőmérsékletének és a fölöttük lévő blendék mozgását PLC (Programmable Logical Controller) alapú vezérlés végzi, mely a megadott alapjel és a maximalizált felfűtési sebesség (50 °C/óra) figyelembevételével impulzusmodulációval történik (lásd még később). A részegységek közötti mechanikai feszültség és a rezgésátvezetés elkerülése végett, a csatlakozást csőmembránnal oldottuk meg. A kamrán hidegkatódos vákuummérők és a kifűtéshez fűtőszálak és hőérzékelők helyezkednek el. Az in-situ növekedésvizsgálat egy 12 keV-os RHEED berendezéssel (Riber CER 606 – ACE 1010) történik. A berendezésen végzett fejlesztések egyrészt vezérlési feladatok (a kamra kifűtése, mintafűtés, a knudscellák fűtése, blendék mozgása), másrészt képfeldolgozási feladatok (RHEED kiértékelés), harmadrészt pedig finommechanikai feladatok (mintarögzítés, mintatartó továbbítás, léptetőmotorok és forgóátvezetők kapcsolata) voltak. A kiértékelés és a szabályozás technológiai visszacsatolást tesz lehetővé, amely pl. szuperrácsok készítését, vagy kritikus rétegvastagság alatti struktúrák létrehozását teszi lehetővé (lásd később). Az UHV feltételek eléréséhez a kamrákat ki kell fűteni, ennek blokkvázlata a 2. ábrán látható.

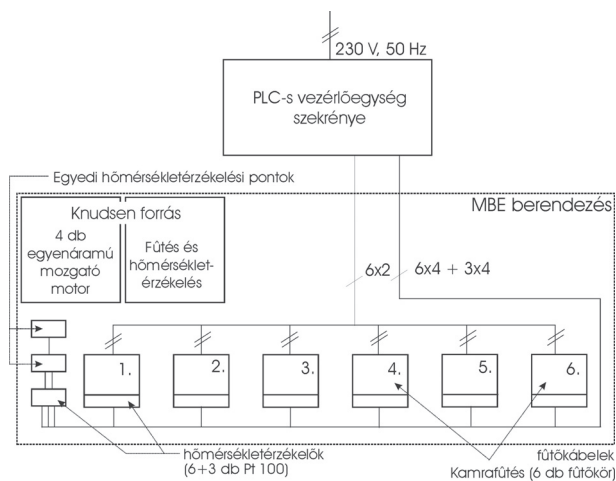
3. A NÖVEKEDÉS HŐMÉRSÉKLET-FÜGGÉSE

Az MBE kamrában a növekedési módok elsősorban a mintahőmérséklettel szabályozhatók. Ezért a minta felfogása, hőátadás a minta és a mintatartó között elsőrendű fontosságú. A mintafűtés lehet ellenállásfűtés vagy elektronsugaras megoldású.



3. ábra A mintatartó az általunk fejlesztett mintarögzítéssel

Az ipari alkalmazásoknál rugóval fogatják fel a tartóra a mintát. A jó reprodukció ellenére az abszolút mintahőmérséklet e megoldásnál kérdéses, valamint akadályozza a RHEED megfigyelést. (Ipari alkalmazások esetén ez nem jelent hátrányt, hiszen a RHEED szempontjából előnytelen forgó mintatartót használnak.) Ez kutatási célra kevésbé alkalmas megoldás. Mi korábban indiummal való felragasztást használtunk. Ennek előnye a jó hőátadás, de a minta könnyen leeshet a tartóról. A megoldás a két módszer ötvözése lenne [10]. Kifejlesztünk egy hibrid megoldást, mely az indiummal való ragasztás és a rugós rögzítés előnyeit egyesíti (3. ábra).

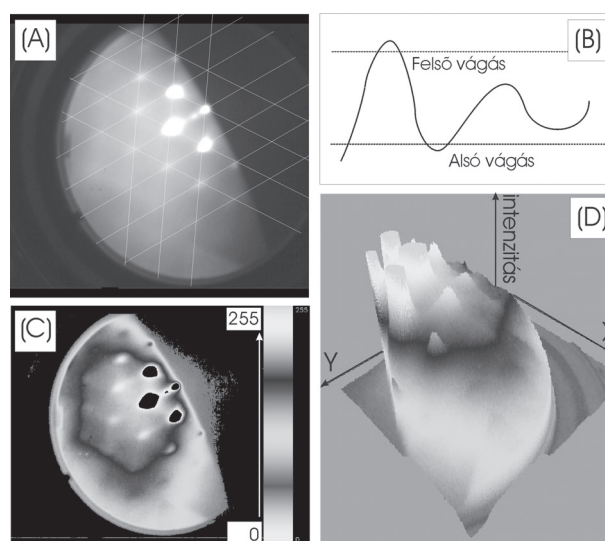


4. ábra. A rendszert működtető PLC vezérlés blokkvázlata

A leválasztás történhet magas [7] ill. alacsony hőmérsékleten [11]. A mintatartó, a cellák hőmérséklete a blendék mozgatása PLC (Siemens Simatic S7PLC) alapú vezérléssel történik. A PLC programozása és a grafikus felületek megjelenítése egy PC állomáson történik [12]. A rendszer blokkvázlata a 4. ábrán látható.

