

Simulation in situ par RHEED et photoémission de la reconstruction $\alpha 2$ (2x4) de InAs(001) avec la méthode de Monte Carlo cinétique

H. Khachab^{1,*}, Y. Abdelkafi¹, A. Belghachi¹ et M. Barhmi²

¹ *Laboratoire de Physique des Dispositifs à Semiconducteur (LPDS), Université de Béchar, Algérie.*

² *Laboratoire de Fiabilité des Matériaux et Structures (FIMAS), Université de Béchar, Algérie.*

*Email : khachab_hamid_2000@yahoo.fr

RÉSUMÉ

L'épitaxie par jets moléculaires EJM (Molecular Beam Epitaxy en anglais) est une technique de croissance cristalline. Elle est utilisée de manière classique en homoépitaxie des composants III-V. L'avantage de cette technique de croissance est qu'elle est la technique la plus récente et la plus prometteuse par rapport aux autres techniques parce qu'elle repose sur le contrôle et la possibilité de suivre la croissance en temps réel grâce à l'utilisation in situ de l'intensité RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) et aussi elle permet un très bon contrôle des épaisseurs des couches très minces et avec une excellente qualité.

Notre étude porte sur ce point qui est la modélisation et la simulation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires particulièrement la homoépitaxie de InAs(001) en utilisant la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC) et la caractérisation in situ (en temps réel) par la photoémission et la diffraction RHEED.

MOTS – CLÉS : MBE, InAs(001), RHEED, Photoémission, Reconstruction, Monte-Carlo Cinétique.

1. Introduction

L'Épitaxie, par Jets Moléculaires (EJM ou MBE pour Moléculaire Beam Epitaxy), est une technique de croissance cristalline qui permet d'élaborer des hétérostructures composées d'empilements de très faibles épaisseurs de matériaux différents, avec une excellente qualité cristalline. Cette technique est particulièrement adaptée au cas des semi-conducteurs de type III-V comme le GaAs [1-3]

L'étude de la surface de (001) a fait l'intérêt de plusieurs études expérimentales et théoriques depuis quelques années car elle fait l'élément de base dans la structure de la plus part des composants électroniques multicouches [4,5].

L'objectif de notre travail est de modéliser et simuler la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) du InAs(001) en se basant sur le modèle de la reconstruction $\beta 2$ (2x4) de GaAs(001) [4,6]. Ce modèle inclut tous les détails microscopiques tel que : les processus atomistiques de la croissance des îlots, la reconstruction de surface, la structure zinc blende de cristal, et les différentes propriétés cinétiques de la croissance, etc. On a utilisé dans cette simulation un flux composé d'atomes Ga et les molécules As₂. Dans la deuxième partie, on a effectué une caractérisation de type in situ (en temps réel) avec la technique de diffraction RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) et le courant de photémission.

2. Modèle de la reconstruction de la surface $\beta 2$ (2x4) de GaAs(001)

La face (001) est la plus importante surface dans les matériaux III-V, car elle est la plus communément utilisée dans les hétéro-structures à base de ce type de composés [4-7].

Pour la croissance homoépitaxiale de GaAs (001), Itoh a présenté un modèle très compliqué basé sur la structure de zinc blende (001). Mais cette approche est contrainte car elle est adaptée à une seule reconstruction structurelle de type $\beta 2$ (2x4) de GaAs (001) [6] (Figure 1).

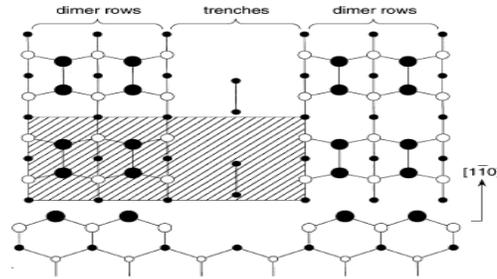


Figure 1 : Vues du plan de la reconstruction β_2 (2x4) de l'arséniure de gallium (0 0 1) [4].
Les cercles remplis comme les atomes et les milieux ouverts représentent des atomes de Ga.

Les processus inclus dans le modèle de Itoh sont : les dépôts, la migration des atomes de Ga, les dépôts des molécules As_2^* dans l'état de précurseur, l'incorporation As_2 , l'adsorption, la dissociation de As_2^* de GaAs et la formation et les migrations de As_2 [6].

