

Влияние латеральных модуляций состава на зарождение и упорядочение массива квантовых островков в многослойных периодических структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$

В.П. Кладько¹, В.В.Стрельчук¹, Н.В.Слободян¹, А.Н.Ефанов¹, В.Ф.Мачулин¹,
Yu. I. Mazur², Zh. M. Wang², G. J. Salamo²

¹*Институт физики полупроводников им. В.Е.Лашкарёва НАН Украины,*

03028 пр. Науки 45. г. Киев, Украина

²*Department of Physics, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas, 72701*

Абстракт

Используя карты распределения интенсивности диффузно рассеянного рентгеновского излучения в обратном пространстве, полученные в симметричной 004 и несимметричных 113 и 224 дифракционных геометриях, проведены исследования 8-ми периодных напряженных $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(100)$ структур ($x = 0.20-0.35$), выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии.

Определены латеральный период модуляции, среднее значения компонентного состава в слое $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и вертикальный период сверхрешетки. Установлено, что латеральная модуляция наблюдалась только вдоль одного [0-11] направления в плоскости, отвечающего образованию квантовой нитеподобной (quantum wire-like) структуры. Обсуждаются возможные физические механизмы латеральной модуляции компонентного состава и толщины $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и их роль при формировании квантовых точек в напряженных $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структурах.

I. Введение.

Исследованиям механизмов формирования и свойств $\text{In}(\text{Ga})\text{As}$ КТ посвящено большое количество работ в связи с перспективами их применения в новых устройствах опто- и наноэлектроники, например, [1-4]. Получены экспериментальные и теоретические данные позволяют феноменологически объяснить механизм начальной стадии перехода от послойного роста пленки к образованию трехмерных (3D) островков. Однако, в литературе часто указывается на значительную зависимость 2D-3D перехода от различных факторов воздействующих на процесс самоорганизованного формирования InGaAs КТ, таких например, как температуры роста, скорости осаждения, компонентного состава, ориентации подложки и ее разориентации [5-8].

Для понимания механизмов релаксации упругих деформаций в напряженных гетероструктурах особенно важными являются исследования структурных изменений в слоях гетероструктуры вблизи областей интерфейса, где образуются КТ.

Недавно показана эффективность рентгеноструктурных методов исследования структурных изменений в низко-размерных полупроводниковых наноструктурах при релаксации упругих деформаций, таких как, например, интерфейсных неоднородностей, корреляционной длины локального структурного разупорядочения, структуры КТ [4-8].

Эти предпосылки не имеют в настоящий момент удовлетворительного экспериментального подтверждения и стимулируют проведение дальнейших детальных

исследований механизмов упорядочения ансамблей полупроводниковых нанокластеров путем модификации поверхностных сверхструктур.

В этой статье, сообщается о применении двухмерных карт распределения дифрагированного рентгеновского излучения в обратном пространстве для исследования влияния латеральных модуляций состава и содержания индия в многослойных напряженных InGaAs/GaAs структурах на пространственное упорядочение квантовых точек (КТ). Наши данные показывают, что при определенных условиях роста в этих гетероструктурах могут формироваться одномерные массивы модуляции состава (толщины), которые необходимо рассматривать при анализе начального этапа формирования квантовых точек и нитей без использования шаблонной подложки.

II. Эксперимент

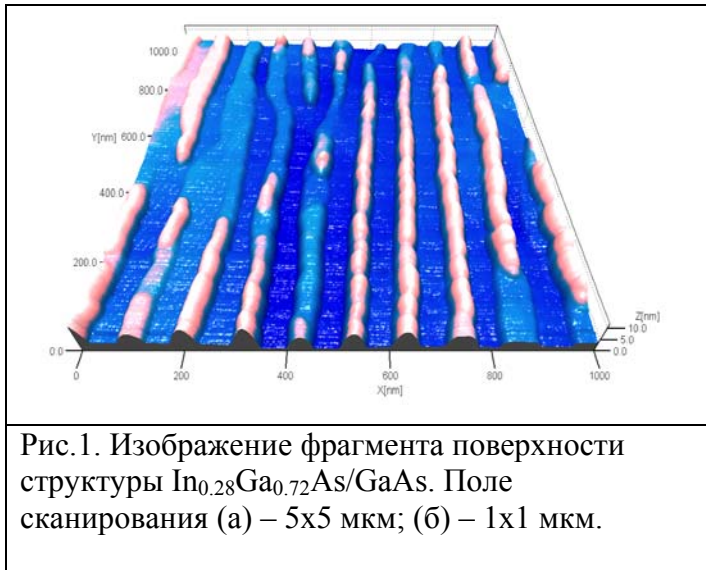
Исследовались 8-ми периодные InGaAs/GaAs структуры, выращенные на полуизолирующей подложке GaAs(100) методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ). Буферный слой арсенида галлия толщиной 0.5 мкм выращивался при температуре подложки 580°C. Затем температура подложки уменьшалась до 540 °C для выращивания многослойных сверхрешеточных структур 8x(14ML (In, Ga)As/40ML GaAs). Номинальная концентрация индия в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ слое составляла 0.20, 0.25, 0.28, 0.30 и 0.35.

