

## 掃描穿隧顯微術對磊晶成長原子機制之探討

中央研究院物理研究所 黃英碩

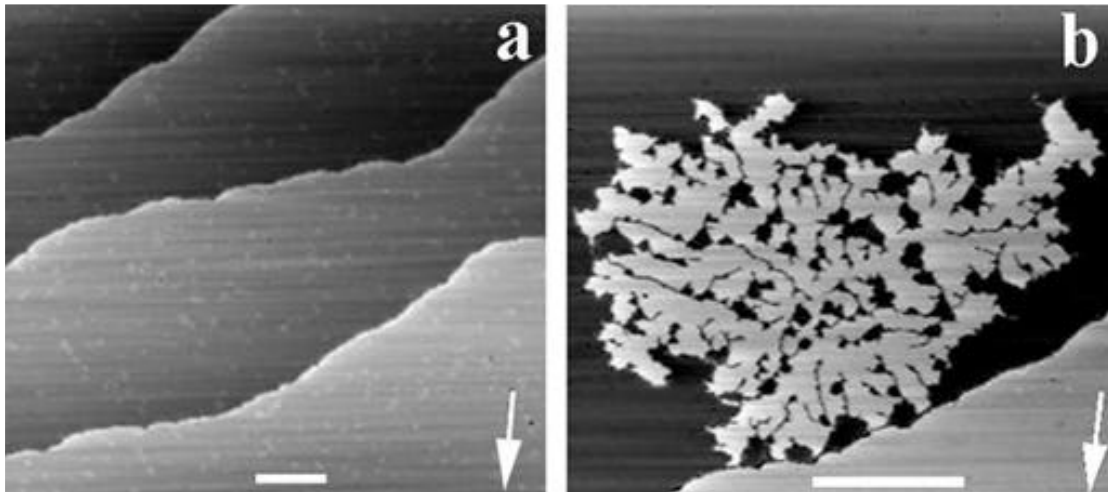
由於掃描穿隧顯微術(Scanning Tunneling Microscopy, STM)的引進，磊晶成長的研究進入一新境界，STM 具有原子級的解析能力，非常適合觀察磊晶成長過程的演變，這有助於我們去瞭解磊晶成長過程中的各種原子機制。我們用 STM 研究表面催化成長 (surfactant-mediated epitaxy, SME)。SME 是於 1989 年由 IBM 的一研究群首先提出，它採取分子束磊晶 (molecular beam epitaxy) 的方式蒸鍍元素，但不同的是成長薄膜前需在基板 (substrate) 上鍍約一原子層的某元素 (稱為 surfactant)，SME 的一個特色是在成長過程，surfactant 會一直浮在最上層，而不被埋進薄膜中。近十年，很多人嘗試各種 surfactant 在異質介面的成長，SME 能有效地抑制三維島的出現，而達到所謂的層狀成長 (layer-by-layer growth)，這對很多先進元件、特殊薄膜結構的製作相當重要，但是 SME 的物理機制一直是個謎，目前大多數人認為 surfactant 大大降低表面原子的擴散，也認為因此而抑制三維島狀成長。

當原子蒸鍍到基板表面上，如果溫度不是太低，原子在表面會到處移動，這些原子可能相聚而成核 (nucleation)，核 (nucleus) 是最小的穩定二維島，一旦形成，它極可能藉著更多原子吸附到其邊緣而成長 (growth) 為更大的二維島。對於磊晶成長初期現象的描述，目前已有一套發展多年的成核理論 (nucleation theory)，在此我稱其為傳統成核理論。一些金屬蒸鍍到金屬表面上的成長，已證實此成核理論可以給予很好的描述，現今此理論被廣泛採用來解釋各種系統的磊晶成長現象，甚至推算出原子在表面的擴散常數，但很少人質疑傳統成核理論是否適用於他們的系統。有人認為 surfactant 會降低原子的擴散就是依據傳統成核理論，但 SME 是否適合用此理論描述則沒人探討。

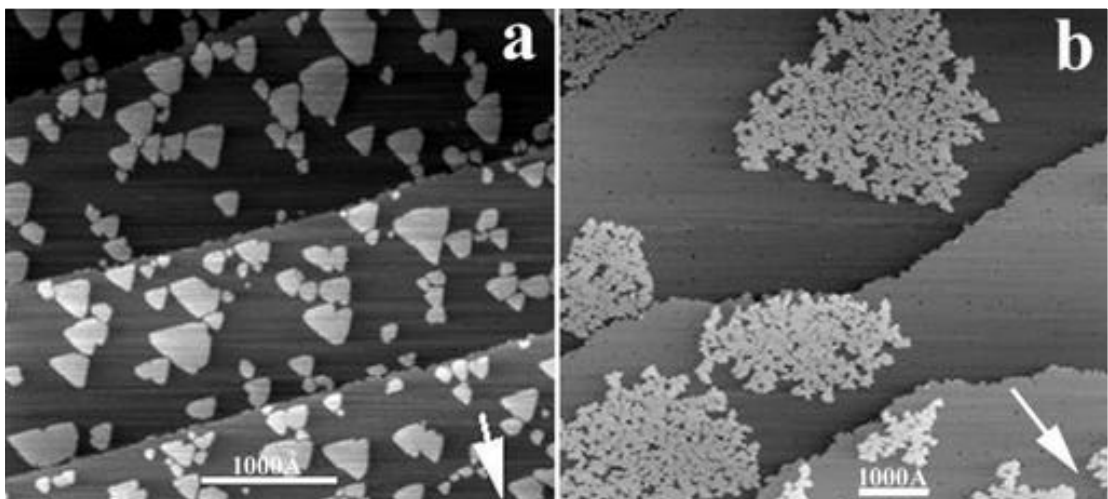
我們用單層鉛作為 surfactant，在矽 (111) 表面長鍍薄膜，我們發現在室溫下就可長成品質很好的薄膜 [1]，而且在 200 以下，三維島不會出現。若沒有這層鉛，鍍薄膜需要在 450 以上的溫度才可在矽 (111) 表面成長，而且約 4 原子層後即開始以三維島狀成長。我們做了一