La chronologie de tous les processus cinétiques de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) est [4-9] :

1. Dépôts aléatoire des atomes de Ga.
2. Diffusion des atomes de Ga sur la surface.
3. Incorporation des atomes de Ga.
4. Flux de As_2 en état de précurseur et devenir As_2^* .
5. Absorption (incorporation) de As_2 dans la surface et considérés comme As_2 .
6. Désorptions de As_2^* ; il y en a deux événements de désorption de As_2^* avec deux taux :
 - a) Désorptions vers le vide.
 - b) Adsorption d'une surface à état précurseur (réservoir).
7. Diffusion en tant que monomères après la rupture de la caution As.

3. Méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)

La méthode de Monte Carlo Cinétique (MCC ou KMC) est une technique de simulation d'un système de N particules. La MCC se base sur l'algorithme du temps de résidence inventé par Bortz, Kalos et Lebowitz, et connue par l'algorithme BKL qui est défini comme un outil bien adapté pour étudier les cinétiques de transformation de phase à l'échelle atomique [7,10].

L'utilisation de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des processus cinétiques a été débutée depuis plus 35 ans. Mais l'évolution de programmes de croissance cinétique par base sur cet algorithme s'est développée en 1994. Ces simulations sont appelées à partir de cette date (1994) simulation KMC. L'évolution de programmes de croissance cinétique sont alors développées depuis 1994 prenant en compte également tous les ingrédients physiques essentiels à la croissance (dépôt, diffusion, absorption, désorption,...) d'un point de vue atomique [4-11].

Dans la méthode de MCC les changements de configuration doivent correspondre aux événements réels. Chacun de ces événements peut se produire avec une certaine probabilité par unité de temps.

4. Algorithme de Monte Carlo cinétique

On peut résumer une simulation Monte Carlo Cinétique en dix étapes, répétés plusieurs fois jusqu'au le temps de simulation s'atteint [4,5] :

- a. Ajuster le temps = 0 .
- b. Recensement des taux r_i de toutes les transitions possibles W_i du système, d'où $i = 1, \dots, N$ (avec N est le nombre total des transitions).
- c. Calculer la fonction de cumulation $R_i = \sum_{j=1}^i r_j$.
- d. Générer un nombre aléatoire uniforme $u \in [0,1]$.

- e. Trouver l'événement i qui s'est produit ; il est tiré aléatoirement et uniformément selon les probabilités r_i . Cet événement est donc choisi comme : $R_{i-1} < u R \leq R_i$ (avec $R = R_N$).
- f. Exécuter l'événement i .
- g. Trouvez tous les W_i et recalculer tous r_i qui se changent durant la transition.
- h. Générer un nouveau nombre aléatoire uniforme $u \in [0,1]$.
- i. Incrémenter le temps $t = t + \Delta t$ avec $\Delta t = -\frac{\log(u)}{R}$.
- j. Revenir à l'étape b.

Toutes ces étapes sont schématisées dans la figure 2 qui représente l'organigramme de l'algorithme de Monte Carlo cinétique (KMC) [4,5,12]

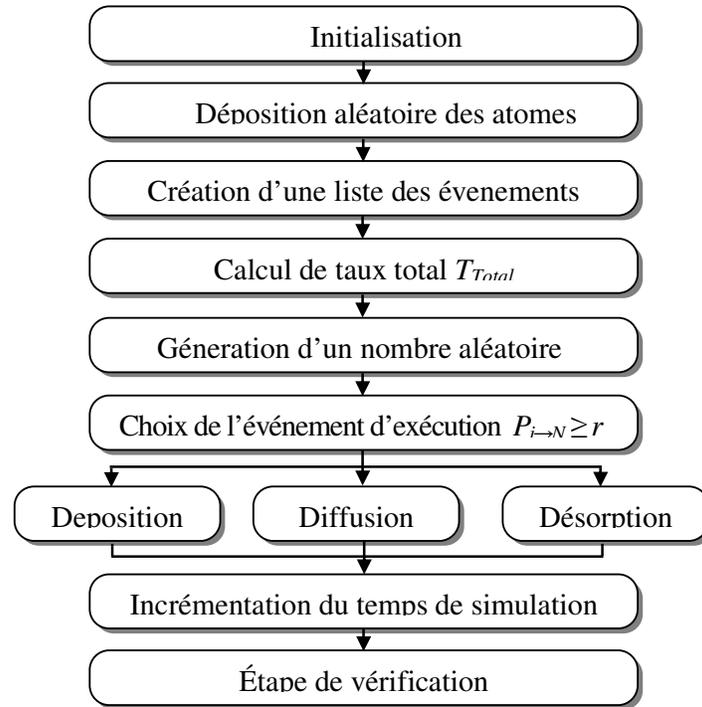


Figure 2 : Principe de calcul de la simulation de la reconstruction de la surface β_2 (2x4) du GaAs(001) par la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC) [14].

