

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ РОСТА В ПРОЦЕССЕ МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИИ ГЕТЕРОПЕРЕХОДА $A^{III}B^{III}C^V/A^{III}C^V$ С ЛАТЕРАЛЬНО НЕОДНОРОДНЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ КОМПОНЕНТ А И В

© Н.В.Песков, Б.К.Медведев*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

*Институт радиотехники и электроники Российской академии наук,
103907 Москва, Россия

(Получена 29 ноября 1994 г. Принята к печати 27 октября 1995 г.)

Представлены результаты компьютерного моделирования процесса эпитаксиального роста гетероперехода типа $A_x^{III}B_{1-x}^{III}C^V/A^{III}C^V$ на вицинальной грани (001). При определенных условиях в области гетероперехода наблюдается латеральное периодическое распределение компонент А и В.

1. Введение

Молекулярно-лучевая эпитаксия (МЛЭ) является одним из основных современных методов выращивания полупроводниковых кристаллических пленок со сложной микроструктурой [1]. Важность МЛЭ для прогресса твердотельной электроники стимулирует активное экспериментальное и теоретическое изучение этого метода на протяжении последних тридцати лет. Однако в настоящее время нет достаточно полной теории МЛЭ. Трудности создания такой теории обусловлены существенно неравновесным характером процесса роста и необходимостью учета многих факторов, влияющих на механизм роста.

Экспериментальные исследования МЛЭ, начатые в 60-годах и продолжающиеся до настоящего времени, служат основой для разработки теоретических моделей МЛЭ. Эти теоретические модели можно разделить на две группы — аналитические и компьютерные. Аналитические модели развиваются в основном по двум направлениям. Первое направление, которое начинается с работы [2], связано с выводом и изучением кинетического уравнения для плотности слоя адатомов на поверхности кристалла. Это уравнение описывает процессы адсорбции, десорбции, диффузии адатомов, зарождение и рост островков. Как правило, эти процессы рассматриваются в пределах одного

атомного слоя на поверхности кубического кристалла. В рамках этого направления изучались, в частности, условия устойчивого роста на висящих гранях [3,4] и влияние барьера Швобеля на режим роста плоской грани [5]. В последнее время много внимания уделяется другому направлению в аналитическом изучении МЛЭ, связанному с выводом и анализом стохастического уравнения для эволюции поверхности кристалла в процессе роста [6-8]. В качестве основных задач здесь рассматриваются проверка гипотезы динамического подобия для шероховатости поверхности и определение класса универсальности, к которому принадлежит процесс МЛЭ.

Большое значение для понимания механизма роста полупроводников типа $A^{III}C^V$ в МЛЭ имеет компьютерное моделирование. Стохастические решеточные модели МЛЭ, основанные на динамическом методе Монте-Карло [9], имитируют микроскопические кинетические процессы в поверхностных узлах кристаллической решетки. В моделях учитываются кинетические процессы адсорбции, десорбции и миграции атомов и димеров. Процесс роста моделируется в виде случайной последовательности элементарных актов кинетических процессов. Большинство аналитических моделей МЛЭ можно получить из основного кинетического уравнения стохастической модели при различных дополнительных предположениях (см. например, [7]). Поэтому компьютерные модели можно использовать для проверки адекватности аналитических моделей. Компьютерные модели могут быть достаточно сложными и с их помощью можно исследовать явления, которые в настоящее время не поддаются аналитическому изучению. Основной задачей первых компьютерных моделей МЛЭ полупроводников типа $A^{III}C^V$ было получение качественного согласия между результатами моделирования и экспериментальными данными [10,11]. Получение такого согласия свидетельствует о правильном понимании основных элементов механизма роста, которые заложены в стохастическую модель. Значительным достижением компьютерного моделирования МЛЭ является получение количественного соответствия между плотностью поверхностных ступеней и интенсивностью зеркально отраженного пучка быстрых электронов (RHEED) в процессе роста слоев [12].

