

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЙ С ТВЁРДЫМ ТЕЛОМ

PACS numbers: 61.10.Kw, 61.10.Nz, 68.65.Ac, 68.65.Cd, 68.65.Hb, 81.15.Hi

Влияние упорядочения квантовых точек в многослойных периодических структурах на характер брэгговской дифракции

В. П. Кладько, В. Ф. Мачулин, В. Б. Молодкин*, Е. В. Первак*,
А. А. Корчевой, А. Н. Ефанов, П. П. Когутюк, Е. С. Скакунова*

*Институт физики полупроводников им. В. Е. Лашкарева НАН Украины,
просп. Науки, 41,
03028 Киев-28, Украина*

**Институт металлофизики им. Г. В. Курдюмова НАН Украины,
бульв. Акад. Вернадского, 36,
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

С помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии исследованы многослойные структуры с квантовыми точками, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Проанализированы возможности различных схем дифракции для исследования этих объектов. Показана возможность исследования параметров квантовых точек из анализа спектров дифракционных кривых для симметричных отражений. Установлена нормальная и латеральная упорядоченность квантовых точек в системе $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Проанализировано влияние вариаций периода многослойной квантовой системы на характер распределения интенсивностей на кривых качания, а также на двухмерных картах распределения интенсивности вокруг узлов обратного пространства. Предложено объяснение причины расщепления сателлитных пиков сверхрешеток, заключающейся в удвоении периода сверхрешеточной структуры и соответствующем появлении сверхструктурных сателлитных пиков сверхрешеток при формировании двухмерной латеральной решетки квантовых точек, сдвинутых на $1/2$ периода в соседних слоях.

З допомогою високороздільної рентгенівської дифрактометрії досліджено багат шарові структури з квантовими точками, отримані методом молекулярно-пучкової епітаксії. Проаналізовано можливості різних схем дифракції для дослідження цих об'єктів. Показано можливість дослідження параметрів квантових точок з аналізу спектрів кривих дифракційного відбиття для симетричних рефлексів. Встановлено нормальну та латеральну впорядкованість системи квантових точок в системі $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Проаналізовано вплив варіацій періоду багат шарової квантової системи на характер розподілу інтенсивності на кривих гойдання, а також на двовимірних картах розподілу інтенсивності навколо вузлів оберненого прос-

тору. Дано пояснення причини розщеплення сателітних піків надґратниць, котра полягає в подвоєнні періоду надґраткової структури та у відповідній появі надструктурних сателітних піків надґратниць при формуванні двовимірних ґратниць квантових точок, зміщених на $1/2$ періоду у сусідніх шарах.

The multilayers of self-assembled InAs quantum dots, embedded in GaAs grown by the molecular-beam epitaxy, are studied using the high-resolution x-ray reciprocal-space maps and reflectivity. Various diffraction schemes suitable for investigation of these objects are compared. A possibility to study the quantum-dots' parameters as deduced from the rocking curves for symmetrical reflections is shown. As ascertained, both the vertical and lateral ordering of quantum dots takes place in a system $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Influence of variations of the multilayer quantum-system period on the intensity distribution around reciprocal-space points as well as along the rocking curves is analyzed. Splitting of the superlattice satellite peaks is explained as caused by the doubling of period of the superlattice structure depending on the quantum-dot sizes in different regions.

Ключевые слова: квантовые точки, высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия, многослойная структура, кривые качания, брэгговская дифракция.

(Получено 19 марта 2004 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Ансамбли nanoостровков, сформированные в матрице материала, имеют большой практический интерес [1–3]. Поэтому требуется проведение широкомасштабных исследований свойств этих структур с целью оптимизации технологических режимов формирования квантовых точек (КТ) в слоях и границ раздела. В частности, при отработке технологии получения КТ в слоях $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ необходимо знать их основные параметры: размеры и форму, распределение индия в КТ, уровень механических напряжений, а также степень упорядочения в вертикальном (направление роста слоев) и латеральном направлениях. Система самоорганизованных КТ с упорядоченной структурой в вертикальном и латеральном направлениях очень мало изучена, поскольку ее получение является очень сложной технологической задачей. Поэтому изучение таких систем важно как с точки зрения определения параметров таких объектов, так и влияния упорядочения системы квантовых точек на характер рассеяния рентгеновских лучей (РЛ).

