

Эффекты локального поля в спектрах анизотропного оптического отражения поверхности (001) арсенида галлия

© В.Л. Берковиц, А.Б. Гордеева, В.А. Кособукин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Vladimir.Berkovits@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 9 ноября 2000 г.)

В диапазоне энергий 1.5–5.7 eV измерены характерные спектры анизотропного отражения света от естественно окисленных поверхностей (001) нелегированных кристаллов GaAs и эпитаксиальных пленок $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$. Для объяснения спектров предложена микроскопическая модель границы раздела (001) GaAs/окисел и развита теория анизотропного (дифференциального) отражения света от многослойной среды с монослоем атомных диполей, расположенным вблизи одной из границ раздела. В рамках метода функций Грина классической электродинамики на единой основе учтены анизотропия поляризуемости диполей и анизотропия плоской решетки, образованной диполями. Хорошее совпадение измеренных и рассчитанных спектров анизотропного отражения окисленных поверхностей (001) GaAs показывает, что основной вклад в эти спектры обусловлен эффектами локального поля на границе раздела полупроводник–окисел.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 99-02-18144 и 00-02-18924) и частичной поддержке проекта Миннауки "Поверхностные атомные структуры" (проект № 3.7.99).

Для исследования поверхностей кубических полупроводников широко используется дифференциальная оптическая методика, получившая название спектроскопии анизотропного отражения (Reflectance Anisotropy Spectroscopy) [1]. Эта методика в условиях нормального падения света регистрирует как функцию энергии фотонов величину

$$\frac{\Delta R}{R} = 2 \frac{R_x - R_y}{R_x + R_y}, \quad (1)$$

где R_x и R_y — коэффициенты отражения для света, линейно поляризованного вдоль ортогональных направлений x и y . В случае поверхности (001) направления x и y выбираются вдоль осей $[1\bar{1}0]$ и $[110]$, лежащих в плоскости поверхности.

Теоретически при нормальном падении света полупроводники кубической симметрии ведут себя как оптически изотропные среды, поэтому в этих кристаллах сигнал анизотропии $\Delta R/R$ для объемного отражения должен быть равен нулю. Отличный от нуля сигнал может быть обусловлен только наличием низкосимметричной поверхностной структуры. Исследования последних лет показали, что для полупроводников A_3B_5 понижение симметрии в приповерхностной области и связанные с ним сигналы анизотропии могут возникать в силу ряда причин. Так, в арсениде галлия вследствие реконструкции симметрия атомарно-чистых поверхностей (001) понижена, поэтому они обладают характерными спектрами анизотропного отражения [2]. При формировании субмонослойных хемосорбционных покрытий из чужеродных атомов в этих спектрах могут возникать добавочные линии [3]. Кроме того, в спектрах анизотропного отражения поверхностей (001) GaAs могут проявляться сигналы, вызываемые электрическим полем слоя объемного заряда [4], и сигналы, связанные с упорядочен-

ными особенностями рельефа поверхности, такими как ступеньки, ямки травления и т.д. [5]. Перечисленные вклады анизотропного отражения (001) GaAs надежно установлены экспериментально [2,5–7] и интерпретированы теоретически [5,8,9].

В работе [5] впервые отмечалось, что естественно окисленная поверхность (001) GaAs в диапазоне энергий 1.5–6 eV обладает спектром анизотропного отражения с величиной сигнала на уровне $|\Delta R/R| \sim 10^{-3}$ (те же особенности можно видеть на спектрах, приведенных в [4]). В дальнейшем было обнаружено, что в данной спектральной области характерные спектры анизотропного отражения демонстрируют и окисленные поверхности (001) твердых растворов тройных соединений $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ [10]. Последующие наши исследования показали, что форма спектров анизотропного отражения окисленных поверхностей (001) GaAs и $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ не может быть объяснена с помощью перечисленных выше механизмов. Обнаруженное в работах [4,5,10] наличие спектров анизотропного отражения у естественно окисленных поверхностей (001) GaAs и $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ является нетривиальным фактом, поскольку возникающая в результате реконструкции низкосимметричная структура на окисленных поверхностях (001) полупроводников A_3B_5 , очевидно, должна отсутствовать. Таким образом, для объяснения анизотропии отражения, наблюдаемой для окисленных поверхностей полупроводников A_3B_5 , необходимо выяснить причину этого эффекта и механизм его формирования.

В связи с этим задача данной работы — экспериментальное и теоретическое исследование спектров анизотропного отражения естественно окисленных поверхностей (001) A_3B_5 . В рамках этой задачи проведены систематические измерения спектров анизотропного от-

ражения поверхностей (001) GaAs и $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$. Для их объяснения разработана более общая, чем в предыдущих работах [11–13], теоретическая модель, описывающая эффекты локального поля, связанные с анизотропией структуры решетки и анизотропией поляризуемости диполей поверхностных слоев. Содержание работы заключается в следующем. В разделе 1 обсуждается микроструктура окисленной поверхности (001) GaAs. В разделе 2 описан эксперимент и его результаты. В разделе 3 представлена общая теория эффектов локального поля в спектроскопии анизотропного отражения. Полученные результаты используются в разделе 4 для численного анализа спектров анизотропного отражения естественно окисленных поверхностей (001) GaAs. Основные выводы содержатся в разделе 5.