В данной работе мы с помощью компьютерной модели изучаем некоторые аспекты роста в МЛЭ гетероперехода типа $A^{III}B^{III}C^V/A^{III}C^V$. Для расчетов используется стохастическая модель, с помощью которой изучалась кинетика образования объемных вакансий [13] и роль поверхностной миграции [14] в процессе МЛЭ $A^{III}C^V$. Мы показываем, что при определенных условиях на начальной стадии роста слоев твердого раствора $A^{III}B^{III}C^V$ на висящей грани $A^{III}C^V$ (001) может формироваться неоднородное распределение атомов А и В в перпендикулярном ступеням направлении. Условия формирования неоднородного распределения сводятся к тому, что для атомов одного сорта реализуется режим роста «step flow», а для другого сорта — режим роста с образованием зародышей на террасах.

Латеральное разделение компонент твердого раствора реализуется при выращивании слоев AlGaAs на висящей грани по методу МЭЭ (Mobility Enhanced Epitaxy) [15]. Однако в этом методе механизм разделения Al и Ga по ширине террас иной. Здесь заполнение атомного монослоя элементов одной группы происходит при выключенном пото-

ке элементов другой группы, что значительно увеличивает интенсивность поверхностной миграции. В результате миграции в слое AlGa на террасах, параллельных оси [110], формируется неоднородное распределение Al и Ga. «Медленные» атомы Al группируются у внутренней границы террасы, а «быстрые» атомы Ga выталкиваются к внешней границе. Кинетика образования такого распределения изучалась с помощью стохастической модели [16].

В данной работе мы показываем возможность реализации другого механизма разделения атомов третьей группы в области гетероперехода. Предположим, что атомы A и B в твердом растворе $A^{III}B^{III}C^V$ имеют различную подвижность. Пусть условия роста — скорость роста, отношение плотностей потоков, температура подложки — подобраны так, что для быстрых атомов реализуется режим роста step flow, а для медленных — режим роста с образованием зародышей на террасах. Тогда на начальной стадии заполнения слоя AB быстрые атомы будут встраиваться в кристалл на границах террас у ступеней. Медленные атомы будут образовывать кластеры на поверхности террас, формируя зародыши нового слоя. Тем самым на начальной стадии заполнения слоя ABC будет формироваться неоднородное по ширине террасы распределение атомов A и B. Эта неоднородность сохранится до конца заполнения слоя.

2. Стохастическая модель МЛЭ

Основные принципы построения решеточных стохастических моделей МЛЭ полупроводников типа $A^{III}C^V$ хорошо известны (см. [10]). Поэтому здесь мы приводим лишь краткое описание основных элементов используемой для расчетов модели.

Процесс роста в модели представлен в виде марковской случайной последовательности элементарных актов основных кинетических процессов в приповерхностных узлах тетраэдральной кристаллической решетки. Модель включает в себя решеточные модели адсорбции атомов A, B и димеров C_2 , поверхностной миграции адатомов, десорбции димеров C_2 . Частоты элементарных актов всех процессов зависят от локальной конфигурации адатомов и атомов кристалла в окрестности узла, где происходит элементарный акт. Допустимыми считаются все конфигурации кроме тех, в которых есть атомы, не имеющие первых соседей. Коэффициент прилипания атомов A и B в модели близок к единице, коэффициент прилипания димеров C_2 зависит от поверхностной концентрации атомов третьей группы и изменяется от 0 до 1.

Миграция атомов моделируется посредством скачков в незанятый второй соседний узел в решетке. Частота скачков атома, расположенного в узле s , вычисляется по формуле Аррениуса:

$$R = R_0(T) \exp \left[- \left(\sum_{s' \in O_1} \varepsilon_1(s, s') + \sum_{s' \in O_2} \varepsilon_2(s, s') \right) / kT \right], \quad (1)$$

где O_1, O_2 — первая и вторая окрестности узла s ; $\varepsilon_1, \varepsilon_2$ — энергии связи между первыми и вторыми соседями; k — постоянная Больцмана; T — температура подложки. Миграция предполагается анизотропной, — энергия активации скачка на чистой C-поверхности (неперестроенной) поперек рядов атомов C (в направлении [110]) на 5% меньше энергии активации скачков вдоль рядов атомов C (в направлении

[110]) между слоями (001). Частота R удовлетворяет соотношению детального баланса [9] для канонического ансамбля с энергией, равной сумме энергий связи первых и вторых соседних атомов в решетке. Как правило, в МЛЭ частота скачков на несколько (3÷6) порядков больше частот других процессов, поэтому в интервалах времени между актами адсорбции и десорбции поверхностная миграция стремится установить в системе атомов термодинамическое равновесие при температуре T .