4. A RHEED KIÉRTÉKELÉS

Mint fentebb említettük a RHEED nagyon sok információt hordoz a növekedő struktúráról és annak kinetikájáról. Szuperrácsok készítésénél feltétel a megfelelő tilossávkülönbség. Ez a legtöbb esetben rácsállandóeltérést is jelent. Ennek tipikus példája a GaAs/InGaAs heteroátmenet. A kritikus rétegvastagság az a vastagság, melynél az átmenet relaxál. A kritikus rétegvastagság nemcsak az összetételtől, de a technológiai paraméterektől is függ. A rétegnövesztés közben a fent említett relaxációt szeretnénk elkerülni. Ezt a vastagságot eddig ex-situ röntgendiffrakciós méréssel határozták meg. Az általunk bevezetett módszerrel ezt a kritikus rétegvastagságot in-situ módon az oszcilláció lecsengéséből tudjuk meghatározni, ill. megszakítani a növekedést a relaxáció bekövetkezése előtt [13-15]. Ehhez több műszaki megoldást kellett kifejlesztenünk.



5. ábra Az in-situ RHEED kiértékelés képfeldolgozással történik; (A) az elektron diffrakciós kép; (B) egy „line scan” (C) hamisszínes kép a vágás után (D) ugyanez 3D-ben

A pontos méréshez a fluoreszcens ernyőnek és azt azt figyelő CCD kamerának a nonlinearitását figyelembe kell vennünk. Ezen anomáliák kikerülése az elektronsugár Faraday cellával történő direkt mérésével lehetséges [16]. Az oszcilláció periódus ideje függ a réteg összetételétől, növekedési sebességtől stb. A növesztés során a különböző anyagoknak különböző technológiai feltételeket kell beállítani (mintahőmérséklet, molekulafluxusok). Ez rendszerint más felületi rekonstrukciót is jelent, mint a kiindulási felületé. A megfigyelt intenzitás pont többnyire elmozdul. Ezen pont elmozdulásának követésére készítettünk képfeldolgozó programot [17].

A nanostruktúrák növekedése során összetett felületi intenzitáskép jön létre. Ezen nanostruktúrák alaptípusa a feszültségindukált kvantumpont pl. InAs/GaAs esetben. Egy újfajta eljárás a csepp-epitaxiás módszer, mellyel

pl. GaAs/AlGaAs rendszerben nemcsak kvantumpontra, hanem kvantum gyűrűre is előállítható [9]. Ahhoz, hogy a növekedés kinetikáját feltérképezhessük, ismernünk kell az egyes intenzitásképek metamorfózisát. Ezek szétválasztása a normál fluoreszcens ernyő által nem lehetséges.

Egy képfeldolgozó programot fejlesztettünk ki a RHEED kiértékelésére [17]. A program indításakor lehetőségünk van választani in-situ (CCD kamera) vagy archivált videófelvétel feldolgozására. A fentebb említett adott pontbeli vizsgálat esetén a foltkereső algoritmus indítása után a gradiens változás alapján kiválasztódnak a potenciális foltok, melyek manuális kiválasztásával tudjuk engedélyezni egy adott folt követését. Így vizsgálni tudjuk a követett folt időbeli intenzitásváltozását. A teljes pattern vizsgálatára új hamisszínes domborzati-struktúrát mutató képfeldolgozást fejlesztettünk ki (5. ábra) [17]. Ennek segítségével a patternnek átalakulását tudjuk elemezni. Fourier transzformáció (fast Fourier transformation, FFT) segítségével további paraméterek vizsgálata válik lehetővé.

5. ÖSSZEFOGLALÁS

Az MBE a legkifinomultabb technika félvezető nanostruktúrák előállítására. Ez a technológia lehetővé teszi az önszerveződő módon növekedő nanostruktúrák in-situ megfigyelését. A dolgozatban tárgyalt berendezés jelenleg az egyetlen ilyen berendezés az országban. Jelen munkában bemutatjuk a berendezésen végzett fejlesztéseinket, nevezetesen a mintafűtés és a molekulaforrások vezérlését, valamint az in-situ vizsgálat számítógépes kiértékelését. Az in situ vizsgálat nagy-energiás elektrosugárral történik. A vissza reflektált-diffraktált sugár eloszlását és annak intenzitását képfeldolgozó számítógépes program segítségével vizsgáljuk.