5. Structure de InAs(001)

Suivant à des observations obtenues par STM, Yamaguchi et Horikoshi ont montré que la surface de InAs(001) est semblable à une structure de GaAs(001). Cette structure se compose de deux formes atomiques ; la première est la reconstruction β_2 (2x4) ordinaire, tandis que l'autre est composé par des franches (lignes simples) des dimers d'Arsenic [6].

Yamaguchi et Horikoshi ont proposé une nouvelle structure atomique appelée α_2 (2x4), qui est représentée sur la Figure 3.

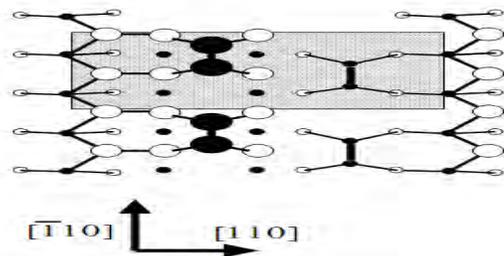
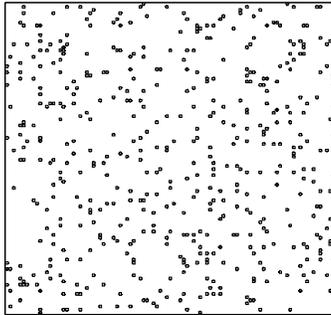


Figure 3 : Reconstruction de la surface β_2 (2 x 4) de InAs(001) [4].

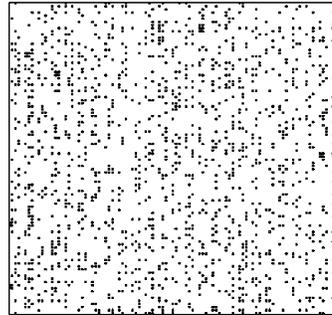
6. Résultats de simulation

6.1. Morphologie de la surface

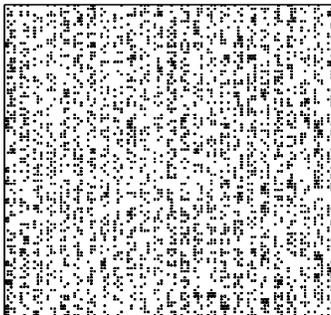
Les figures ci-dessous représentent des images de morphologie d'une surface InAs(001) de taille (100x100) obtenus par simulation Monte Carlo Cinétique dans les conditions typiques de MBE (flux In=0.1 ML/S, flux As=0.4 ML/S et T=385°C).



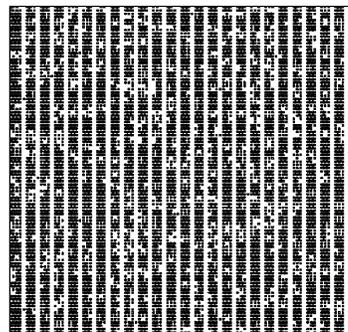
(a) Déposition initial des atomes In



(b) Déposition des atomes As



(c) Diffusion des atomes In et As
(paire dimère As)



(d) Diffusion des atomes In et As

Figure 4 : Evolution de la morphologie de la surface épitaxiée d'un cluster de (100x100) de InAs obtenu à une température de 385 °C.

La figure 4 représente l'évolution en fonction du temps de la morphologie de la surface épitaxiée de la reconstruction α_2 (2x4) de InAs(001) d'un cluster de (100x100) atomes au cours de déposition de deux couches diatomiques (3 couches monoatomiques).

Les figures 4 (a) – (d) montrent que les clusters formés sont composés par des tranches.

Les processus de croissance commencent par la déposition aléatoire de 10% des atomes de In.

Dans la figure 4(b), nous observons une création des dimères As_2 , qui sont résidés dans des tranches après qu'ils se forment des paires de dimères : figure 4 (c) – (d).

La reconstruction débute par une croissance de couche par couche puis elle change la forme vers une croissance en 3 dimensions après la déposition de plusieurs couches. Ce type de croissance est appelé « Step flow » [4,5].