В последнее время активно обсуждается роль барьера Швобеля в механизме роста кристаллов в процессе МЛЭ [5,6,17]. Барьером Швобеля называют дополнительный энергетический барьер, который возникает при движении атома поперек ступени. От величины этого барьера зависит устойчивость роста кристалла [17]. В нашей модели барьер Швобеля явным образом не учитывается. Однако модель миграции устроена так, что при движении атома поперек ступени в ней возникает эффект, аналогичный эффекту Швобеля. Действительно, для идеальной ступени, направленной параллельно оси [110], ближайшие свободные узлы в подрешетке атомов третьей группы, один из которых лежит на вершине ступени, а другой — у ее основания, расположены на расстоянии четвертого соседа. Поэтому мигрирующий атом не может перейти с одной террасы на другую, если они разделены идеальной ступенью. Для того чтобы такой переход стал возможным, нужно, чтобы между террасами появились «мостики». В качестве таких мостиков выступают атомы C , адсорбированные на ступени и нависающие над нижней террасой. Таким образом, средняя частота скачков поперек ступеней меньше средней частоты скачков атома на террасе и зависит от многих факторов.

3. Результаты моделирования

Для проверки предположения о существовании режима роста $A_x^{III}B_{1-x}^{III}C^V$ на вицинальной грани кристалла $A^{III}C^V$, в котором компоненты A и B неоднородно распределены по ширине террасы, была проведена серия вычислительных экспериментов с использованием стохастической модели МЛЭ. Предполагалось, что элементы A и B различаются только подвижностью. Энергии связи между первыми и вторыми соседями в кристаллической решетке имели следующие значения: $\varepsilon_1(A, C) = \varepsilon_1(B, C) = 0.8 \text{ эВ}$, $\varepsilon_2(A, A) = \varepsilon_2(B, B) = 0.1 \text{ эВ}$, $\varepsilon_2(C, C) = 0.13 \text{ эВ}$, $\varepsilon_2(A, B) = 0.025 \text{ эВ}$. При таких значениях вычисленная по формуле (1) частота скачков атомов B на чистой C -поверхности $A^{III}C^V$ (001) в $\exp\{4[\varepsilon_2(A, A) - \varepsilon_2(A, B)]/kT\} \approx \exp(3482/T)$ раз больше частоты скачков атомов A на той же поверхности.

Всего было просчитано около сотни вариантов при разных значениях параметров, определяющих условия роста: скорости роста, отношения плотностей потоков, величины молярной доли x , температуры подложки. Во всех вариантах моделировался рост на фрагменте вицинальной грани размером 96×96 узлов при периодических граничных условиях. На фрагменте располагалось шесть ступеней высотой в два атомных монослоя (один слой AC), перпендикулярных «быстро» направлению миграции, которые разделяли фрагмент на шесть террас шириной в 16 атомных рядов. Из всех просчитанных вариантов