Измерение кривых дифракционного отражения (КДО) проводилось на высоко разрешающем дифрактометре „X’Pert PRO MRD XL” с четырехкристалльным Ge монохроматором при использовании линии CuK_α . Для построения карт обратного пространства был использован трехкристалльный анализатор Ge(220) с угловой расходимостью 12 угл. сек. Для всех образцов измерялись карты обратного пространства в симметричной 004 и несимметричных 113, 224 и 404 дифракционных геометриях (скользящие углы падения). КДО и карты обратного пространства снимались для различных азимутальных направлений: плоскость дифракции была (110) и (1-10) для 004, 113 и 224 геометрии, в то время как для 404 – (100). Угол разориентации подложки GaAs в исследуемых структурах не превышал 0.35° .

III. Экспериментальные результаты

Структурные изменения в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структурах при формировании $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ слоев с разной концентрацией индия определяют их электронные свойства и, соответственно, их спектры излучения. Анализ данных сканирующей атомно-силовой микроскопии (рис.1) образца с $x=0.28$ позволяет констатировать, что на начальном этапе 2D-3D переходов формируются два типа квантовых структур: 3D-островки обогащенные индием, и 2D-островки с меньшей концентрацией In, характеризующиеся малой высотой

и сравнительно большими латеральными размерами (близкими к форме 2D-пластинок). Последние можно рассматривать как прекурсоры для зарождения больших 3D островков.



На рис.2 приведены отдельные трехкристальные сканы для многослойных структур с различным содержанием индия. Анализ этих КДО свидетельствуют о том, что многослойная структура имеет хорошее кристаллическое качество, а граница раздела между барьерными слоями GaAs и КЯ $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$ с содержанием индия 0.20-0.25 четкая и когерентная. Дальнейшее повышение концентрации индия в твердом растворе приводит к возникновению диффузного фона, который немного замыкает "быстрые" толщинные осцилляции. Это вероятно связано с влиянием деформационных полей, вызванных латеральными модуляциями состава. Однако ответить на этот вопрос оказалось возможным только при использовании анализа карт распределения интенсивности вокруг узлов обратной решетки, которые дают возможность отделить влияние латеральных модуляций состава и несовершенств интерфейса.

