

## Краткие сообщения

11

### О диффузионных длинах адатомов Ga на поверхностях AlAs(111) и GaAs(111)

© Н.В. Сибирев,<sup>1</sup> В.Г. Дубровский,<sup>1</sup> Е.Б. Аршанский,<sup>1</sup> Г.Э. Цырлин,<sup>1,2</sup>  
Ю.Б. Самсоненко,<sup>1,2</sup> В.М. Устинов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский физико-технологический научно-образовательный центр РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: NickSibirev@yandex.ru

<sup>2</sup> Институт аналитического приборостроения РАН,  
190103 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 28 апреля 2008 г.)

Получено уравнение, позволяющее рассчитывать эффективную диффузионную длину по измеренным значениям высоты и плотности нитевидных нанокристаллов в рамках диффузионной модели роста. На основе экспериментальных данных по выращиванию нитевидных нанокристаллов GaAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии проведена оценка диффузионных длин адатомов Ga по поверхностям GaAs(111) и AlAs(111). Показано, что при типичных условиях осаждения диффузионная длина Ga составляет величину порядка нескольких сотен нанометров.

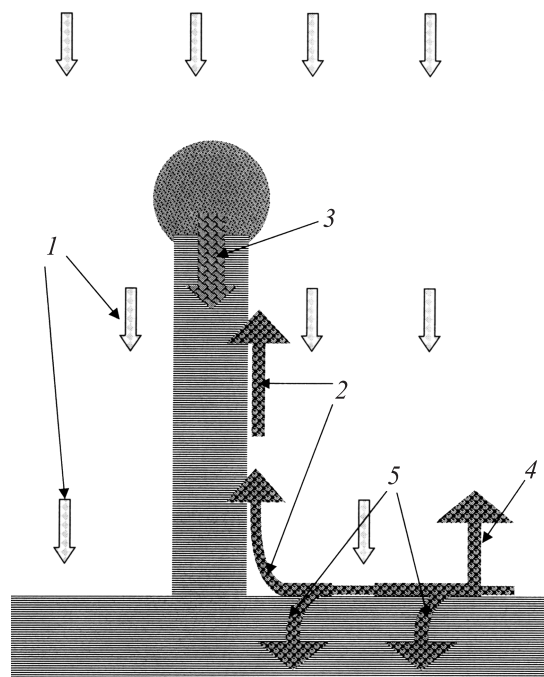
PACS: 68.70.+w, 68.43.Jk, 61.46.Nk

Эффективная диффузионная длина пробега  $\lambda$  определяется как среднеквадратичное расстояние, на которое перемещается адатом за время жизни на поверхности. Диффузионная длина является важным физическим параметром, влияющим на процесс роста и морфологию нитевидных нанокристаллов (ННК) [1–8], квантовых точек [9,10] и тонких пленок [11,12]. В частности, в работах [1–8] было показано, что доминирующим механизмом формирования ННК различных полупроводниковых соединений III–V, выращиваемых с использованием Au катализатора [13], является диффузионный сбор адатомов с поверхности подложки. При этом диффузионная длина определяет высоту ННК при данных условиях осаждения. Предварительные оценки дали значения  $\lambda$  порядка нескольких десятков нанометров для адатомов Ga на поверхности GaAs(111)В при температуре поверхности  $T = 560^\circ\text{C}$  [1,3] и 100–200 nm для адатомов In на поверхности InAs(111)В при  $T = 405\text{--}445^\circ\text{C}$  [2,3].

В настоящей работе предложен новый способ определения диффузионной длины на основе диффузионной модели роста ННК [1].

Для построения теоретической модели необходимо рассчитать диффузионный поток с подложки на вершину ННК (рис. 1). Для этого рассмотрим процессы, происходящие на поверхности подложки, применительно к случаю молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ). Очевидно, любой атом, поступивший на подложку из молекулярного пучка, захватывается квазидвумерным поверхностным слоем либо испаряется, либо уходит на боковую грань ННК. Процессы роста подложки и

десорбции совместно определяют эффективное время жизни адатома на поверхности  $\tau_s$ . Поэтому диффузионная длина на поверхности подложки  $\lambda_s = (D_s \tau_s)^{1/2}$  ( $D_s$  — соответствующий коэффициент диффузии) зави-



**Рис. 1.** Модель диффузионного роста ННК: 1 — молекулярный пучок, доставляющий материал на подложку, 2 — диффузия адатомов с поверхности в каплю, 3 — рост ННК, 4 — десорбция, 5 — встраивание адатомов в подложку.