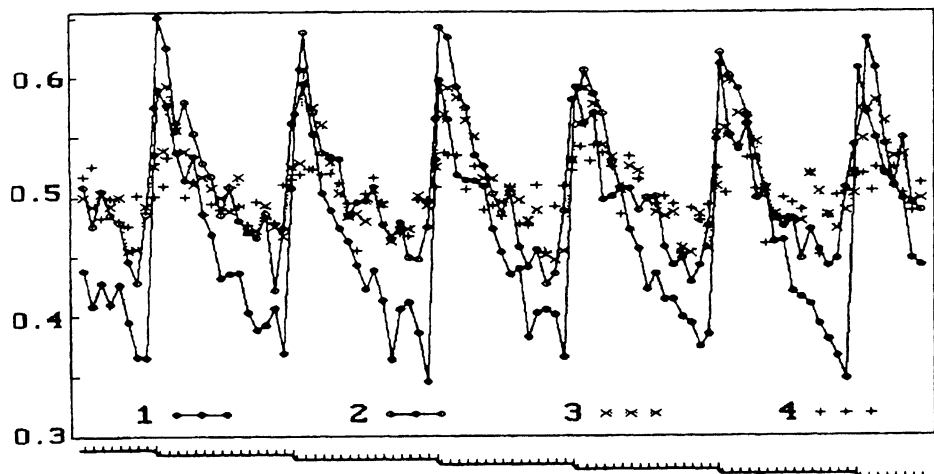


Рис. 1. Концентрация атомов В в первых четырех слоях ABC.

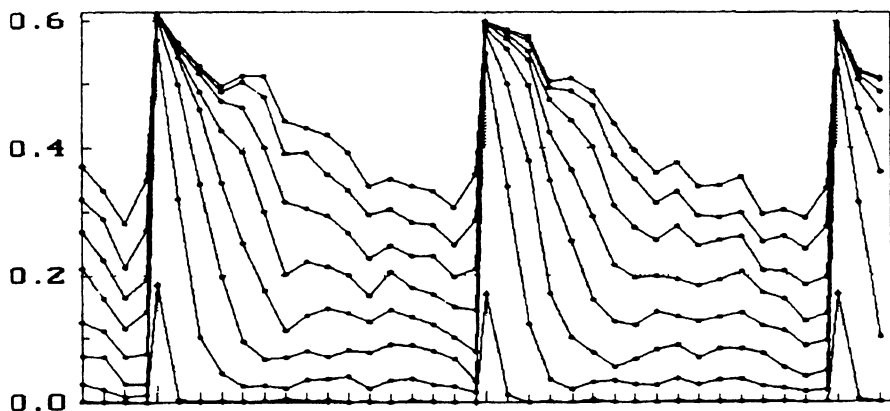


Рис. 2. Концентрация атомов В в первом слое ABC в различные моменты времени роста.

разделение атомов А и В по ширине террасы обнаруживалось лишь в нескольких вариантах с близкими условиями роста.

Наиболее заметное разделение компонент наблюдалось в варианте со скоростью роста, равной 0.5 слоя ABC в секунду, $x = 0.5$, отношении плотностей потоков, равном 4; температуре $T = 650$ К. При такой температуре частота скачков атома В на С-поверхности в 250 раз больше частоты скачков атома А. Для сглаживания флуктуаций этот вариант был просчитан 15 раз. На рис. 1 показаны графики концентрации атомов В в первых четырех слоях ABC в зависимости от координаты вдоль оси $[110]$. Концентрация в каждой точке определялась как доля атомов В в принадлежащем данному слою ряду атомов, параллельному оси $[1\bar{1}0]$. Под графиком на рис. 1 изображено сечение кристалла в начальный момент времени. Показаны ступени и террасы, штрихи на террасах изображают поверхностные атомы. Амплитуда колебаний концентрации в первом слое равна ≈ 0.2 , во втором несколько меньше и в третьем ≈ 0.1 . В четвертом слое более или менее регулярных колебаний не наблюдается.