系列的實驗來探討此系統最初期的二維鍍島如何成核 (nucleation) 及成長 (growth)，結果顯示鉛層反而大大增快鍍原子的表面擴散，我們發現此系統在二維鍍島密度、大小及形狀的演變完全違背傳統成核理論的描述及過去對成核成長的認知。在室溫下，在蒸鍍初期，成核及成長被鉛層所抑制，直到鍍蒸鍍量達到一起始值才出現二維島 (單層鉛覆蓋的鍍島)，而且在剛超過起始值時，鍍島很少、很大，顯示鍍原子在鉛覆蓋的表面上有長距離的移動。當鍍的蒸鍍量超過起始值更多時，鍍島的數量先急速上升 (可達 3 個數量級) 而後飽合 [2]，有趣的是鍍島的平均面積先變小再逐漸變大。一般而言，二維島的平均面積會隨蒸鍍量增加而變大。另外，過去的理論及實驗顯示，低溫及高蒸鍍通量 (deposition flux) 時，容易出現碎形 (fractal) 二維島；反之，高溫及低蒸鍍通量時，二維島的形狀較圓滑 (compact)。在我們的系統，二維鍍島的形狀變化正好相反，在低溫、高蒸鍍通量時較易出現圓滑的二維島，高溫或低蒸鍍通量則出現碎形島 [3]。而且加溫可促使成核、成長的發生，顯示成核及成長皆需越過一能障 (energy barrier)；一般認為，降溫可促使核的出現，此發現又與傳統認知剛好相反。

我們認為有兩大主要機制---擴散 (diffusion) 及反應 (reaction)---在主宰磊晶成長初期的成核成長現象。傳統成核理論只適用於一極限狀況，即是擴散受限 (diffusion-limited)，因其假設原子擴散到階梯 (step edge) 時，立即吸附上去，無需克服任何能障，表面擴散是決定成核成長最重要的原子機制，很多金屬系統屬於此條件，因此可以適用。而我們的系統剛好屬於另一極限，擴散很快，瓶頸步驟是成核及成長時鍍與鉛置換的過程，此置換反應需克服一能障，其遠大於鍍擴散的能障，所以，此系統是反應受限 (reaction-limited)。目前尚無其它反應受限系統被報導，理論也缺乏，大家不清楚反應對成核成長有何影響，因此反應一直被忽視，我們藉著對反應受限系統的研究來探討反應對成核成長的效應。我們相信半導體磊晶成長雖不一定是反應受限的系統，但反應的角色



圖一 (a)室溫下，在鍍蒸量略小於起始值時沒有二維島；(b)加溫可促使成核的發生而出現二維島



圖二 (a)在低溫蒸鍍時，二維島較圓滑；(b)在高溫蒸鍍時，則出現二維碎形島

常比擴散重要，很多人仍用傳統成核理論來詮釋實驗結果，推導出擴散常數等，這是有很大的問題。另外，我們的結果也顯示反應時牽涉的可能是原子團而非單獨原子，目前理論只考慮單獨原子的行為也是很有問題的，我們感覺到要更深入瞭解如半導體等共價鍵結材料 (covalently bonded materials) 的磊晶成長，有必要先探討原子團在表面的擴散及反應的行為。值得一提的是此實驗是由自製 STM 所完成。

為了對磊晶成長初期成核成長機制有更深入的瞭解及給予正確的描述，我們認為有必要發展一更周延、完整的成核理論，此理論應適

當地考慮擴散及反應的角色，並考慮原子團的行為。另外，我們對鍍在鉛覆蓋矽(111)所提出的成長機制，也可能有助於釐清 SME 成長機制的謎。

#### 參考文獻

- [1] I.-S. Hwang, T.-C. Chang, and T.T. Tsong, *Surface Science*, **410**, L741 (1998).
- [2] I.-S. Hwang, T.-C. Chang, and T.T. Tsong, *Physical Review Letters*, **80**, 4229 (1998).
- [3] T.-C. Chang, I.-S. Hwang, and T.T. Tsong, *Physical Review Letters*, **83**, 1191 (1999).