

10;12

## **Осцилляции зеркального и дробных рефлексов в дифракции быстрых электронов на отражение при гомоэпитаксии на GaAs(001) с реконструкцией ( $2 \times 4$ )**

© Ю.Г. Галицын, С.П. Мощенко, А.И. Торопов, А.К. Бакаров

Институт физики полупроводников СО РАН, Новосибирск

Поступило в Редакцию 22 октября 1998 г.

Исследованы осцилляции интенсивности зеркального и дробных рефлексов при гомоэпитаксии на поверхности (001) GaAs-( $2 \times 4$ ). Обнаружено существенное различие эволюции интенсивности зеркального и дробных ( $0\ 1/4$ ) и ( $0\ 3/4$ ) рефлексов для  $\alpha$ - и  $\beta$ -фаз этой реконструкции. Предложена кинетическая схема элементарных процессов, протекающих при иницировании роста. Экспериментально определена энергия активации зародышеобразования ( $5\text{ eV}$ ). Показано, что температурная зависимость вероятности возникновения критического зародыша лимитируется десорбцией димеров мышьяка.

В работах [1–8] была детально разработана кинетическая модель встраивания  $\text{As}_4$  при гомоэпитаксии GaAs на Ga-стабилизированной поверхности (001) с реконструкцией ( $4 \times 2$ ). В эпитаксиальном росте была выявлена роль таких процессов, как адсорбция и десорбция тетрамера мышьяка, десорбция димера мышьяка, реакция бимолекулярного взаимодействия двух  $\text{As}_4$ . Несомненно, что эти процессы имеют место и при эпитаксии на As-стабилизированной поверхности ( $2 \times 4$ ). Однако выявление их роли для этой реконструкции осложнено тем обстоятельством, что скорость роста лимитируется только потоком галлия, поэтому период осцилляций интенсивности зеркального рефлекса (ИЗР) в дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) в достаточно широких пределах не зависит ни от давления  $\text{As}_4$ , ни от температуры поверхности.

Все же ряд ценных результатов при анализе элементарных процессов роста на реконструкции ( $2 \times 4$ ) был получен в работах Джойса и др. [9 и ссылки в ней]. Анализируя двумерное зародышеобразование

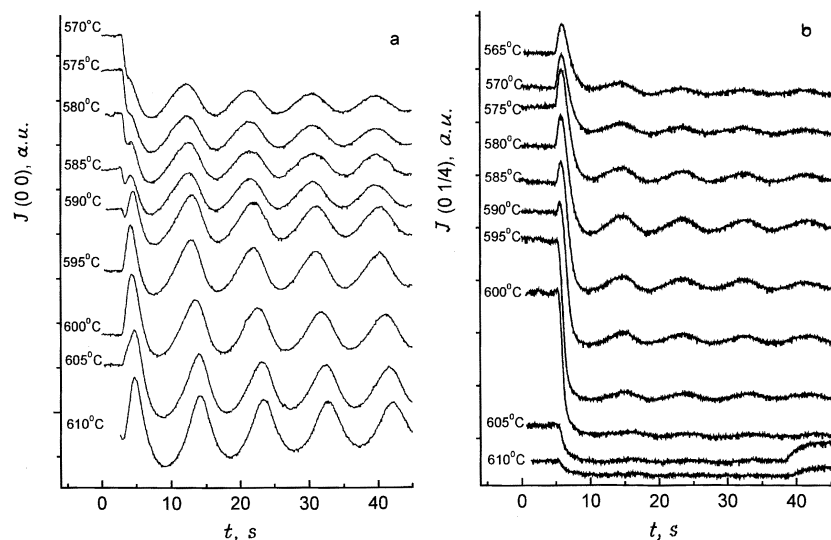
на поверхности (001) с реконструкцией  $\beta$ -(2 × 4), авторы пришли к заключению, что возникновение двумерных островков GaAs инициируется парным взаимодействием двух адатомов Ga в так называемых "канавках пропущенных димерных пар мышьяка" (missing dimer trenches) идеальной структуры  $\beta$ -(2 × 4). Утверждается, что заполнение канавок также происходит парами адатомов Ga и является следствием реакции второго порядка диссоциативной хемосорбции As<sub>4</sub>, т. е. реакции бимолекулярного взаимодействия двух As<sub>4</sub> [9].