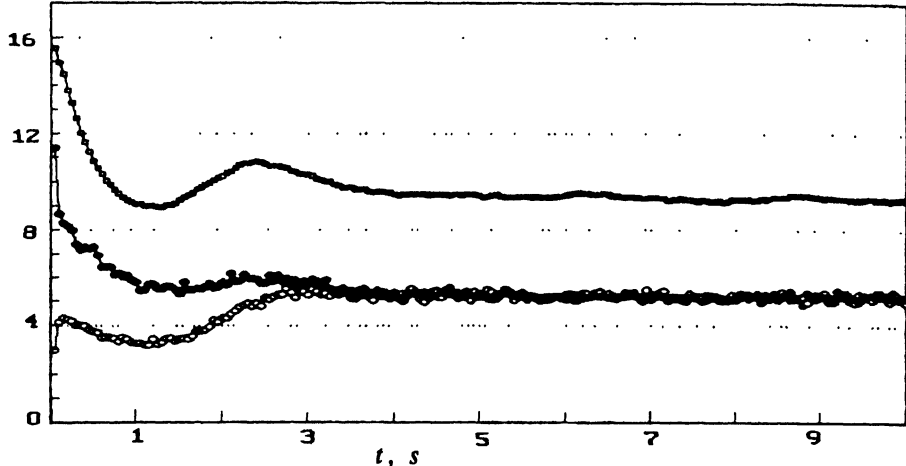


Рис. 3. Средняя длина пробега атомов А (○) и В (●) и средняя ширина террас (□) в направлении [110] в зависимости от времени t .

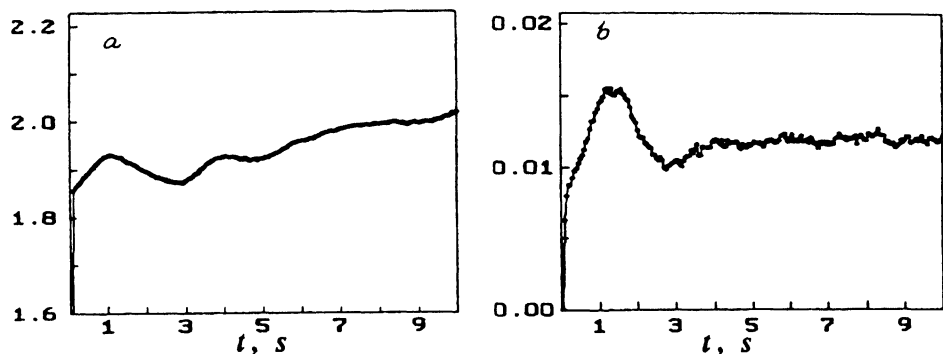


Рис. 4. Зависимости от времени t : а — среднеквадратичного отклонения высоты поверхности растущего кристалла над поверхностью подложки; б — энергетической шероховатости поверхности.

На рис. 2 приведена динамика заполнения первого слоя АВС. На этом рисунке показаны графики концентрации атомов В в первом слое на двух террасах в различные моменты времени роста. Самая нижняя линия на этом рисунке соответствует моменту времени 0.1 с, каждая следующая кривая соответствует времени на 0.3 с больше предыдущего. Самая верхняя кривая построена для момента времени 1.9 с. Из рис. 2 следует, что около 90% атомов В, упавших на поверхность подложки за первые 0.4 с роста, встроились в кристалл у ступеней.

На рис. 3, 4 показана эволюция в течение первых 10 с роста величин, характеризующих подвижность адатомов и шероховатость поверхности. Верхняя кривая на рис. 3 представляет собой график зависимости от времени средней ширины террас в направлении оси [110] (перпендикулярно первоначальному положению ступеней). Две другие кривые на этом рисунке показывают зависимость от времени среднего расстояния между узлами адсорбции и встраивания в кристалл для атомов А и В. За единицу длины здесь принято расстояние между ближайшими соседними узлами в слое (001). Ширина террас определялась каждые

0.05 с роста. Длина пробега определялась для каждого атома третьей группы и усреднялась по всем атомам, встроившимся в кристалл за 0.05 с.

На рис. 4, *a* показана зависимость от времени среднеквадратичного отклонения (СКО) высоты поверхности растущего кристалла над поверхностью подложки. За единицу высоты принята высота атомного монослоя. На рис. 4, *b* представлен график «энергетической» шероховатости поверхности. Под энергетической шероховатостью мы понимаем относительное увеличение числа свободных связей поверхностных атомов, которое вычисляется по формуле $(N - N_0)/N_0$, где N , N_0 — число свободных связей поверхностных атомов в текущий и начальный моменты роста соответственно. Дополнительные свободные связи появляются главным образом на границах островков и на изгибах ступеней, поэтому данная величина связана с длиной поверхностных ступеней и при росте на сигнулярной грани (001) проявляет колебания, аналогичные колебаниям интенсивности RHEED [14].