1. Структура естественно окисленной поверхности (001) GaAs

Отражение света обусловлено наличием в веществе совокупности оптических дипольных переходов, которые индуцируются электрическим полем падающей световой волны. Поэтому эффект анизотропии отражения света от кубических кристаллов можно связать с двумя основными факторами: 1) характером симметрии поверхностной решетки диполей и 2) анизотропией оптической поляризуемости самих диполей. Решетка диполей на окисленных поверхностях (001) A_3B_5 квадратная, поэтому в кристаллах A_3B_5 можно ожидать появления сигнала анизотропного отражения только вследствие анизотропии поляризуемости ковалентных связей.

Проявление в оптических спектрах диполь-дипольных взаимодействий соответствует эффектам локального поля. Последние обусловлены отличием электрического поля света, индуцирующего динамические дипольные моменты на поверхности, от макроскопического поля падающей волны. Будучи по существу эффектами классической электродинамики, эффекты локального поля обычно рассматриваются в модели атомных точечных диполей [11–13]. Известно, что поверхностные эффекты локального поля существенны в линейной [12,13] и нелинейной [14] оптической спектроскопии металлов со слоями адсорбированных молекул. В случае полупроводников эффекты локального поля привлекались для объяснения спектров анизотропного отражения чистых поверхностей (110) Ge и Si [15], причем считалось, что анизотропной поляризуемостью обладают собственные атомы полупроводника, находящиеся на поверхности.

В кристаллах A_3B_5 фундаментальные оптические эффекты, обусловленные дипольной структурой поверхностных слоев, остаются неизученными. Для естественно окисленных поверхностей это в значительной мере связано с отсутствием точных данных о микроструктуре границ раздела полупроводник–окисел. В случае поверхности (001) GaAs представление о такой структуре

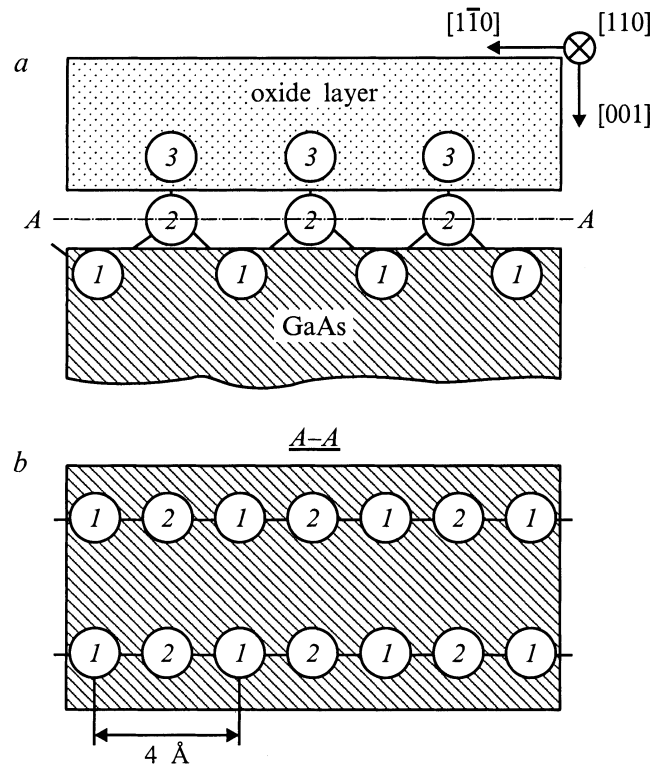


Рис. 1. Предполагаемая структура интерфейса (001) GaAs/окисел: *a* — вертикальный разрез, *b* — разрез по горизонтальной плоскости *A–A*. Цифрами обозначены атомы As, расположенные в кристалле GaAs (1), в хемосорбированном слое (2) и в аморфном слое (3).

можно составить, однако, исходя из данных о химическом составе окисной пленки, который в настоящее время достаточно хорошо установлен [16]. Известно, что внешний слой такой пленки толщиной примерно 25 \AA является аморфным и состоит из оксидов Ga_2O_3 и As_2O_3 . Между слоем оксидов и поверхностью кристалла располагается, как следует из данных [16], слой так называемого избыточного мышьяка $\text{As}^{(0)}$, который накапливается на границе раздела GaAs/окисел из-за неполного окисления материала полупроводника. Можно предположить, что атомы избыточного мышьяка будут связываться с атомами поверхности кристалла вплоть до образования двух последовательных кристаллических слоев атомов As. Известно, что именно два кристаллических слоя мышьяка формируются и при адсорбции мышьяка из паровой фазы на атомарно чистые поверхности (001) GaAs [17].

В этом случае микроструктура интерфейса GaAs/окисел может быть представлена в виде, показанном на рис. 1. Кристаллический слой 1 (рис. 1, *a*) принадлежит GaAs и состоит из атомов As в sp^3 -гибридизации, которые, как и в плоскости (001) объема GaAs, образуют двумерную квадратную решетку с периодом 4 \AA , изображенную на рис. 1, *b*. Слой 2 является переходным между кристаллом GaAs и окисной пленкой и состоит из

хемосорбированных атомов As. Для последних гибридизация связей неизвестна, но, скорее всего, она является промежуточной между гибридизациями sp^3 и sp^2 . Атомы слоя 2 также образуют двумерную квадратную решетку с периодом 4 \AA , сдвинутую относительно решетки слоя 1 на половину периода ячейки (2 \AA) в направлении $[1\bar{1}0]$ (рис. 1, *b*). Слой 3, состоящий из мышьяка и оксидов галлия и мышьяка, является аморфным. Таким образом, каждый из слоев 1–3, показанных на рис. 1, *a*, имеет атомную конфигурацию, которая при условии изотропной поляризуемости атомных диполей характеризуется макроскопическим изотропным диэлектрическим откликом в плоскости (001).