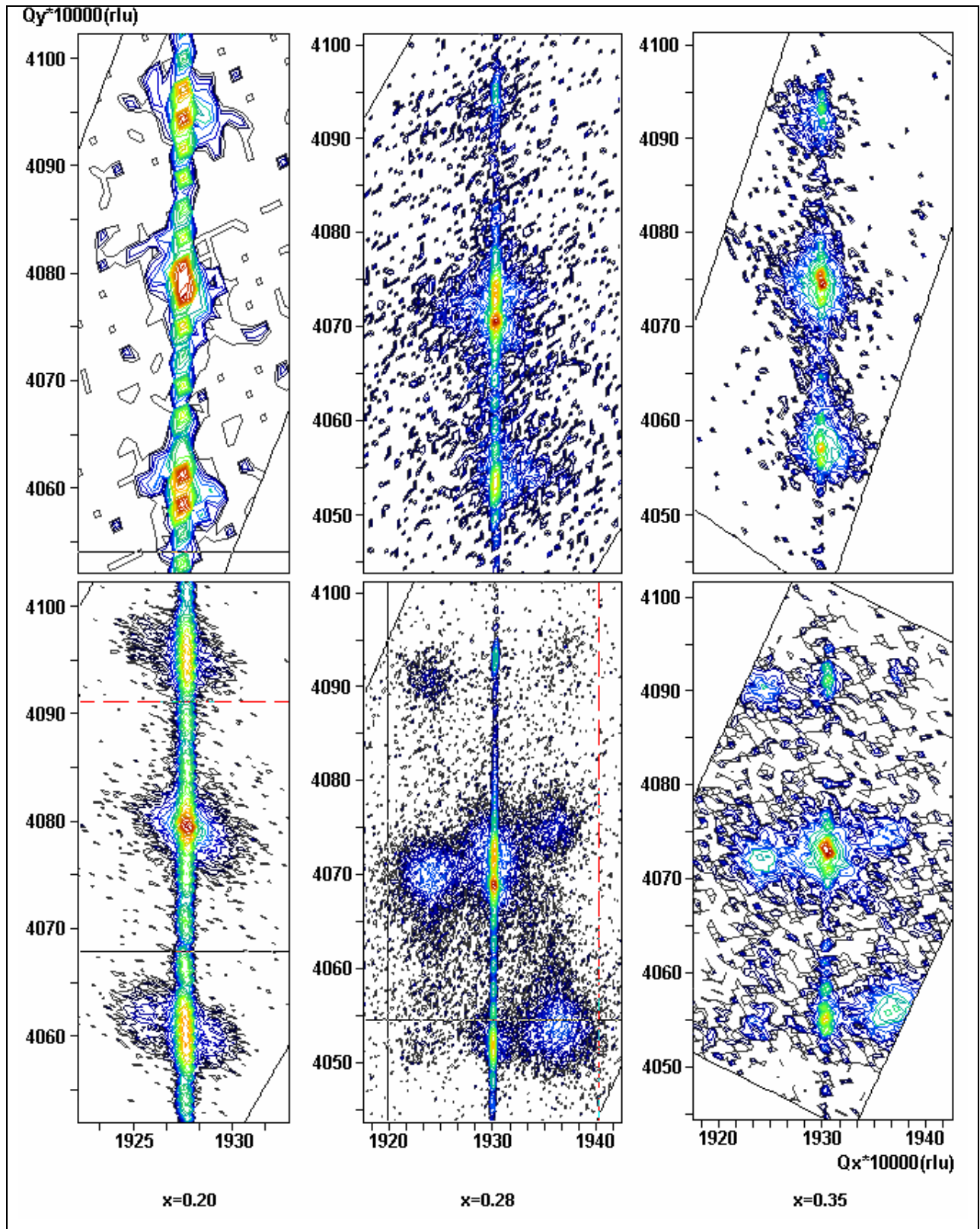


Рис.2. Карты распределения дифрагируемой интенсивности в обратном пространстве вблизи узла 113 для плоскости дифракции (1-10) (верхний ряд) и (110) (нижний ряд) для структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$.

На рис.2 показаны измеренные 113 карты обратного пространства (КОП) для образцов с содержанием индия 0.20, 0.28 и 0.35. Измеренные карты показывают острые

пики при $Q_x=0$, которые обозначены, SL_0 , и $SL_{\pm 1}$. Горизонтальные ширины этих максимумов определяются разрешением дифрактометра, и представляют когерентное распределение рассеянной интенсивности. Когерентно рассеянная волна зависит только от латерально усредненной структуры образца. Однако следует отметить, что на картах, полученных в направлении плоскости дифракции (110) отмечается уширение этих максимумов, а также полос интенсивности расположенных между этими максимумами. Это свидетельствует о латеральных разворотах решетки вдоль определенных направлений. Эти развороты, вероятнее всего, могут быть результатом латеральных модуляций состава вдоль направления [110]. Таким образом, их образование начинается уже при содержании индия в КЯ порядка 0.25.

Пики, отмеченные, как S соответствуют дифракции от подложки, а SL_n – n -ый спутниковый пик латерально усредненной СР. Расстояние между спутниками равняется $2\pi/D$ (D – период СР), а расстояние между SL_0 и пиком подложки пропорционально относительной разности вертикального параметра решетки подложки и среднего параметра СР.