4. Обсуждение результатов

Приведенные результаты вычислительных экспериментов по моделированию роста в процессе МЛЭ гетероперехода $A_x^{III}B_{1-x}^{III}C^V/A^{III}C^V$ на вицинальной грани (001) при разных подвижностях атомов А и В подтверждают предположение о существовании условий роста, при которых формируется неоднородное распределение компонент по ширине террасы.

Формирование неоднородного распределения происходит на начальной стадии роста, которую можно рассматривать как переход от неустойчивого режима роста к устойчивому. Длительность этого переходного периода для рассмотренных условий роста приблизительно равна времени заполнения двух слоев АВС (4с). Для описания переходных процессов рассмотрим рис. 3 и 4.

В начале заполнения первого слоя АВС практически все упавшие на поверхность подложки быстрые атомы В встраиваются в кристалл у ступеней. Средняя длина пробега атомов В (8÷12 единиц длины) в это время больше половины ширины террасы (16 единиц длины). Длина пробега атомов А мала (4 единицы длины) и они образуют на террасах островки нового слоя. В результате этого средняя ширина террас уменьшается. Уменьшается также средняя длина пробега атомов В, так как они могут теперь встраиваться в кристалл не только на границах террас, но и у границ островков. С ростом островков растет шероховатость поверхности — как СКО высоты поверхности над подложкой, так и энергетическая шероховатость. Средняя ширина террас достигает минимума, а шероховатость — максимума в интервале времени между 1 и 1.5 с роста, т. е. после заполнения половины первого слоя. К этому времени ступени передвигаются примерно на четверть первоначальной ширины террасы, а на остальной части террас располагаются многочисленные островки. Затем движущиеся ступени начинают поглощать островки, что приводит к некоторому увеличению ширины террас и к уменьшению шероховатости. Процесс поглощения островков приводит также к значительному искажению формы террасы. На рис. 5 показан типичный вид террасы (т. е. совокупности поверхностных атомов, принадлежащих одному слою (001)) после 10 с роста (направление движения ступеней — снизу вверх).



Рис. 5. Типичный вид террасы после 10 с роста.

Во время заполнения второго слоя ABC средние длины пробега адатомов А и В сравниваются. Это происходит по двум причинам. Во-первых, из-за искажения формы террас распределение глубоких адсорбционных центров по поверхности кристалла приближается к равномерному. Число таких центров увеличивается, а среднее расстояние между ними уменьшается. Вероятности захвата этими центрами адатомов А и В становятся близкими. Во-вторых, средние энергии связи адатомов А и В с поверхностью кристалла, определяющие среднюю частоту скачков, также становятся равными друг другу. Адатомы А и В оказываются в одинаковых условиях, поскольку теперь поверхностный слой кристалла содержит как атомы А, так и В в отличие от подложки, которая содержит только атомы А. После сравнения средних длин пробега адатомов А и В рост становится устойчивым. Распределение компонент в четвертом слое практически равномерно. Средняя ширина террас и длина пробега адатомов не изменяются со временем. Шероховатости несколько возрастают, но, по-видимому, с течением времени они также стабилизируются.

Отметим, что расчеты проводились для абстрактного кристалла с тетраэдральной решеткой. Для проведения расчетов по моделированию роста реальных кристаллов нужно точно знать значения внутренних параметров модели, главными из которых являются энергии связи атомов в кристалле и адатомов с атомами кристалла и между собой. К сожалению, известны только приблизительные оценки этих параметров. Поэтому все модели МЛЭ моделируют рост абстрактных кристаллов и трудно ожидать количественного совпадения получаемых результатов с экспериментальными данными. Однако, как правило, моделирование МЛЭ дает качественно правильное описание процесса роста и дает возможность детального исследования механизма роста и влияния как внешних условий, так и кинетических факторов на процесс роста и на свойства выращенных кристаллов.