сит от вероятностей десорбции и встраивания. Считая, что все адатомы, пришедшие к основанию ННК, успевают достичь вершины не испарившись [1–4], запишем стационарные уравнения диффузии для концентрации адатомов на поверхности подложки ( $n_s$ ) и на боковых гранях ННК ( $n_f$ ) в виде

$$D_s \Delta n_s + J - \frac{n_s}{\tau_s} = 0; \quad (1)$$

$$\frac{d^2 n_f}{dz^2} = 0. \quad (2)$$

Здесь  $\Delta$  — двумерный оператор Лапласа (с учетом радиальной симметрии)

$$\Delta n_s = \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \frac{dn_s(r)}{dr} \right),$$

$r$  — расстояние от центра ННК до точки наблюдения, ось  $z$  направлена параллельно ННК.

Общее решение уравнений (1), (2) имеем вид

$$n_s(r) = J\tau_s + c_1 I_0(r/\lambda_s) + c_2 K_0(r/\lambda_s); \quad (3)$$

$$n_f(z) = a_1 + a_2 z. \quad (4)$$

Здесь и далее  $I_m$  и  $K_m$  есть модифицированные функции Бесселя порядка  $m$  в стандартных обозначениях,  $I$  — возрастающие,  $K$  — убывающие на бесконечности. Для определения четырех констант в (3), (4) необходимо четыре граничных условия, которые выбираются следующим образом [1].

1) Обращение в нуль потока адатомов на границе питающей полосы:

$$\left. \frac{dn_s}{dr} \right|_{r=R_W} = 0, \quad (5)$$

где величина  $R_W = 1/\sqrt{\pi N_W}$  по порядку величины есть половина среднего расстояния между центрами ННК.

2) Условие равенства потоков адатомов у основания ННК:

$$D_s \left. \frac{dn_s}{dr} \right|_{r=R} = -D_f \left. \frac{dn_f}{dz} \right|_{z=0}. \quad (6)$$

3) Условие непрерывности химических потенциалов адатомов на границе ННК и подложки:

$$\sigma_s n_s(R) = \sigma_f n_f(0). \quad (7)$$

Здесь  $\sigma_s$ ,  $\sigma_f$  — площади адсорбционных мест на основной и боковой поверхности. В (7) учтено, что химический разреженной системы адатомов равен  $\ln(\sigma n)$ .

4) Условие обращения в нуль концентрации адатомов на границе с каплей:

$$n_f(L) = 0, \quad (8)$$

где  $L$  — длина ННК.

Подстановка (5)–(8) в (3), (4) позволяет определить все неизвестные константы. Диффузионный поток на вершину ННК, определенный, согласно

$$j_{\text{diff}}(L) = -D_f 2\pi R \left. \frac{dn_f}{dz} \right|_{z=L},$$

равен

$$j_{\text{diff}}(L) = 2\pi R J \lambda_s \frac{U'(R/\lambda_s)}{\frac{D_s}{D_f} \frac{\sigma_f}{\sigma_s} \frac{L}{\lambda_s} U'(R/\lambda_s) - U(R/\lambda_s)}, \quad (9)$$

где  $U(x) = K_1(R_W/\lambda_s)I_0(x) + I_1(R_W/\lambda_s)K_0(x)$ .

Рассчитав диффузионный поток, нетрудно найти скорость вертикального роста ННК в чисто диффузионном режиме, когда вклад за счет прямого попадания на поверхность капли пренебрежимо мал [1]:

$$\frac{\pi R^2}{\sigma_s h} \frac{dL}{dt} = j_{\text{diff}}(L). \quad (10)$$

Здесь и далее  $h$  есть высота монослоя. Проинтегрировав (10), получим искомое уравнение для определения эффективной диффузионной длины на поверхности подложки:

$$\frac{D_s}{D_f} \frac{\sigma_f}{\sigma_s} \frac{L^2}{2\lambda_s^2} - \frac{U(R/\lambda_s)}{U'(R/\lambda_s)} \frac{L}{\lambda_s} = 2 \frac{H_{\text{eff}}}{R}. \quad (11)$$