Однако реальное строение реконструкции  $\beta$ -(2 × 4), являющейся наиболее упорядоченной фазой из семейства (2 × 4) As-стабилизированных фаз,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , далеко не идеальное [10,11]. На наш взгляд реконструкцию  $\beta$ -(2 × 4) можно рассматривать не только как совокупность канавок пропущенных димерных пар мышьяка, но и альтернативно, как периодически расположенные цепочки димеров мышьяка, вытянутые в том же направлении  $[\bar{1}10]$ , что и канавки [9–12]. Анализ изображений сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) этой структуры показывает, что наиболее характерный тип дефектов этой фазы — отсутствие некоторых звеньев цепочки. В результате средняя длина ненарушенной цепи димеров определяется средней статистической концентрацией пропущенных звеньев (вакансий)  $N(T)$ . Средняя длина цепочки может меняться от 50 до 300 Å. Определим параметр дальнего порядка как  $\eta(T) = N_0/N(T)$ , где  $N_0$  — минимальная термодинамически равновесная концентрация вакансий в области существования  $\beta$ -фазы. Этот параметр непосредственно определяет интенсивность не только дробных рефлексов от фазы  $\beta$ -(2 × 4) в азимуте  $[\bar{1}10]$ , но и зеркального пучка.

Проведенный в этой работе анализ осцилляций интенсивности зеркального и дробных рефлексов с учетом реального строения фазы  $\beta$ -(2 × 4) позволил нам предложить несколько иной сценарий двумерного зародышеобразования при гомоэпитаксиальном росте из потоков As<sub>4</sub> и Ga, чем принятый в [9].

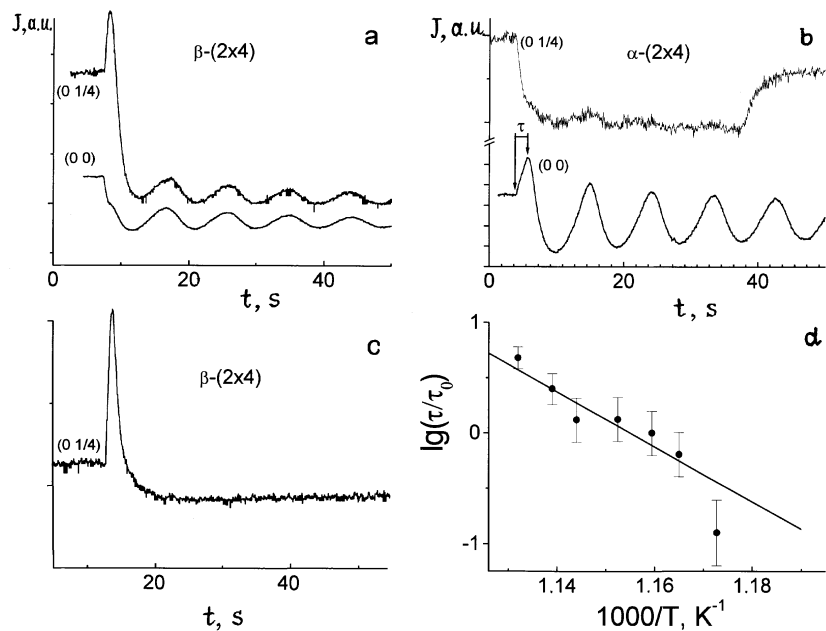
Эксперименты проводились на установке МВЕ-32 фирмы Riber. Размер образца был 3 × 3 mm. Осцилляции интенсивности зеркального (00) и дробных пучков (0 1/4), (0 3/4), (0 2/4) снимались в точке размером ~ 1 mm<sup>2</sup> с экрана дифрактометра при скользящем угле падения ~ 1.5° в азимуте  $[\bar{1}10]$ . Область температур 560–620°С соответствовала области существования фаз  $\alpha$  и  $\beta$  реконструкции (2 × 4) при  $P \approx 2 \cdot 10^{-6}$  Torr As<sub>4</sub>.

На рис. 1 приведены осцилляции интенсивности зеркального и дробного (0 1/4) рефлексов при инициировании роста в области тем-



**Рис. 1.** Осцилляции интенсивности ( $J$ ) зеркального и дробных рефлексов в зависимости от температуры:  $a$  — рефлекс (00);  $b$  — рефлекс (0 1/4). Видно, что с повышением температуры в первой осцилляции зеркального рефлекса наблюдаются переход от уменьшения интенсивности к ее возрастанию и обратное поведение для дробного рефлекса.