5. Заключение

С помощью стохастической модели исследована кинетика начальной стадии роста слоев твердого раствора типа $A_x^{III}B_{1-x}^{III}C^V$ на vicinalной грани $A^{III}C^V$ (001). Показано, что если коэффициенты диффузии адатомов А и В на С-поверхности AC различаются достаточно сильно, то в области гетероперехода формируется латерально неоднородное распределение компонент А и В.

Результаты данной работы позволяют предположить, что эффект латерального разделения компонент возможен для гетероперехода $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Ga}(\text{Al})\text{As}$ при определенных условиях роста, когда соотношения между средними длинами пробега атомов Al и Ga и шириной террас будут близкими к тем, которые получились в данной работе. Для выяснения этих условий требуется проведение специальных теоретических и экспериментальных исследований, в том числе и новых расчетов по моделированию роста с параметрами, характерными для AlGaAs . Периодическое распределение компонент в области гетероперехода можно использовать для создания квантовых ям с периодическим потенциалом вдоль «длины» ямы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 95-02-05602).

Список литературы

- [1] *Молекулярно-лучевая эпитаксия и гетероструктуры*, под ред. Л. Ченга, К. Плога. (М, Мир, 1989).
- [2] W. Burton, N. Cabrera, F. Frand. *Phil. Trans. A*, **243**, 299 (1951).
- [3] A.K. Myers-Beaghton, D.D. Vvedensky. *Phys. Rev. B*, **42**, 9720 (1990).
- [4] И.Л. Алейнер, Р.А. Сурис. *ФТТ*, **34**, 1522 (1992).
- [5] J. Tersoff, D.W. Denier van der Gon, R.M. Tromp. *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 266 (1994).
- [6] J. Villain. *J. Phys. L*, **1**, 19 (1991).
- [7] D.D. Vvedensky, A. Zangwill, C.N. Luse, M.R. Wilby. *Phys. Rev. E*, **48**, 852 (1993).
- [8] Tao Sun, M. Plischke. *Phys. Rev. E*, **50**, 3370 (1994).
- [9] *Методы Монте-Карло в статистической физике*, под ред. К. Биндер (М., Мир, 1982).
- [10] A. Madhukar, S.V. Ghaisas. *CRC Crit. Rev. Sol. St. Mater. Sci.*, **14**, 1 (1988).
- [11] R. Kaspi, S.A. Barnett. *Surf. Sci.*, **241**, 146 (1991).
- [12] T. Shitara, D.D. Vvedensky, M.R. Wilby, J. Zhang, J.H. Neave, B.A. Joyce. *Phys. Rev. B*, **46**, 6815 (1992).
- [13] Б.К. Медведев, В.Г. Мокеров, Н.В. Песков. *Докл. РАН*, **329**, 302 (1993).
- [14] N.V. Peskov. *Surf. Sci.*, **306**, 227 (1994).
- [15] Y. Horikoshi, H. Yamaguchi, L. Briones, M. Kawachima. *J. Cryst. Growth.*, **105**, 326 (1990).
- [16] Yan-Ten Lu, Horia Metiu. *Surf. Sci.*, **245**, 150 (1991); *Surf. Sci.*, **254**, 209 (1991).
- [17] M.D. Johnson, C. Orme, A.W. Hunt, D. Graff, J. Sudijono, L.M. Sander, B.G. Orr. *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 116 (1994).

Редактор Т.А. Полянская

Computer simulation of molecular-beam epitaxial growth of a $\text{A}_x^{\text{III}}\text{B}_{1-x}^{\text{III}}\text{C}^{\text{V}}/\text{A}^{\text{III}}\text{C}^{\text{V}}$ heterojunction with lateral periodic distribution of A and B components

*N.V. Peskov, B.K. Medvedev**

M.V. Lomonosov Moscow State University, 119899 Moscow

*Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, 103907 Moscow, Russia

Results on computer simulation of molecular-beam epitaxial growth on a vicinal face (001) of a $\text{A}_x^{\text{III}}\text{B}_{1-x}^{\text{III}}\text{C}^{\text{V}}/\text{A}^{\text{III}}\text{C}^{\text{V}}$ heterojunction are presented in this paper. A lateral periodic distribution of A and B components in the area of the heterojunction has been observed under certain growth conditions.