6. SUMMARY

The MBE is the best technique to produce low-dimensional and other nano structures. In this paper, our recent developments carried out on the setup were described. They are the following: the out-heating system of the UHV chambers, the heat control of the sample holder and the molecule sources and the movement control of the shutters. A computerised data collection system and imageprocessing software was developed for the in-situ observations and evaluation of the growth process.

7. KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Jelen munka az NKTH-OTKA CNK77843, továbbá az NKTH-Innocsekkplusz pályázati program és az Óbudai

Egyetem Kandó Kálmán Villamosmérnöki Kara szakképzési alpjának támogatásával valósult meg.

8. SZAKIRODALOM

- [1] NEMCSICS Á.: A napelem és fejlesztési perspektívái, Akadémiai Kiadó, Budapest, 2001
- [2] NEMCSICS Á.: Új irányok a napelemes technológiában; Elektronikai Technológia, Mikrotechnika 48/1, p 39-45, 2009
- [3] M. A. HERMAN, H. SITTER: Molecular Beam Epitaxy – Fundamentals and Current Status; Springer-Verlag, Berlin (1989)
- [4] J. F. O'HANLON: User's Guide to Vacuum Technology; Wiley-Interscience, New York (1989)
- [5] N. S. HARRIS: Modern Vacuum Practice; McGraw-Hill Book Comp., London (2007)
- [6] NEMCSICS Á.: Growth Information Carried by Reflection High-Energy Electron Diffraction; in Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and Frontiers Eds. B. A. Joyce, P. C. Kelires, A. G. Naumovets, D. D. Vvedensky, NATO Sci. Ser. II. Mat., Phys. and Chem. – Vol 190 Springer Dodrecht p 221-237, 2005
- [7] NEMCSICS Á., OLDE J., GEYER M., SCHNURPFEIL R., MANZKE R., SKIBOWSKI M.: MBE Growth of Strained In_xGa_{1-x}As on GaAs(001); Phys. Stat. Sol. A 155, p 427-437, 1996
- [8] NEMCSICS Á.: The initial phase shift phenomenon of RHEED oscillations, J. Crystal Growth 217, p 223-227, 2000
- [9] NEMCSICS Á., HEYN CH., STEMMANN A., SCHRAMM A., WELSCH H., HANSEN W.: The RHEED tracking of the droplet epitaxial growth quantum dot and ring structures; Mat. Sci. Eng. B 165, p 118-121, 2009
- [10] A. OHATKE: Surface reconstruction on GaAs(001); Surf. Sci. Rep. 63 (2008) 295-327
- [11] NEMCSICS Á.: Behaviour of RHEED oscillation during LT-GaAs Growth; Acta Politech. Hung. 4/2, p 117-123, 2007
- [12] KUCSERA P., TÉNYI G., NEMCSICS Á., RÉTI I.: Control of the MBE equipment for growth of nano structures; Proc. of Int. Symp. on Int. System and Inform. Sept. 10-11, Subotica Serbia, 559-661, 2010
- [13] NEMCSICS Á.: Correlation between the Critical Layer Thickness and the Decay Time Constant of RHEED Oscillations in Strained InGaAs/GaAs Structures, Thin Solid Films 367, p 302-305, 2000
- [14] NEMCSICS Á.: Valuing of the Critical Layer Thickness from the Deading Time Constant of RHEED Oscillation in the Case of In_xGa_{1-x}As/GaAs Heterojunction; Appl. Surf. Sci. 190, p 294-297, 2002
- [15] NEMCSICS Á., RIESZ F.: Influence of Lattice Mismatch and Growth Rate on the Decay of RHEED Oscillation in the Case of InGaAs/GaAs Growth; Crystal Res. and Technol. 36, p 8-10, 2001
- [16] NEMCSICS Á., OLDE J., GEYER M., RESFÖLT K.: Remark to the Intensity Measurement of RHEED; Instr. and Exp. Techn. 48/5, p 679-682, 2005
- [17] NEMCSICS Á., CSUTORÁS M., TÉNYI G. SÁNDOR T.: Real Time RHEED evaluation with the help of imageprocessing; Proc. of Int. Symp. on Int. System and Inform. Sept. 10-11, Subotica, Serbia, p 631-633, 2010