ператур 610–570°C, где происходит переход от высокотемпературной фазы  $\alpha$ -( $2 \times 4$ ) к низкотемпературной упорядоченной  $\beta$ -( $2 \times 4$ ) фазе. Для  $\beta$ -фазы начало роста сопровождается уменьшением интенсивности зеркального рефлекса, тогда как интенсивность дробных рефлексов (0 1/4) и (0 3/4) возрастает. В области температур существования  $\alpha$ -фазы ( $T_s > 590^\circ\text{C}$ ), напротив, в первый момент наблюдается всплеск интенсивности зеркального рефлекса, а интенсивность дробных рефлексов падает. Видно, что период первой осцилляции увеличивается с температурой. Если при  $T_s = 575^\circ\text{C}$  он практически совпадает с периодом последующих осцилляций, то при  $T_s = 610^\circ\text{C}$  период первой осцилляции возрастает на 20%. Отметим также, что с увеличением температуры подложки форма осцилляций меняется от синусоидальной в  $\beta$ -фазе до чаше-подобной (cups-like) формы в  $\alpha$ -фазе. Такое изменение



**Рис. 2.** Форма осцилляций интенсивностей рефлексов  $J$  при инициировании роста в разных фазах:  $a$  —  $\beta$ -(2x4) ( $T = 575^\circ\text{C}$ );  $b$  —  $\alpha$ -(2x4) ( $T = 605^\circ\text{C}$ );  $c$  — релаксация интенсивности дробного рефлекса (11/4) при перекрытии потока атомов галлия, момент перекрытия указан стрелкой;  $d$  — аррениусовская зависимость длительности стадии зародышеобразования  $\tau$ , нормированная на 1 с.

формы осцилляций свидетельствует о существенном увеличении диффузионной подвижности адатомов с ростом температуры [13,14].

Рассмотрим детальнее поведение осцилляций интенсивности рефлексов в  $\beta$ -фазе. Увеличение интенсивности пучка  $(0\ 1/4)$  при инициировании роста должно быть ассоциировано с увеличением степени упорядочения  $\beta$ -фазы. По нашему мнению, на начальной стадии роста доминирующим процессом является захват адатомов галлия вакансиями. Фактически происходит "сшивки" отдельных нитей димерных цепочек. Это приводит к увеличению их средней длины и, как следствие, к увеличению интенсивности дробных пучков  $(0\ 1/4)$   $(0\ 3/4)$ . В то же

время ИЗР в силу требования сохранения полного электронного потока должна заметно уменьшиться. Действительно, в эксперименте (рис. 1 и 2, *a*) мы наблюдаем именно изменение интенсивности при иницировании роста в  $\beta$ -фазе. Возникновение на поверхности двумерных зародышей приводит к резкому снижению стационарной концентрации адатомов. В этих условиях восстанавливается равновесное значение параметра дальнего порядка  $\eta(T)$ , а интенсивность дробного пучка  $(1\ 1/4)$  возвращается к значению  $I_0$ . Дополнительный эксперимент подтверждает данный вывод. Действительно, при прерывании потока Ga в максимуме интенсивности  $I_m$  происходит быстрая релаксация  $I_m \rightarrow I_0$  (см. рис. 2, *c*).

Для  $\alpha$ -фазы, как мы уже отмечали, рост инициируется по-другому. Эта фаза менее упорядочена; канавки пропущенных димеров этой фазы заполнены атомами галлия, данные СТМ указывают на появление локально неупорядоченных структур типа  $(1 \times 2)$  с избытком галлия [10,15]. В фазе  $(1 \times 2)$  галлий не образует димеров и связан только с двумя атомами мышьяка нижней плоскости. Следовательно, адатомы галлия могут непосредственно образовывать области таких неупорядоченных фаз. При иницировании роста будет происходить дальнейшее повышение беспорядка на поверхности. Интенсивность пучков  $(0\ 1/4)$   $(0\ 3/4)$  должна уменьшаться, а ИЗР при доминирующем дифракционном рассеянии — увеличиваться, что и наблюдается в эксперименте (рис. 2, *b*).