Поляризуемости атомов приповерхностного слоя 1 в направлениях $[1\bar{1}0]$ и $[110]$ одинаковы, как и для плоскости (001) в объеме GaAs. Средняя поляризуемость аморфного слоя 3 также одинакова во всех направлениях плоскости (001). Поэтому полагаем, что причиной эффекта анизотропного отражения [4,5,10] может быть только анизотропия поляризуемости атомов в слое 2. Далее считаем, что поляризуемость в направлении $[1\bar{1}0]$ больше, чем в направлении $[110]$, поскольку химические связи между атомами 1 и 2 слоев имеют проекцию только на направление $[1\bar{1}0]$ (рис. 1, *b*). При этом связи между атомами слоев 2 и 3 не дают вклада в анизотропию поляризуемости в плоскости поверхности.

2. Эксперимент

В экспериментах регистрировались спектры анизотропного отражения от поверхностей (001) нелегированных образцов GaAs с концентрацией остаточной примеси на уровне 10^{15} cm^{-3} и нелегированных эпитаксиальных пленок $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$ толщиной 1 \mu m . Выбор кристаллов с минимальным уровнем легирования позволяет избежать появления в спектре сигналов анизотропного отражения, вызываемых приповерхностным электрическим полем слоя объемного заряда [4]. Перед экспериментом поверхности образцов GaAs обезжиривались ацетоном и слегка освежались в травителе $5\text{H}_2\text{SO}_4 : 1\text{H}_2\text{O}_2 : 1\text{H}_2\text{O}$. Затем образцы промывались деионизированной водой, высушивались и выдерживались на воздухе в течение суток для образования стабильной окисной фазы. Все спектры регистрировались при комнатной температуре. Экспериментальная установка, используемая для регистрации спектров анизотропного отражения, подробно описана в [7]. В качестве источника света использовалась ксеноновая лампа, что обеспечивало регистрацию спектров в ультрафиолетовой области примерно до 5.7 eV .

Полученные спектры анизотропного отражения окисленных поверхностей (001) GaAs и $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$ представлены на рис. 2. Спектры подобны по виду и состоят из двух широких спектральных особенностей с $\Delta R/R > 0$, граница между которыми лежит в районе 3 eV . В обоих спектрах различима слабая структура в области объемных переходов E_1 и $E_1 + \Delta_1$, а также

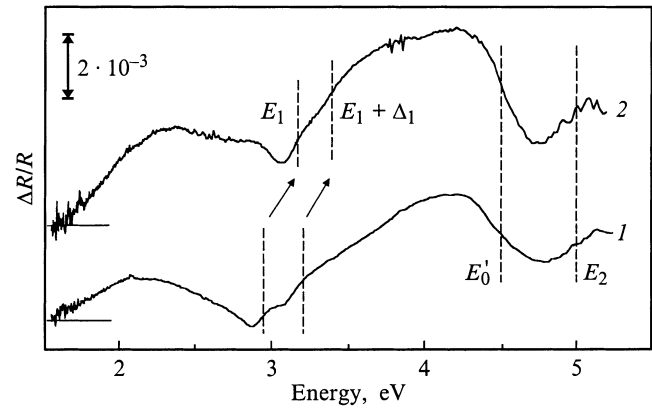


Рис. 2. Экспериментальные спектры анизотропного отражения света от окисленных поверхностей (001) слаболегированного GaAs (1) и эпитаксиальной пленки $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (2). Штриховые вертикальные линии показывают положение объемных оптических переходов. Отрезки горизонтальных линий в начале каждого спектра показывают нулевое значение сигнала. Вдоль оси ординат приведен масштаб измерения величины $\Delta R/R$.

более интенсивный широкий минимум, покрывающий область между объемными переходами E'_0 и E_2 . Мы установили, что приведенные спектры являются типичными; независимо от способа приготовления окисленной поверхности (001) и выращивания кристаллов GaAs их спектры анизотропного отражения имеют те же характерные особенности, что и спектры на рис. 2. В то же время спектры, показанные на рис. 2, кардинально отличаются от соответствующих спектров атомарно-чистых поверхностей (001) тех же соединений [2,10].

В принципе узкие спектральные особенности, наблюдаемые при энергиях, которые соответствуют объемным оптическим переходам, можно было бы приписать возмущению приповерхностной области кристалла электрическим полем слоя объемного заряда или деформацией. Однако подобное объяснение неприменимо для двух широких особенностей на рис. 2, имеющих максимумы как раз в тех спектральных областях, где нет объемных переходов.