Самоорганизованные квантовые точки порождают диффузное рассеяние рентгеновских лучей, сопровождающее когерентную дифракцию. Диффузное рассеяние вызвано разницей в рассеивающих факторах InAs и GaAs и поля упругой деформации в матрице GaAs, окружающей точки. В случае рентгеновского отражения только первый механизм вносит вклад. Если вектор дифракции близок к вектору \mathbf{h} обратной решетки, рассеянная интенсивность чувствительна к h -ой Фурье-компоненте кристаллической поляризуемости $\chi(r)$. В данном случае, диффузное рассеяние большей частью происходит от поля деформации, как за пределами, так и внутри точки.

Информация относительно точечной структуры содержится только в диффузно рассеянной интенсивности, сопровождающей когерентную интенсивность [9].

Распределение рассеянной интенсивности в Q_x направлении определено латеральным расположением точек a , для дифракции рентгеновских лучей, полями деформации внутри и за пределами точек. Это распределение точек будет давать латеральные спутники интенсивности в положениях $Q_x=2\pi p/L$ ($L = \langle l \rangle$ – среднее точечное расстояние, p – целое число). Расстояние между латеральными спутниками интенсивности – $2\pi/L$, а их ширина пропорциональна дисперсии распределения расстояния. Форма этих латеральных спутников не зависит от вертикальной корреляции точек.

Табл.1. Параметры образцов, полученные из рентгеновских измерений					
Параметры /состав	D , нм	ε GaAs	ε InGaAs	L , нм	σ , нм
0.20	21.7±0.7	-	-	-	-
0.25	21.9±0.3	-	-	-	-
0.28	22.2±0.6	-0.00030	0.0034	62±2	15±6
0.30	22.4±0.1	-0.00025	0.0040	55±2	17±7
0.35	22.9±0.7	-0.00036	0.0044	51±2	18±7

Поскольку объем искаженной области вокруг точки намного больший, чем точка непосредственно, то вклад поля деформации вокруг точек в диффузно рассеянную интенсивность большей частью сконцентрирован в непосредственной близости SL_0 . Поэтому, на распределение интенсивности вдали от SL_0 влияет большей частью центр рассеяния, т.е., состояние деформации решетки точки. Поэтому, можно определить напряжение в точках из распределения интенсивности в этой области [10-12].

Информация относительно островов содержится в диффузных пиках, сопровождающих когерентные сателлиты. На картах, полученных в асимметричной дифракции (рис.2), диффузные пики проявляют явную асимметрию относительно оси Q_z . Вблизи SL_0 (т.е., для малой величины вектора дифракции $|q|$), диффузное рассеяние определено большей частью полем деформации и рассеивающим фактором решетки вдали от точки. Максимум диффузной интенсивности вокруг SL_0 сдвинут в положительном Q_x направлении, т.е., в направлении большего значения hx , которое соответствует *сжимающей* деформации ε решетки кристалла GaAs между точками. Диффузные пики вокруг SL_1 сдвинуты в отрицательном Q_x направлении, т.е., к более малым значениям hx . Поэтому, эта часть диффузно рассеивающих стержней получена от *растянутых* областей решетки, т.е., от объемов точек. Средняя величина деформации в плоскости в точках, среднее латеральное расстояние между точками и его статистическая дисперсия представлены в табл.1.