В  $\alpha$ -фазе длительность индукционного периода образования двумерных зародышей — уже вполне измеримая величина. Предполагая, что для возникновения критического двумерного зародыша требуются два димера мышьяка, которые образуются в результате реакции бимолекулярного взаимодействия двух  $As_4$  для  $\tau$  имеем:

$$\tau \sim f(n)/\Theta_{As}^2,$$

где  $\Theta_{As}$  — степень заполнения поверхности димерами мышьяка,  $f(n)$  — слабо зависящая от температуры функция концентрации адатомов галлия. Как показано в работах [7,8],  $\Theta_{As}$  ведет себя с повышением температуры как

$$\Theta_{As} \sim k_1 P / k_5(T),$$

где  $k_1$  — константа адсорбции  $As_4$ ,  $P$  — давление  $As_4$ ,  $k_5$  — константа десорбции димера мышьяка с поверхности, имеющая энергию активации 2.5 eV [16]. Следовательно, аррениусовская зависимость  $\tau$

должна аппроксимироваться прямой с наклоном  $E_{\text{эфф}} = 2E_5 \sim 5 \text{ eV}$ . Это соответствует эксперименту (рис. 2, *d*).

Итак, экспериментальные результаты по исследованию начальных стадий роста в  $\alpha$ - и  $\beta$ -фазах показывают существенное различие динамики процессов. В то время как для упорядоченной  $\beta$ -фазы внешний ростовой поток вначале вызывает дальнейшее упорядочение поверхности, для неупорядоченной  $\alpha$ -фазы инициирование роста ведет к увеличению беспорядка.

Анализ осцилляций ИЗР и дробный рефлексов с учетом реального строения поверхности с реконструкцией ( $2 \times 4$ ) позволил нам сделать утверждение, что эпитаксиальный рост в  $\beta$ -фазе начинается с восстановления пропущенных звеньев димерной цепи, а не с заполнения канавки, как предполагалось [9]. В  $\alpha$ -фазе начальные процессы роста приводят к образованию мышьякдефицитных неупорядоченных фаз.

Длительность стадии зародышеобразования возрастает с увеличением температуры. В предложенной модели процессы десорбции димеров мышьяка играют доминирующую роль в температурной зависимости скорости зародышеобразования.

Данная работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 96-03-33916а).

## Список литературы

- [1] Tok E.S., Neave J.H., Zhang J., Joyce B.A., Jones T.S. // Surf. Sci. 1997. V. 374. P. 397.
- [2] Foxon C.T., Joyce B.A. // Surf. Sci. 1975. V. 50. P. 434.
- [3] Garcia J.C., Neri C., Massies J. // J. Cryst. Growth. 1989. V. 98. P. 1.
- [4] Ott A.K., Casey S.M., Alstrin A.L., Leone S.R. // J. Vac. Sci. Technol. 1996. B 14. P. 2742.
- [5] Galitsyn Yu.G., Mansurov V.G., Marahovka I.I. // Phys. Low-Dim. Struct. 1997. V. 5. P. 75.
- [6] Galitsyn Yu.G., Mansurov V.G., Marahovka I.I. // Phys. Low-Dim. Struct. 1997. V. 7. P. 55.
- [7] Галицын Ю.Г., Мараховка И.И., Мощенко С.П., Мансуров В.Г. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. В. 7. С. 31.
- [8] Галицын Ю.Г., Мараховка И.И., Мощенко С.П. и др. // ДАН. 1998. Т. 359. В. 1. С. 48.
- [9] Avery A.R., Dobbs H.T., Holms D.M., Joyce B.A., Vvedensky D.D. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 79. P. 3938.

- [10] *Xue Q., Hashizume T., Ichimiya A., Ohno T., Hasegawa Y., Sakuraj T.* // Sci. Rep. RITU. 1997. A44. P. 113.
- [11] *Hashizume T., Xue Q., Zhou J., Ichimiya A., Sakuraj T.* // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 73. P. 2208.
- [12] *Avery A.R., Holms D.M., Sudijono J., Jones T.P., Joyce B.A.* // Surf. Sci. 1995. V. 323. P. 91.
- [13] *Peng L.M., Whelan M.J.* // Proc. R. Soc. 1991. V. 432. P. 195.
- [14] *Myers Beaghton A.K., Vvedensky D.D.* // Surf. Sci. 1990. V. 232. P. 161.
- [15] *Behrend J., Wassermeier M., Ploog K.H.* // Surf. Sci. 1997. V. 372. P. 307.
- [16] *Sasaoka C., Kato Y., Usui A.* // Appl. Phys. Lett. 1993. V. 62. P. 2338.