3. Теория

В соответствии со стандартной схемой экспериментов в этом разделе развивается теория анизотропного (дифференциального) отражения света от поверхности полупроводника, покрытой слоем окисла. Рассматривается показанная на рис. 3 электродинамическая модель, в которой предполагается следующее. 1) Микроскопически тонкий слой диполей находится в многослойной среде вблизи одной из ее границ раздела. 2) Диполи обладают анизотропной собственной поляризуемостью, постоянной в диапазоне оптических частот. 3) Решетка, в узлах которой находятся диполи, анизотропна, т. е. имеет

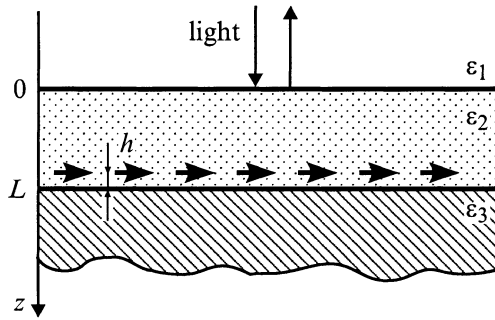


Рис. 3. Схема трехслойной диэлектрической среды со слоем микроскопических индуцированных диполей (горизонтальные стрелки) для описания анизотропного отражения света.

разные периоды по главным осям тензора поляризуемости. Предположения 1 и 3 существенно отличают развиваемую теорию от предыдущих [11–15,18], имевших дело с квадратными поверхностными решетками вблизи изолированных поверхностей.

Задача решается методом возмущений. В качестве невозмущенной модели рассматривается среда, образованная оптически изотропными слоями, которые характеризуются тензором локальной диэлектрической проницаемости с компонентами $\varepsilon^0(z) \cdot \delta_{\alpha\beta}$, где $\delta_{\alpha\beta}$ — символ Кронекера с декартовыми индексами α и β . В соответствии с рис. 3 функция $\varepsilon^0(z)$ равна ε_1 при $z < 0$ (вакуум), ε_2 при $0 < z < L$ (окисел) и ε_3 при $z > L$ (полупроводник). Слой диполей, который считается возмущением, расположен в плоскости $z = z_0 = L - h$ на микроскопическом расстоянии h от поверхности полупроводника, причем $h \ll L$.

Предполагается, что монохроматическая световая волна $\mathbf{E}^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{e}_\alpha \cdot E^{\text{inc}} \cdot \exp(-i\omega t + i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 z)$ с частотой ω и линейной поляризацией вдоль одного из ортов \mathbf{e}_x или \mathbf{e}_y падает из среды I ($z < 0$) по нормали к поверхности кристалла $z = 0$, $k_0 = \omega/c$. Эта волна индуцирует в приповерхностном слое квазиточечные диполи, которые вносят следующий вклад в диэлектрическую поляризацию:

$$P_\alpha(\mathbf{r}) = \delta(z - z_0) \cdot \sum_{\mathbf{n}} \delta(\mathbf{R} - \mathbf{R}_{\mathbf{n}}) \cdot \chi^{(\alpha)} \cdot E_\alpha(z_0, \mathbf{R}_{\mathbf{n}}). \quad (2)$$

Здесь $\mathbf{r} = (z, \mathbf{R})$, $\mathbf{R} = (x, y)$, радиусы-векторы $\mathbf{R}_{\mathbf{n}} = \mathbf{e}_x n_1 a + \mathbf{e}_y n_2 b$ определяют узлы двумерной решетки диполей с периодами $a \neq b$ и $a, b \ll k_0^{-1}$, \mathbf{e}_α — орт α -й декартовой оси, $\chi^{(\alpha)}$ — главные компоненты тензора анизотропной поляризуемости и $\mathbf{E}(z_0, \mathbf{R}_{\mathbf{n}})$ — полное поле, действующее на \mathbf{n} -й диполь с $\mathbf{n} = (n_1, n_2)$. Компоненты невозмущенного (в отсутствие диполей) электрического поля $E_\alpha^{(0)}$ и тензорной функции Грина $G_{\alpha\beta}^{(0)}$ (электромагнитный отклик многослойной среды на единичный точечный диполь, расположенный в точке \mathbf{r}')

определяются уравнениями [19]

$$\sum_{\mu} \left[\sum_{\nu} \text{rot}_{\alpha\nu} \text{rot}_{\nu\mu} - \delta_{\alpha\mu} \varepsilon^0(z) k_0^2 \right] \times \left\{ E_{\mu}^{(0)}(\mathbf{r}), G_{\mu\beta}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \right\} = \{0, \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\}, \quad (3)$$

где $\text{rot}_{\alpha\beta} = \sum_{\gamma} e_{\alpha\gamma\beta} (\partial/\partial r_{\gamma})$ и $e_{\alpha\gamma\beta}$ — компоненты единичного антисимметричного псевдотензора. Решения дифференциальных уравнений (3), т.е. электрическое поле $\mathbf{E}^{(0)}(\mathbf{r})$ и тензорная функция Грина $\hat{G}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, удовлетворяют максвелловским граничным условиям по переменной \mathbf{r} и индексу α на границах раздела $z = 0$ и L . Общее решение задачи (3) получено в [20].