6.2. Simulation in situ par RHEED et photoémission

Pour examiner la validité des résultats de simulation Monte Carlo Cinétique, on a effectué une simulation in situ par RHEED et photoémission. Ces types de techniques sont très utilisés pour suivre l'évolution de la morphologie de surface durant la croissance.

a). Calcul de l'intensité RHEED

L'étude de l'intensité de la tâche spéculaire au cours de la croissance a montré une évolution dans le temps liée au mode de croissance.

L'intensité RHEED peut être exprimée par le module au carré de la différence entre le taux de couverture θ des couches paires et impaires à la surface [13] :

$$I_{\text{RHEED}} = |\sum_n (\theta_n - \theta_{n+1}) (-1)^n|^2 \quad (1)$$

Où :

θ_n, θ_{n+1} représentent les taux de couverture correspondant respectivement a des plans adjacents d'atomes du groupe III et d'atomes du groupe V (c'est-à-dire les couches n et n+1 (respectivement)).

b). Phénomène de photoémission

Le phénomène de photoémission dépend de la nature chimique et structurale des atomes absorbés [14]. Le courant de photoémission est proportionnel au nombre de liaisons pendantes des atomes de Ga vu qu'expérimentalement la croissance s'opère dans des conditions riches en Arsenic et donc se sont les atomes de Ga qui contrôlent la croissance. En plus les atomes de Ga sont plus électropositifs que les atomes de As ce qui implique une décroissance de l'énergie de surface et donc une émission importante de photoélectrons [14,15].

6.2.1. Caractérisation in situ par RHEED

Les figures 5 et 6 montrent la simulation de la variation de l'intensité RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques et du temps (respectivement) de la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50)) dans les conditions suivant : (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

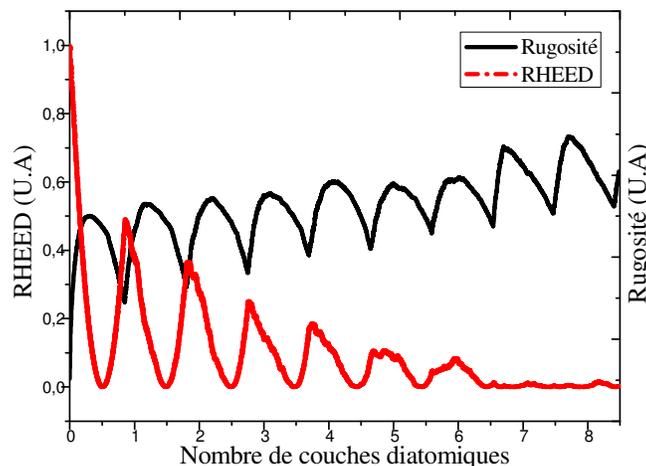


Figure 5: Variation des oscillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50)) (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

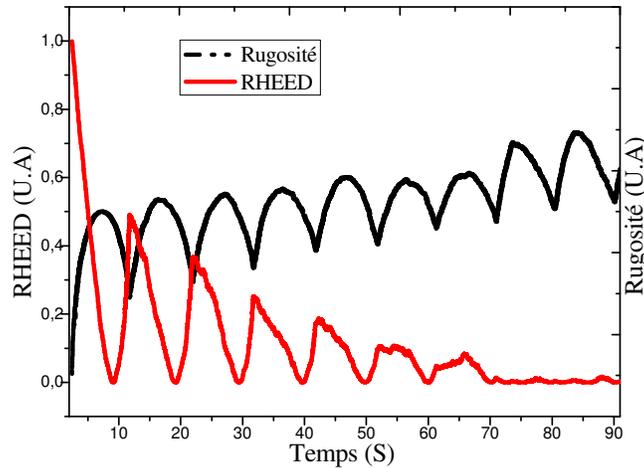


Figure.6: Variation des scillations RHEED et de la rugosité de la surface en fonction du temps de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) (substrat de (50x50)) (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

Les figures 5 et 6 montrent que l’amplitude des oscillations RHEED décroît avec le temps (nombre de couche diatomique) car les couches ne se forment pas et on remarque successivement, que la deuxième couche peut commencer à croître avant que la première couche ne soit complète. Il y’a donc augmentation de la rugosité au cours du temps [4].

Dans notre simulation on observe la création de plusieurs couches en même temps (création de 2 à 5 couches diatomiques à la fois). Ce qui est bien observé dans la figure 7 qui représente la variation du taux de couverture en fonction du temps.