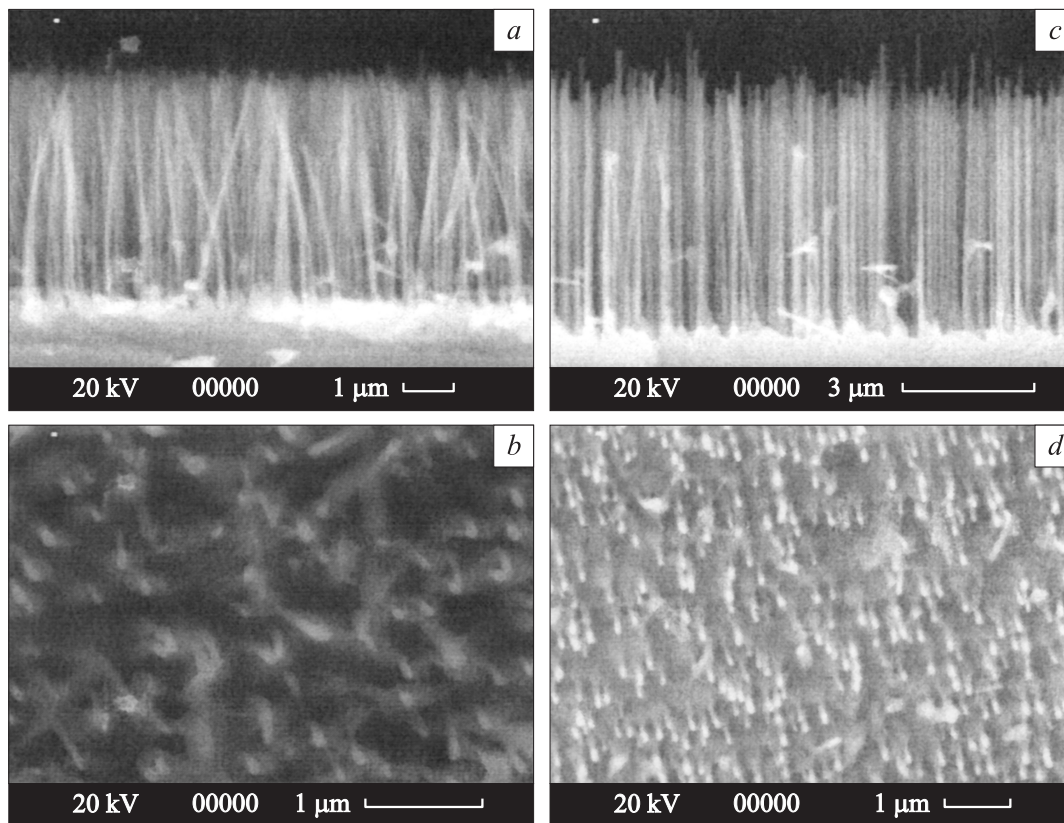
Зная длину ННК, технологически контролируемые параметры осаждения и эффективную толщину осаждения  $H_{\text{eff}} = hJ\sigma_s t$ , по формуле (11) легко найти значение  $\lambda$ . Для достаточно тонких ННК всегда выполнено условие  $R/\lambda_s \ll 1$ . Тогда вместо  $U(x)$  можно воспользоваться асимптотикой  $U(x) \approx K_1(R_W/\lambda_s) + I_1(R_W/\lambda_s) \ln(x)$ ,  $U'(x) \approx K_1(R_W/\lambda_s)x/2 + I_1(R_W/\lambda_s)/x$ , откуда при разумных значениях плотности ННК ( $R_W$  больше или порядка  $\lambda_s$ ) получаем  $U(x)/U'(x) = x \ln(x)$ . Учитывая также, что  $L \gg R$ , уравнение (11) преобразуется к виду

$$\frac{D_s}{D_f} \frac{\sigma_f}{\sigma_s} \frac{L^2}{2\lambda_s^2} - \frac{LR}{\lambda_s^2} \ln(R/\lambda_s) = 2 \frac{H_{\text{eff}}}{R}. \quad (12)$$

Для определения диффузионной длины адатомов Ga на различных поверхностях на основе полученного уравнения (12) были поставлены следующие ростовые эксперименты МПЭ. На установке ЭП1203 выращивались два образца по трехстадийной методике, описанной более подробно в [8]. После термического удаления поверхностного окисного слоя с подложки GaAs(111)В, температура понижалась до 610°C и выращивался буферный слой GaAs толщиной примерно 100 nm. Затем на одном из образцов при той же температуре выращивался слой AlAs толщиной 10 nm. Последующее осаждение GaAs проводилось на обоих образцах по одинаковой схеме. Температура подложки понижалась до 560°C, и в отсутствие потока As наносился тонкий слой Au (толщиной  $\sim 1$  nm) из эффузионной ячейки при температуре 1200°C в течение 1 min с последующей

Параметры исследуемых образцов с GaAs ННК

№	Подложка	$H_{\text{eff}}$ , nm	$D_s/D_f$	$\sigma_f/\sigma_s$	$R$ , nm	$L$ , nm	$R_W$ , nm	$\lambda_s$ , nm
1	AlAs	504	0.1	0.826	36	5140	205	260
2	GaAs	504	0.1	0.826	46	5640	202	425



**Рис. 2.** РЭМ-изображения ансамблей GaAs ННК, выращенных на поверхности GaAs(111) (*a* — вид сбоку, *b* — вид сверху) и AlAs(111) (*c* — вид сбоку, *d* — вид сверху).

выдержкой в течение еще 1 min. Далее, при той же температуре осуществлялся МПЭ рост GaAs при скорости роста по Ga, равной 1 monolayer/s, продолжительностью 30 min. По окончании роста подложка охлаждалась и извлекалась из камеры роста.