При наличии возмущения (2) электрическое поле в точке \mathbf{r} определяется уравнением интегрального типа

$$E_\alpha(z, \mathbf{R}) = E_\alpha^{(0)}(z, \mathbf{R}) + 4\pi k_0^2 \sum_{n_1, n_2} \sum_{\beta} G_{\alpha\beta}^{(0)}(z_0, z_0; \mathbf{R} - \mathbf{R}_{\mathbf{n}}) \times \chi^{(\beta)} \cdot E_\beta(z_0, \mathbf{R}_{\mathbf{n}}), \quad (4)$$

причем в нашей задаче индексы α и β принимают значения x или y . Уравнение для поля, действующего на \mathbf{m} -й диполь, получается из (4) при условии $z = z_0$, $\mathbf{R} = \mathbf{R}_{\mathbf{m}}$, причем из суммы по \mathbf{n} (4) исключается член с $\mathbf{n} = \mathbf{m}$, который соответствует самодействию. По определению второй член в правой части (4) описывает эффекты локального поля. В общем случае он определяется запаздывающим взаимодействием заданного \mathbf{m} -го диполя с другими диполями поверхностного слоя и со слоями диполей изображения.

При условиях $a, b, h \ll k_0^{-1}$ удобно использовать квазистатический аналог уравнения (4), который соответствует $c \rightarrow \infty$. Наконец, при условии $h \ll L$ при вычислении квазистатического поля достаточно учесть взаимодействие реальных диполей слоя только с их изображениями, обусловленными ближайшей к слою границей ($z = L$ на рис. 3). После таких упрощений поле (4), действующее на диполь в слое $z = z_0$, представляется в виде

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^{(0)} + \mathbf{E}^{(1)} + \mathbf{E}^{(2)}, \quad (5)$$

где вклады $\mathbf{E}^{(1)}$ и $\mathbf{E}^{(2)}$ обусловлены соответственно прямым взаимодействием диполей в слое и их взаимодействием с ближайшим слоем диполей изображения. Величины $\mathbf{E}^{(1)}$ и $\mathbf{E}^{(2)}$ для показанной на рис. 3 модели выражаются через полное поле формулами (A.1) и (A.3), приведенными в Приложении. Результаты самосогласованного решения уравнения (5) с учетом (A.1)–(A.4) подставим в уравнение (1), что дает для коэффициента дифференциального отражения следующее выражение:

$$\frac{R_x - R_y}{R} = \frac{16\pi\sqrt{\varepsilon_1}(\omega/c)}{ab} \times \text{Im} \left\{ \Lambda(\Psi) \left[\frac{\chi^{(x)}}{1 - X\chi^{(x)}} - \frac{\chi^{(y)}}{1 - Y\chi^{(y)}} \right] \right\}. \quad (6)$$

Здесь $R = (R_x + R_y)/2$, $\Psi = \exp(2i\sqrt{\varepsilon_2}\omega L/c)$,

$$\Lambda(\Psi) = -\frac{4\varepsilon_2}{(\sqrt{\varepsilon_1} + \sqrt{\varepsilon_2})^2 \cdot (\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_3})^2} \times \frac{\Psi}{(r_{12} + r_{23} \cdot \Psi)(1 + r_{12} \cdot r_{23} \cdot \Psi)},$$

$r_{kl} = (\sqrt{\varepsilon_k} - \sqrt{\varepsilon_l}) / (\sqrt{\varepsilon_k} + \sqrt{\varepsilon_l})$ — коэффициент нормального отражения света от плоской границы раздела между средами k и l при падении из среды k (корни $\sqrt{\varepsilon_k}$ вычисляются так, что $\text{Im}(\sqrt{\varepsilon_k}) > 0$).

Величины $X = X^{(1)} + X^{(2)}$ и $Y = Y^{(1)} + Y^{(2)}$ в (6), выраженные через решеточные суммы вида (A.2) и (A.4), описывают зависимость эффектов локального поля от направления поляризации света. Для прямых диполь-дипольных взаимодействий с учетом (A.2), (A.5) получаем

$$X^{(1)} = -\frac{1}{\varepsilon_2 \cdot a^3} \eta^3 F_1(\eta), \quad Y^{(1)} = -\frac{1}{\varepsilon_2 \cdot a^3} F_1(1/\eta), \quad (7)$$

где $\eta = a/b$,

$$F_1(\eta) = \frac{4}{\eta^3} \left[8\pi \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} m^2 K_0 \left(\frac{2\pi mn}{\eta} \right) - \zeta(3) \right], \quad (8)$$

$K_0(z)$ — функция Макдональда, $\zeta(n)$ — дзета-функция Римана, для которой $\zeta(3) = 1.202$, $\eta = a/b$.

Учет взаимодействия с диполями изображения, выражающийся решеточными суммами (A.4) и (A.6), дает

$$X^{(2)} = -\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_3}{\varepsilon_2 \cdot (\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} \frac{1}{a^3} \eta^3 F_2(\eta, H),$$

$$Y^{(2)} = -\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_3}{\varepsilon_2 \cdot (\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} \frac{1}{a^3} F_2 \left(\frac{1}{\eta}, \frac{H}{\eta} \right), \quad (9)$$

$$F_2(\eta, H) = \frac{8\pi^2}{\eta^3} \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{m^2}{\sqrt{(m/\eta)^2 + n^2}} \times \exp \left(-2\pi H \sqrt{(m/\eta)^2 + n^2} \right), \quad (10)$$

где $H = 2h/b$. Главным удобством рядов (8) и (10) является быстрое (асимптотически экспоненциальное) убывание величины их членов в отличие от соответствующих степенных рядов (A.2) и (A.4). При $a = b$ из выражений (7) и (9) получаем $X = Y$, что соответствует результатам работ [18], используемым при анализе эффектов локального поля в квадратных решетках [11–15].