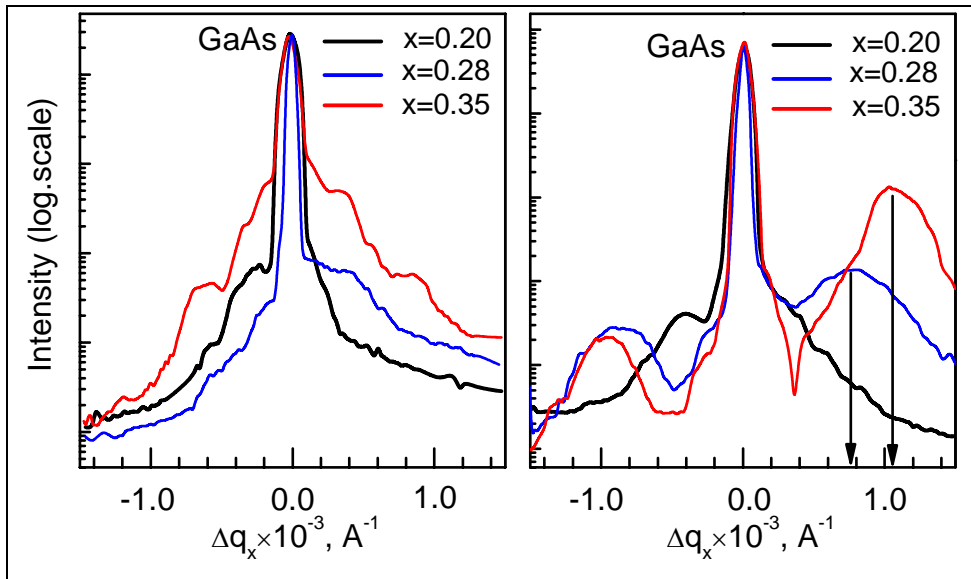


Рис.3. Проекция сечения пиков диффузного рассеяния возле сателлита SL_0 на ось Q_x , полученная из КОП вокруг узла 113 для плоскости дифракции (1-10) (а) и (110) (б) для структуры InGaAs/GaAs.

На рис.3, приведены проекции диффузных пиков SL_0 сателлита на Q_x ось для отражения 113 в образцах с содержанием индия 0.20, 0.28 и 0.35. Латеральные максимумы возникают только при плоскости рассеяния (110). При этом наблюдается только один латеральный максимум, а другие будут подавлены из-за большой дисперсии σ расстояний между точками. В случае симметричной дифракции, также возникают латеральные максимумы, несмотря на малое значение проекции когерентной длины падающего рентгеновского луча по сравнению с асимметричной дифракционной геометрией. Когда плоскость рассеяния будет (1-10), диффузные максимумы отсутствуют практически для всех образцов.

Аналогичные максимумы для плоскости рассеяния (110) также видны в Q_x проекции SL_1 сателлита (рис.4). На рисунках можно увидеть, что положения латеральных сателлитов идентичны вокруг 113 и 224 узлов обратной решетки. Из сателлитных положений находим среднее расстояние между точками (см. табл.1) в образцах с составом индия 0.28 и 0.35, которые согласуются в пределах экспериментальной точности с данными АСМ. В измеренных картах образцов с содержанием индия 0.20-0.25 никаких явно выраженных боковых максимумов около SL_0 диффузного максимума не обнаружено, и, поэтому, латеральное разделение точек не может быть определено.

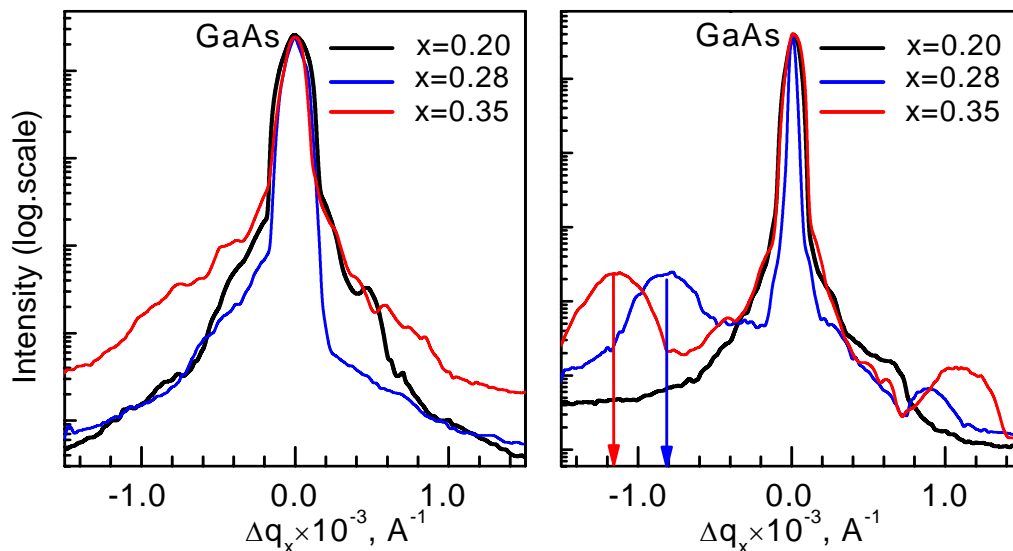


Рис.4. Проекция сечения пиков диффузного рассеяния возле сателлита SL1 на ось Q_x , полученная из КОП вокруг узла 113 для плоскости дифракции (1-10) (а) и (110) (б) для структуры InGaAs/GaAs.