Морфология выращенных образцов исследовалась методом растровой электронной микроскопии (РЭМ). В таблице представлены результаты измерений, полученных в результате анализа РЭМ изображений выращенных образцов (рис. 2), а также расчетные значения диффузионных длин. Значения параметров  $h = 0.283$  nm,  $\sigma_s = 0.553$  nm<sup>2</sup>,  $\sigma_f = 0.457$  nm<sup>2</sup>,  $D_s/D_f = 0.1$ , использованные при вычислениях, соответствуют данным [14].

Проведенные расчеты дают значение диффузионной длины адатомов Ga  $\lambda = 260$  nm на поверхности AlAs(111) и 425 nm на поверхности GaAs(111) при  $T = 560^\circ\text{C}$ , что на порядок выше, чем полученные ранее оценки [1,4]. Отличие выражения (12) от [1–4] состоит в том, что в [1–4] использовалось упрощающее предположение о бесконечной скорости диффузии на

боковых гранях ННК. Соответственно в формуле (12) пренебрегалось первым слагаемым в левой части, которое для рассмотренных экспериментальных результатов даже превосходит второе (учтенное в [1–4]). В обоих случаях диффузионная длина лимитирована нуклеацией на подложке, а не десорбцией, поскольку диффузионная длина одиночного адатома Ga на поверхности GaAs(111) составляет несколько микрон [15]. Уменьшение диффузионной длины на поверхности AlAs(111) по сравнению с GaAs(111) при идентичных условиях роста, по-видимому, объясняется более высокой энергией связи в твердом растворе AlGaAs [14]. Полученные результаты могут быть использованы для расчетов морфологии и кристаллической структуры GaAs ННК, что будет являться предметом отдельных сообщений.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ, научными программами РАН и грантом Федерального агентства по науке и инновациям. Один из авторов (Н.В.С.) благодарен фонду „Династия“ за финансовую поддержку работы.

## Список литературы

- [1] Дубровский В.Г., Сибирев Н.В., Сурис Р.А., Цырлин Г.Э., Устинов В.М., Tchernycheva M., Harmand J.C. // ФТП. 2006. Т. 40. Вып. 9. С. 1103.
- [2] Fröberg L.E., Seifert W., Johansson J. // Phys. Rev. B. 2007. Vol. 76. P. 153 401.
- [3] Persson A.I., Fröberg L.E., Jeppesen S., Björk M.T., Samuelson L. // J. Appl. Phys. 2007. Vol. 101. P. 034 313.
- [4] Dubrovskii V.G., Sibirev N.V., Suris R.A., Cirlin G.E., Harmand J.C., Ustinov V.M. // Surf. Sci. 2007. Vol. 601. P. 4395.
- [5] Dubrovskii V.G., Sibirev N.V. // J. Cryst. Growth. 2007. Vol. 304. P. 504.
- [6] Tchernycheva M., Travers L., Patriarche G., Harmand J.C., Cirlin G.E., Dubrovskii V.G. // J. Appl. Phys. 2007. Vol. 102. P. 094 313.
- [7] Dubrovskii V.G., Soshnikov I.P., Sibirev N.V., Cirlin G.E., Ustinov V.M. // J. Cryst. Growth. 2006. Vol. 289. P. 31.
- [8] Dubrovskii V.G., Cirlin G.E., Soshnikov I.P., Tonkikh A.A., Sibirev N.V., Samsonenko Yu.B., Ustinov V.M. // Phys. Rev. B. 2005. Vol. 71. P. 205 325.
- [9] Ledentsov N.N., Shchukin V.A., Bimberg D., Ustinov V.M., Cherkashin N.A., Musikhin Yu.G., Volovik B.V., Cirlin G.E., Alferov Z.I. // Semicond. Sci. Technol. 2001. Vol. 16. P. 502.
- [10] Abstreiter G., Schittenhelm P., Engel C., Silveria E., Zrenner A., Meertens D., Jäger W. // Semicond. Sci. Technol. 1996. Vol. 11. P. 1521.
- [11] Бельский В.З. Геометрико-вероятностные модели кристаллизации. М.: Наука, 1980. 88 с.
- [12] Кукушкин С.А., Осипов А.В. // УФН. 1998. Т. 168. С. 1083.
- [13] Wagner R.S., Ellis W.C. // Appl. Phys. Lett. 1964. Vol. 4. P. 89.
- [14] Landolt-Börnstein-Group III Condensed Matter. Vol. 41A1a. Springer-Verlag, 2006.
- [15] Koshiba S., Nakamura Y., Tsuchiya M., Noge H., Kano H., Nagamune Y., Noda T., Sakaki H. // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 76. P. 4138.