4. Численный расчет и обсуждение результатов

Выражения (6)–(10) составляют основу для численного расчета спектров анизотропного отражения (1). Вычисляемые спектры отражения естественно окисленной поверхности (001) GaAs относятся к модели, изображенной на рис. 1. Для атомного слоя 2, с которым мы связываем систему индуцированных микродиполей, принимаем $a = b = 4 \text{ \AA}$ [21]. Поскольку электронные

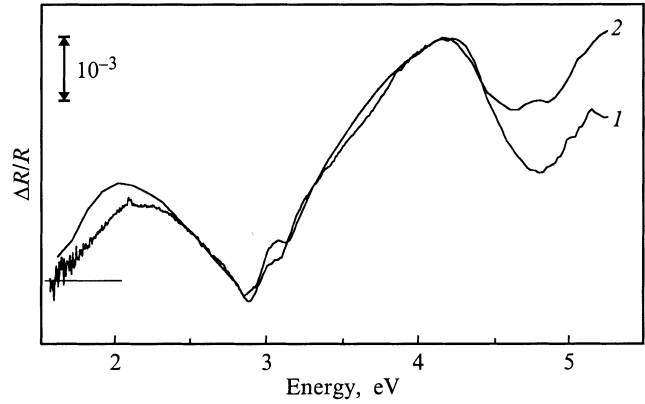


Рис. 4. Экспериментальный (1) и теоретический (2) спектры анизотропного отражения света от естественно окисленной поверхности (001) GaAs. Вдоль оси ординат приведен масштаб измерения величины $\Delta R/R$.

орбитали атомов этого слоя ориентированы преимущественно вдоль направления $[1\bar{1}0]$, предполагаем, что $\chi^{(x)} > \chi^{(y)}$. Кроме того, мы принимаем, что характерная величина поляризуемостей $|\chi^{(\alpha)}|$ по порядку величины близка к атомной поляризуемости изолированных атомов As, равной 4.83 \AA^3 [22]. Поэтому при расчете использованы значения $\chi^{(x)} = 8$ и $\chi^{(y)} = 4 \text{ \AA}^3$. Спектральная зависимость диэлектрической функции GaAs ε_3 (рис. 3) взята из [23]. Для толщины слоя естественного окисла d на поверхности (001) GaAs выбрано значение 24 \AA [24]. Поскольку оптические характеристики естественного окисла неизвестны, в расчете в качестве ε_2 была использована частотно-зависимая диэлектрическая функция анодного окисла на (100) GaAs из работы [25]. Диэлектрическая проницаемость воздуха $\varepsilon_1 = 1$.

Форма спектра, рассчитанного по формуле (6), весьма чувствительна к величине расстояния h между слоем диполей и границей раздела кристалл–окисел. Наилучшим образом результаты расчета (кривая 2 на рис. 4) совпадают с экспериментальным спектром анизотропного отражения окисленной поверхности (001) GaAs (кривая 1 на рис. 4) при значении $h = 0.582 \text{ \AA}$. Естественно предполагать, что $h \leq 0.5s$, где s — расстояние между слоями 1 и 2 атомов As (рис. 1, a). Величина s определяется конфигурацией электронных орбиталей атомов As переходного слоя 2, поскольку у слоя 1, принадлежащего кристаллу, конфигурация орбиталей фиксирована. При sp^3 -гибридизации электронных оболочек атомов в слое 2 величина s принимает максимальное значение 1.42 \AA , а при sp^2 -гибридизации — минимальное значение, равное 1.15 \AA . В обоих случаях соответствующие этим величинам s длины связей As–As не сильно отличаются от удвоенной величины ковалентного радиуса атома As, равной 2.4 \AA , поэтому оба указанных предельных значения s в принципе допустимы. Таким образом, полученная подгонкой величина h , обеспечивающая наилучшее согласие между рассчитанным и экспериментальным спектрами,

находится как раз в области значений $0.57 < h < 0.71 \text{ \AA}$, физически возможных с точки зрения гибридизации атомных орбиталей.

Некоторое расхождение результатов расчета и эксперимента выше 4.5 eV может быть связано с неточностью определения диэлектрической проницаемости окисного слоя, которая в ультрафиолетовой области сильно зависит от плотности окисла и количества аморфного мышьяка на интерфейсе [24]. Из-за отсутствия надежных оптических характеристик окисной пленки на $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$ количественный анализ спектра анизотропного отражения окисленной поверхности этого соединения (кривая 2 на рис. 2) не проводился.