IV. Обсуждение

Наличие ярко выраженной асимметрии в появлении диффузных пиков наводит нас на мысль о том, что эти латеральные сателлиты вызваны модуляциями состава в определенном кристаллографическом направлении. Эти модуляции приводят к тому, что точки образованные на линиях обогащенных индием имеют большую упорядоченность в перпендикулярном направлении вдоль [110], чем вдоль линий модуляции состава [1-10].

Из ширины сателлитов $\delta Q_x = \frac{(\sigma \cdot Q_x)^2}{L}$, была оценена среднеквадратичная дисперсия σ точечных расстояний. Значение $L/\sigma \approx 3 \pm 1$ для образцов с составом 0.30-0.35 свидетельствует о том, что положения точек являются коррелированными вплоть до соседа третьего порядка; т.е., существует только ближний порядок точек.

На КОП (рис.2) четко проявляется система упорядоченных сверхрешеточных сателлитов нескольких порядков с их тонкой структурой. Вертикальный порядок точек в слоях СР влияет на ширину диффузных максимумов в Q_z направлении (т.е. в направлении роста). Как можно наблюдать, эти ширины не зависят от порядка сателлита, и они такие же, как и ширины когерентных максимумов (измерения для $Q_x=0$). Когерентные ширины в наших измерениях равняются приблизительно $2\pi/(ND)$. Из этих измерений была проведена оценка вертикальной длины корреляции $\xi_{cor}^z/(ND) > 0.65$, и сделан вывод, что более половины точек вертикально упорядочены.

V. Выводы

Данные по анализу экспериментальных КДО свидетельствуют о том, что многослойная структура имеет хорошее кристаллическое качество, а граница раздела

между барьерными слоями GaAs и КЯ $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$ с содержанием индия 0.20-0.25 четкая и когерентная. Дальнейшее повышение концентрации индия в твердом растворе приводит к возникновению латеральных модуляций состава с последующим зарождением (вдоль этих модуляций) трехмерных образований в виде островков. При этом формирование латеральных модуляций состава происходит в строго определенных кристаллографических направлениях [1-10], и вызвано анизотропией в распределении упругих постоянных и поверхностных связей для направлений [110] и [1-10] в структуре цинковой обманки. Эти модуляции состава и задают латеральное упорядочение зарождающихся островков в определенных направлениях, в нашем случае вдоль [110] с периодичностью латеральных модуляций. В других кристаллографических направлениях [1-10] это упорядочение при малых концентрациях индия незначительно, о чем свидетельствуют и карты распределения диффузной интенсивности в обратном пространстве.

Работа выполнена в рамках проекта МОН Украины №М/249-2004 “Развитие комплекса методов практической диагностики для сопровождения современных технологий получения наноструктур с заданными физическими и физико-химическими параметрами и характеристиками” и частично поддержана проектом УНТЦ №3085.

Литература

1. Mano T., Nutzal R., Hamhuis G.J., Eijkemans T.J., and Wolter J.H. // J. Appl. Phys. – 2002. – **92**. – P.4043-4048.
2. Springholz G., Holy V., Pinczolits M., Bauer G. // Science – 1998 – **282**. – P.734.
3. Strelchuk V.V., Kladko V.P., Efanov O.M., Gudymenko O.Yo., Mazur Yu.I., Wang Z.M., Xiao M., Salamo G.J. // Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, – 2005. – **8**, No 1. – P.36-46.
4. Mazur Yu.I., Wang Z.M., Salamo G.J., Strelchuk V.V., Kladko V.P., Machulin V.F., Valakh M.Ya., Manasreh M.O. // J. Appl. Phys., – 2006. – **99**, Issue 2. – P. 023517(1-10).
5. Pal D., Towe E., Chen S. // Appl. Phys. Lett. – 2001. – **78**. – P.4133-4137.
6. Krost A., Heinrichsdorff F., Bimberg D., Darhuber A., Bauer G. // Appl. Phys. Lett. – 1996. – **68**. – P.785-789.
7. Krost A., Heinrichsdorff F., Bimberg D., Blasing J., Darhuber A., Bauer G. // Cryst. Res. Technol. – 1999. – **34**, – P.89-96.
8. Grigoriev D., Hanke M., Schmidbauer M., Schafer P., Konovalov O., Koehler R. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2003 – **36**. – P.A225.