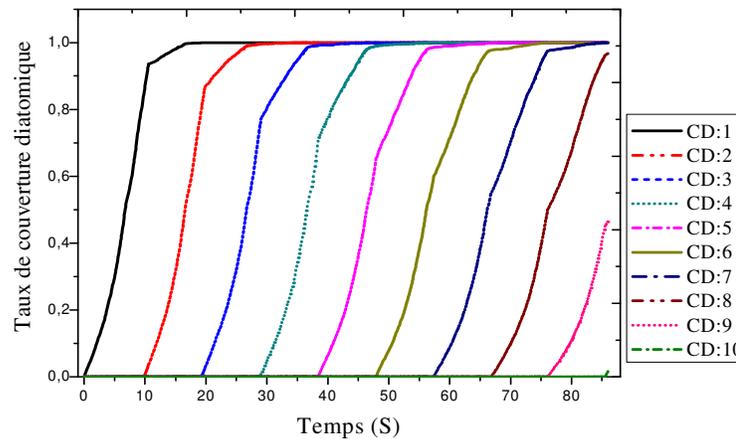


Figure 7 : Variation du taux de couverture des couches diatomiques déposées d’InAs (001) en fonction du temps à une température de 385°C. (substrat 80x80) (flux_In=0.1ML/S, flux_As=0.4 ML/S)

La figure 7 représente la variation du taux de recouvrement des couches monoatomiques (In,As) de la reconstruction de la surface α_2 (2x4) de InAs (001) en fonction du temps.

La figure 7 montre la création de 5 couches en même temps, mais avec un taux de couverture différents à chaque instant. Ceci traduit également un régime dit de « step-flow » [12].

Il y’a donc une augmentation de la rugosité moyenne au cours du temps. Dans ce type de croissance (step flow), la rugosité n’augmente pas mais les oscillations disparaissent car la croissance se fait par avancées de marches

Donc on peut dire que ce type de croissance peut changer leur aspect avec le temps, on parle ici de perdre de deux dimensionnalités de croissance (Figures 5 et 6).

6.2.2. Caractérisation in situ par Photoémission

Sur les figures 8 et 9, nous avons reporté la variation du courant de photoémission de la reconstruction $\alpha 2$ (2x4) d'InAs (001) en fonction du temps et du nombre de couches diatomiques (respectivement).

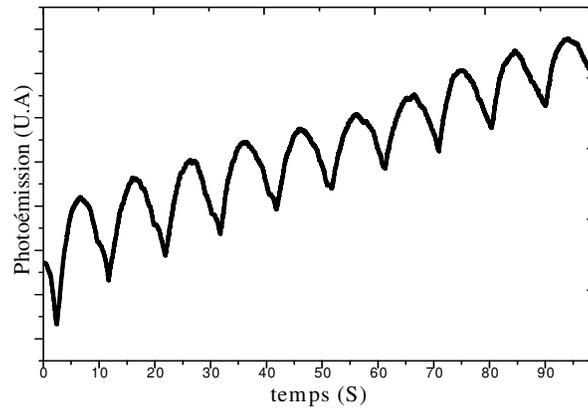


Figure 8: Variation des oscillations RHEED et de la photoémission en fonction du temps de la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) de InAs (001) (flux d' $As_2=0.4$ MI/s , flux de In=0.1 MI/s)

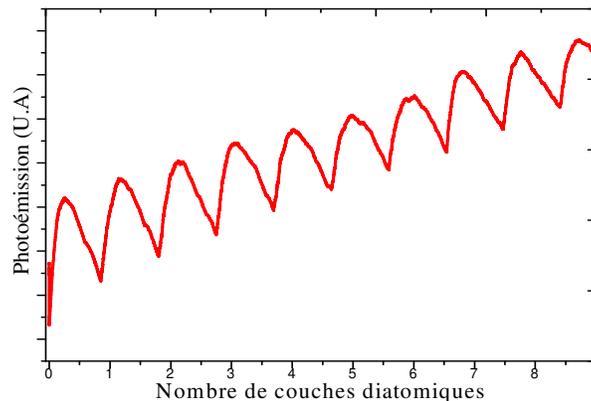


Figure 9: Variation des oscillations RHEED et de la photoémission en fonction nombre de couches diatomiques de la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) de InAs (001) (flux d' $As_2=0.4$ MI/s , flux de In=0.1 MI/s)

Les figures 8 et 9 montrent une augmentation plus rapide du courant de photoémission qui est justifié par l'augmentation du nombre de liaisons due au transfert de charge à partir d'une surface d'atomes In sur une surface d'atomes As. Cela indique que la croissance de InAs se fait par formation d'îlots tridimensionnels. On note que expérimentalement, les conditions d'élaboration de couches de InAs sont extrêmement difficiles [14,16].