5. Заключительные замечания

В данной работе представлены результаты изучения спектров анизотропного отражения света от естественно окисленных поверхностей (001) GaAs и AlGaAs. Основное внимание уделено объяснению двух характерных спектральных особенностей, наблюдающихся в диапазонах $1.6\text{--}2.9$ и $2.9\text{--}5 \text{ eV}$ соответственно. В рамках теории анизотропного отражения слоями диполей в многослойных средах показано, что эти спектральные особенности обусловлены эффектами локального поля в микроскопически тонком дипольно поляризуемом переходном слое на границе раздела (001) GaAs/окисел. На основе данных о химическом составе окисленной поверхности (001) GaAs предложена ее атомарная модель, в которой микродиполи, ответственные за эффекты локального поля, приписываются анизотропно поляризующимся ковалентным связям атомов мышьяка, образующих упорядоченный переходной слой между кристаллом и окислом. Существенно отметить, что согласно предложенной модели в этом переходном слое нет хемосорбированного кислорода, последний содержится только в виде окислов в аморфной поверхностной пленке.

Достигнутое хорошее согласие между экспериментальными и теоретическими спектрами свидетельствует о существенной роли эффектов локального поля в спектроскопии анизотропного отражения света от полупроводников A_3B_5 . В этой связи подчеркнем, что в тех случаях, когда поверхность полупроводника покрыта каким-либо диэлектриком (например, пленками окислов или пассивирующих атомов), получение данных о микроструктуре интерфейса является, как правило, серьезной проблемой. Поэтому с практической точки зрения данная работа существенно расширяет возможности спектроскопии анизотропного отражения для получения конкретных данных о структуре поверхности полупроводника под диэлектрическими покрытиями.

Авторы благодарят В.П. Улина за полезные обсуждения, а также признательны М. Лосурдо (Центр плазменных исследований Бари, Италия) за предоставление необходимых данных об окисленной поверхности арсенида галлия.

Приложение. Дипольные суммы для прямоугольной решетки

В квазистатическом приближении вклад в поле (5) прямых взаимодействий между оптически индуцированными диполями слоя $\mathbf{p} = \sum_{\alpha} \chi^{(\alpha)} \cdot E_{\alpha} \cdot \mathbf{e}_{\alpha}$, расположенными в узлах $\mathbf{r}_n = \mathbf{e}_x n_1 a + \mathbf{e}_y n_2 b + \mathbf{e}_z z_0$ плоской прямоугольной решетки в среде с диэлектрической проницаемостью ε_2 (рис. 3), можно представить в виде

$$\mathbf{E}^{(1)} = -\frac{1}{\varepsilon_2 a^3} \left\{ \eta^3 \left[S_0^{(1)}(\eta) - 3S_1^{(1)}(\eta) \right] \chi^{(x)} E_x \mathbf{e}_x + \left[S_0^{(1)}\left(\frac{1}{\eta}\right) - 3S_1^{(1)}\left(\frac{1}{\eta}\right) \right] \chi^{(y)} E_y \mathbf{e}_y + \dots \right\}. \quad (\text{A.1})$$

Здесь стоят зависящие от $\eta = a/b$ решеточные суммы

$$\left\{ S_0^{(1)}(\eta), S_1^{(1)}(\eta) \right\} = \sum'_{n_1, n_2 = -\infty}^{\infty} \frac{1}{(n_1^2 \eta^2 + n_2^2)^{3/2}} \left\{ 1, \frac{n_1^2 \eta^2}{n_1^2 \eta^2 + n_2^2} \right\}, \quad (\text{A.2})$$

в которых отсутствуют члены с $n_1 = n_2 = 0$, соответствующие самодействию.

Вклад индуцированных диполей изображения в поле (5) имеет вид

$$\mathbf{E}^{(2)} = -\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_3}{a^3 \varepsilon_2 (\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} \times \left\{ \eta^3 \left[S_0^{(2)}(\eta, H) - 3S_1^{(2)}(\eta, H) \right] \chi^{(x)} E_x \mathbf{e}_x + \left[S_0^{(2)}\left(\frac{1}{\eta}, \frac{H}{\eta}\right) - 3S_1^{(2)}\left(\frac{1}{\eta}, \frac{H}{\eta}\right) \right] \chi^{(y)} E_y \mathbf{e}_y + \dots \right\}, \quad (\text{A.3})$$

где зависящие от η и $H = 2h/b$ решеточные суммы выражаются формулами

$$\left\{ S_0^{(2)}(\eta), S_1^{(2)}(\eta) \right\} = \sum'_{n_1, n_2 = -\infty}^{\infty} \frac{1}{(n_1^2 \eta^2 + n_2^2 + H^2)^{3/2}} \left\{ 1, \frac{n_1^2 \eta^2}{n_1^2 \eta^2 + n_2^2 + H^2} \right\}. \quad (\text{A.4})$$

Решеточные суммы (A.2) и (A.4) вычисляются аналогично [18] при использовании следующей формулы:

$$\frac{1}{(A^2 + R^2)^z} = \frac{1}{\Gamma(z)} \int_0^{\infty} \exp[-t(A^2 + R^2)] t^{z-1} dt,$$

являющейся следствием интегрального представления гамма-функции $\Gamma(z)$, а также формулы суммирования Пуассона [25]. Это дает выражения

$$S_0^{(1)}(\eta) = \frac{16\pi}{\eta^2} \sum_{n_1=1}^{\infty} \sum_{n_2=1}^{\infty} \frac{n_1}{n_2} K_1 \left(\frac{2\pi}{\eta} n_1 n_2 \right) + \frac{4}{\eta} \zeta(2) + \frac{2}{\eta^3} \zeta(3),$$

$$S_1^{(1)}(\eta) = -\frac{\eta}{3} \frac{dS_0^{(1)}(\eta)}{d\eta} \quad (\text{A.5})$$