9. Schmidbauer M. X-Ray Diffuse Scattering from Self-Organized Mesoscopic Semiconductor Structures. (New York: Springer, 2004).
10. Кладько В.П., Мачулін В.Ф., Григор'єв Д.О., Прокопенко І.В. Рентгенооптичні ефекти в багаточастотних періодичних квантових структурах. (Київ: Наукова думка, 2006).
11. Кладько В.П., Мачулін В.Ф., Гудименко О.Й., Корчовий А.А., Стрельчук В.В., Прокопенко І.В. // Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології, – 2003. – **1**, вип.2, – С.447-457.
12. Кладько В.П., Мачулін В.Ф., Молодкін В.Б., Первак Е.В., Корчевой А.А., Ефанов А.Н., Когутюк П.П., Скакунова Е.В. // Металлофізика и новейшие технологии. – 2004. – **26**, №10. С.1255-1267.
13. Фалеев Н.Н., Павлов К.М., Пунегов В.И., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Ковш А.Р., Михрин С.С., Устинов В.М., Tabuchi M., Takeda Y. // ФТП – 1999. – **33**, – С.1359-1372.
14. Yefanov O., Kladko V., Gudymenko O., Strelchuk V., Mazur Yu., Wang Zh., Salamo G. // Phys. Stat. Sol.(a), – 2006. – **203**, Issue 1, – P.154-157.

**ВПЛИВ ЛАТЕРАЛЬНИХ МОДУЛЯЦІЙ СКЛАДУ НА ЗАРОДЖЕННЯ І
ВПОРЯДКУВАННЯ МАСИВУ КВАНТОВИХ ОСТРІВЦІВ В БАГАТОШАРОВИХ
ПЕРІОДИЧНИХ СТРУКТУРАХ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$.**

В.П. Кладько¹, В.В.Стрільчук¹, М.В.Слободян¹, О.М.Єфанов¹, В.Ф.Мачулін¹,
Yu. I. Mazur², Zh. M. Wang², G. J. Salamo²

¹*Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є.Лашкарьова НАН України,*

03028 пр. Науки 45. м. Київ, Україна

²*Department of Physics, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas, 72701*

Абстракт

Використовуючи карти розподілу інтенсивності дифузно розсіяного рентгенівського випромінювання в оберненому просторі, одержані в симетричній 004 і несиметричній 113 і 224 дифракційній геометрії, проведені дослідження 8-ми періодних напружених $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(100)$ структур ($x = 0.20-0.35$), вирощених методом молекулярно-пучкової епітаксії.

Визначені латеральний період модуляції, середнє значення компонентного складу в шарі $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ і вертикальний період надгратки. Встановлено, що латеральна модуляція спостерігалася тільки уздовж одного [0-11] напрямку в площині, що відповідає утворенню квантової ниткоподібної структури.

Обговорюються можливі фізичні механізми латеральної модуляції компонентного складу і товщини $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ і їх роль при формуванні квантових крапок в напружених $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структурах.

**STUDY OF LATERAL MODULATIONS OF COMPOSITION AND 2D – 3D
STRUCTURAL TRANSITIONS IN MULTILAYERED PERIODIC STRUCTURES
 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ BY HRXRD**

V.P. Kladko¹, V.V. Strelchuk¹, M.V.Slobodian¹, O.M.Yefanov¹, V.F.Machulin¹
Yu. I. Mazur², Zh. M. Wang², G. J. Salamo²

¹*V.Lashkaryov Institute of Semiconductors Physics NAS of Ukraine*

03028 pr. Nauki 45. Kyiv, Ukraine

²*Department of Physics, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas, 72701*

Abstract

High-resolution reciprocal space maps, obtained in symmetrical 004 and asymmetrical 113, 224 geometries, were used to investigate MBE grown 8-fold strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(100)$ multilayered structures ($x = 0.20-0.35$).

Lateral modulation period, vertical superlattice period and average value of composition in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layer were estimated. Lateral modulation was observed only along [0-11] direction in the plane corresponding to the origin of quantum wire-like structure.

Possible physical mechanisms of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ thickness and lateral compositional modulations and their role in the formation of the quantum dots in these structures are discussed.