Nous observons aussi que le maximum des oscillations de la photoémission se coïncide avec une demie couche diatomique et le minimum avec une couche diatomique [16] (le cas contraire avec le signal de RHEED) avec un petit décalage.

En comparant l'intensité RHEED avec celle du courant de photoémission, on remarque que ces deux oscillations ont la même période qui correspond à une couche diatomique.

7. Conclusion

Le travail rapporté ici permet la modélisation et la simulation à l'échelle atomique de la croissance homoépitaxiale de InAs par jets moléculaires ; particulièrement la reconstruction de la surface $\alpha 2$ (2x4) de InAs (001) à l'aide de la technique de Monte Carlo Cinétique. Il permet aussi la caractérisation in situ par RHEED et la photoémission de la morphologie de surface formée.

Dans cette étude nous avons pris en compte toutes les processus de croissance : dépôt, diffusion, incorporation, absorption et désorption des atomes de In et de As.

Ce travail a permis de confirmer que la croissance de la reconstruction de surface de InAs débute par une croissance de couche par couche puis elle change la forme vers une croissance en 3 dimensions après la déposition de plusieurs couches. Ce type de croissance est appelé « Step flow ».

Références :

1. RF.C. Farrow ; 'Molecular beam epitaxy' ; Noyes publications (1995).
2. G. Müller, J. J. Métois et P. Rudolph ; 'Crystal Growth' ; Elsevier (2004).
3. K. Byrappa et T. Ohachi ; 'Crystal Growth technology' ; Springer (2002).
4. Hamid Khachab ; "Modélisation de la croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE) avec la méthode de Monte Carlo cinétique (KMC)" ; thèse de doctorat ; université de Tlemcen (2010).
5. Yamani Abdelkafi ; 'Modélisation et simulation de l'épitaxie par jets moléculaires' ; Mémoire de magister ; Université de Béchar (2009).
6. M. Itoh ; 'Atomic-scale homoepitaxial growth simulations of reconstructed III-V surfaces', Progress in Surface Science **66**, Elsevier 53-153 (2001).
7. Andrea C. Levi et Miroslav Kotrla ; 'Theory and simulation of crystal growth' ; J. Phys. Condens. Matter **9**, 299-344 (1997).
8. P. Kratzer, E. Penev et M. Scheffler ; 'First-principles studies of kinetics in epitaxial growth of III-V semiconductors' ; Appl. Phys. A **75**, 79-88 (2002).
9. B. A. Joyce, D. D. Vvedensky, A. R. Avery, J. G. Belk, H. T. Dobbs et T. S. Jones ; Appl. Surf. Sci **357**, 130-132 (1998).
10. A. B. Bortz, M. H. Kalos et J. L. Lebowitz ; J. Comput. Phys. **17**, 10 (1975).
11. D. C. Young ; 'Molecular Dynamics and Monte Carlo Simulations' ; Computational Chemistry; John Wiley & Sons, Inc (2001).
12. H. Khachab, Y. Abdelkafi et A. Belghachi ; 'Kinetic Monte Carlo (KMC) simulation of GaAs(001) $\beta 2(2x4)$ reconstructed surface and Characterization' ; Defect and Diffusion Forum Vols. **297-301**, pp 308-317 (2010).
13. T. Huhtamaki, M. O. Jahma et I. T. Koponen ; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **264**, 55-60 (2007).
14. N. Fazouan ; 'Simulation de suivi in situ par photoémission de la dynamique de croissance épitaxiale de semiconducteurs III-V' ; thèse de doctorat d'état ; Université Ibn Tofail, Maroc (2001).
15. M. Djafari Rouhan, N. Fazouan, A. M. Gue et D. Estève ; 'Simulation of thin film growth and in situ characterization by RHEED and photoemission' ; Vacuum, Vol. **46**, numbers 8-10, pp 931- 934 (1995).
16. N. Fazouan, M. Djafari Rouhani, A. M. Gue et D. Esteve ; 'Simulation of photoemission current to monitor the thin film growth', Surface Science **352-354**, pp 1022-1026 (1996).