для сумм, входящих в А.2, и

$$S_0^{(2)}(\eta, H) = \frac{2\pi}{\eta H} \left\{ 1 + 2 \left(\sum_{n_1=0}^{\infty} \sum_{n_2=1}^{\infty} + \sum_{n_1=1}^{\infty} \sum_{n_2=0}^{\infty} \right) \cdot \exp \left[-2\pi H \sqrt{(n_1/\eta)^2 + n_2^2} \right] \right\},$$

$$S_1^{(2)}(\eta, H) = -\frac{\eta}{3} \frac{dS_0^{(2)}(\eta, H)}{d\eta} \quad (\text{A.6})$$

для сумм в выражении (А.4).

Список литературы

- [1] P. Chiaradia, G. Charotti. In: Photonic Probes of Surfaces. Electromagnetic Waves — Recent Developments in Research. Vol. 2 / Ed. by P. Halevi. Elsevier Science, Amsterdam (1995). Chap. 3, p. 99.
- [2] V.L. Berkovits, P. Chiaradia, D. Paget, A.B. Gordeeva, C. Goletti. Surf. Sci. **441**, 26 (1999); A.I. Shkrebtii, N. Esser, W. Richter, W.G. Schmidt, F. Bechstedt, A. Kley, R. Del Sole. Phys. Rev. Lett. **81**, 3, 721 (1998).
- [3] V.L. Berkovits, D. Paget. Thin Solid Films **233**, 9 (1993).
- [4] S.E. Acosta-Ortiz, A. Lastras-Martinez. Solid State Commun. **64**, 5, 809 (1987).
- [5] D.E. Aspnes. J. Vac. Sci. Technol. **B3**, 5, 1498 (1985).
- [6] D.I. Westwood, Z. Sobiesierski, C.C. Matthai, E. Steimetz, T. Zettler, W. Richter. J. Vac. Sci. Technol. **B16**, 4, 2358 (1998).
- [7] В.Л. Берковиц, В.Н. Бессолов, Т.В. Львова, Е.Б. Новиков, В.И. Сафаров, Р.В. Хасиева, Б.В. Царенков. ФТП **25**, 7, 1406 (1991).
- [8] T. Nakayama. Phys. Stat. Sol. (b) **202**, 2, 741 (1997); M. Murayama, K. Shiraishi, T. Nakayama. Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 7, 4109 (1998).
- [9] S.E. Acosta-Ortiz. J. Appl. Phys. **70**, 6, 3239 (1991).
- [10] В.Л. Берковиц, А.Б. Гордеева, В.М. Лантратов, Т.В. Львова. ФТП **42**, 5, 950 (2000).
- [11] N. Kar, A. Bagchi. Solid State Commun. **33**, 6, 645 (1980); A. Bagchi, R.G. Barrera, B.B. Dasgupta. Phys. Rev. Lett. **44**, 22, 1475 (1980).
- [12] A. Bagchi, R.G. Barrera, R. Fuchs. Phys. Rev. **B25**, 12, 7086 (1982).
- [13] W.L. Mochan, R.G. Barrera. Phys. Rev. Lett. **56**, 20, 2221 (1986).
- [14] P. Ye, Y.R. Shen. Phys. Rev. **B28**, 8, 4288 (1982).
- [15] W.L. Mochan, R.G. Barrera. Phys. Rev. Lett. **55**, 11, 1192 (1985).
- [16] I. Gerard, C. Debienne-Chouvy, J. Vigneron, F. Bellenger, S. Kostelitz, A. Etcheberry. Surf. Sci. **433–435**, 131 (1999).
- [17] W. Chen, M. Dumas, D. Mao, A. Kahn. J. Vac. Sci. Technol. **B10**, 4, 1886 (1992).
- [18] B.M.E. Van der Hoff, G.C. Benson. Can. J. Phys. **31**, 1087 (1953); B.R.A. Nijboer, F.D. de Wette. Physica **23**, 309 (1957). **24**, 422 (1958); G.D. Mahan, A.A. Lucas. J. Chem. Phys. **68**, 1344 (1978).
- [19] В.А. Кособукин. ФТП **36**, 10, 3015 (1994).
- [20] В.А. Кособукин. Препринт ФТИ № 1724, СПб. (1999). 64 с.
- [21] M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, J. Massies, P. Claverie, N. Jedrecy, J. Bonnet, I.K. Robinson. Phys. Rev. Lett. **62**, 5, 563 (1989).
- [22] I. Vasiliev, S. Ogut, J.R. Chelikowsky. Phys. Rev. Lett. **78**, 25, 4805 (1997).
- [23] D.E. Aspnes, A.A. Studna. Phys. Rev. **B27**, 2, 985 (1983).
- [24] D.E. Aspnes, G.P. Schwartz, G.J. Gualtieri, A.A. Studna, B. Schwartz. J. Electrochem. Soc. **128**, 3, 591 (1981).
- [25] Ф.М. Морс, Г. Фешбах. Методы теоретической физики. Т. I. ИИЛ, М. (1958). 930 с.