Основным методом исследования многослойных квантовых структур является рентгенодифрактометрия высокого разрешения [4–7]. Этим методом исследованы как технологические параметры (толщины слоев, состав квантовой ямы (точки)), так и структурные

— уровень деформации в слоях, степени их структурного упорядочения и совершенства [8–10]. Однако в последних работах [11–13], несмотря на наличие на экспериментальных спектрах пиков от квантовых точек, отсутствуют объяснение механизма формирования этих спектров, а также их математическое моделирование. Кроме того, отсутствует интерпретация наблюдаемого на экспериментальных спектрах расщепления спутных пиков основной сверхрешетки (СР) [14]. Некоторые особенности влияния образования КТ на размытие спутной структуры спектров отмечены в [15], а также там выдвинуто предположение об изменении параметров корреляции и дальнего порядка.

В [16, 17] развита теория рассеяния РЛ такими объектами, включающая рассмотрение как когерентной, так и диффузной (вызванной наличием дефектов в слоях) составляющих интенсивности. Используя основные представления этих работ, мы попробовали решить следующие задачи:

1) определить возможности различных схем брэгговской дифракции для получения информации из экспериментальных спектров сверхрешеточных структур с квантовыми точками;

2) используя моделирование кривых качания, определить основные параметры многослойных напряженных сверхрешеточных структур с квантовыми точками из двух- и трехкристалльных экспериментальных спектров;

3) объяснить расщепление пиков на кривых дифракционного отражения от напряженных сверхрешеточных структур InGaAs/GaAs с квантовыми точками;

4) проанализировать влияние дефектов различных типов на спектры КДО в многослойных СР с квантовыми точками.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ РАСЧЕТОВ

Расчет кривой дифракционного отражения (КДО) будем проводить по формулам динамической теории рассеяния РЛ, которая сводится к рекуррентным соотношениям, связывающим амплитуду отражения от N слоев $R_{h,N}$ с амплитудами отражения $R_{h,1}$ и прохождения $R_{0,1}$ от верхнего слоя и с амплитудой отражения от $(N - 1)$ слоя [4]:

$$R_{h,N} = [R_{h,1} + R_{h,N-1}(R_{0,1}R_{0,1} - R_{h,1}R_{h,1})](1 - R_{h,N-1}R_{h,1})^{-1}. \quad (1)$$

Каждый из слоев характеризуется толщиной t_j , параметром кристаллической решетки a_j и степенью аморфизации f_j , которая связана со смещениями атомов из регулярной позиции. Для проведения численного анализа и сопоставления его с экспериментом удобно использовать модель дефектов кулоновского типа. Тогда выражение для статического фактора Дебая–Валлера, согласно [5],

можно представить в виде

$$E_{1,2} = \exp(-4\pi r_{1,2}^3 c_{1,2} / 3), \quad (2)$$

где $r_{1,2}$ и $c_{1,2}$ — соответственно радиусы и концентрации дефектов в двух различных слоях в каждом из периодов сверхрешетки.

Для расчета диффузной части рассеяния используем модель, предложенную в [18], а также результаты [19, 20].

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Исследовались сверхрешеточные структуры с квантовыми точками 8(11ML (In, Ga)As/67ML GaAs), выращенные на полуизолирующем арсениде галлия (100) на установке МВЕ. Измерения КДО для симметричных 400 и асимметричных рефлексов 224 проводились на двухкристальном спектрометре (кристалл-монокроматор GaAs(100), CuK_α -излучение, отражение 400), а также на дифрактометре фирмы «Philips MRD X-Pert». Образец сканировался вблизи точного положения Брэгга в диапазоне около 3° в так называемом $\omega/2\theta$ -режиме. Регистрировались как ω -сканы (без анализатора), так и $\omega-2\theta$. Толщина слоев многослойной структуры определялась по осцилляциям ее отражательной способности при дифракции на отражение [4]. Измерения проводились в дискретном угловом режиме с шагом $2''$. Для анализа экспериментальных данных проводилось сопоставление экспериментальных и расчетных КДО путем фитирования с использованием так называемой методики χ^2 [6].

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Основные экспериментальные спектры КДО для симметричного 400-отражения в режиме ω -сканирования (1) и $\omega-2\theta$ — с анализатором (2) приведены на рис. 1. На спектрах наблюдаются сателлитная структура пиков основной СР, а также вызванная наличием КТ. Наблюдаемые на них особенности можно качественно объяснить. Видно, что кроме пика подложки и основного максимума, вызванного средней решеткой структуры (нулевого сателлита), на хвостах КДО наблюдается сложная интерференционная структура [6]. В идеальной решетке модулированы и дифракционные пики от островков (КТ) и от усредненной решетки слоев. Кроме сателлитов, отвечающих за период СР, на КДО наблюдается также система широких сателлитов, смещенных по углу относительно сверхрешеточных. При этом период их равен периоду основной сверхрешетки. Эти сателлиты предположительно должны обуславливаться формированием квантовых точек. Особенно четко эти дополнительные сателлиты

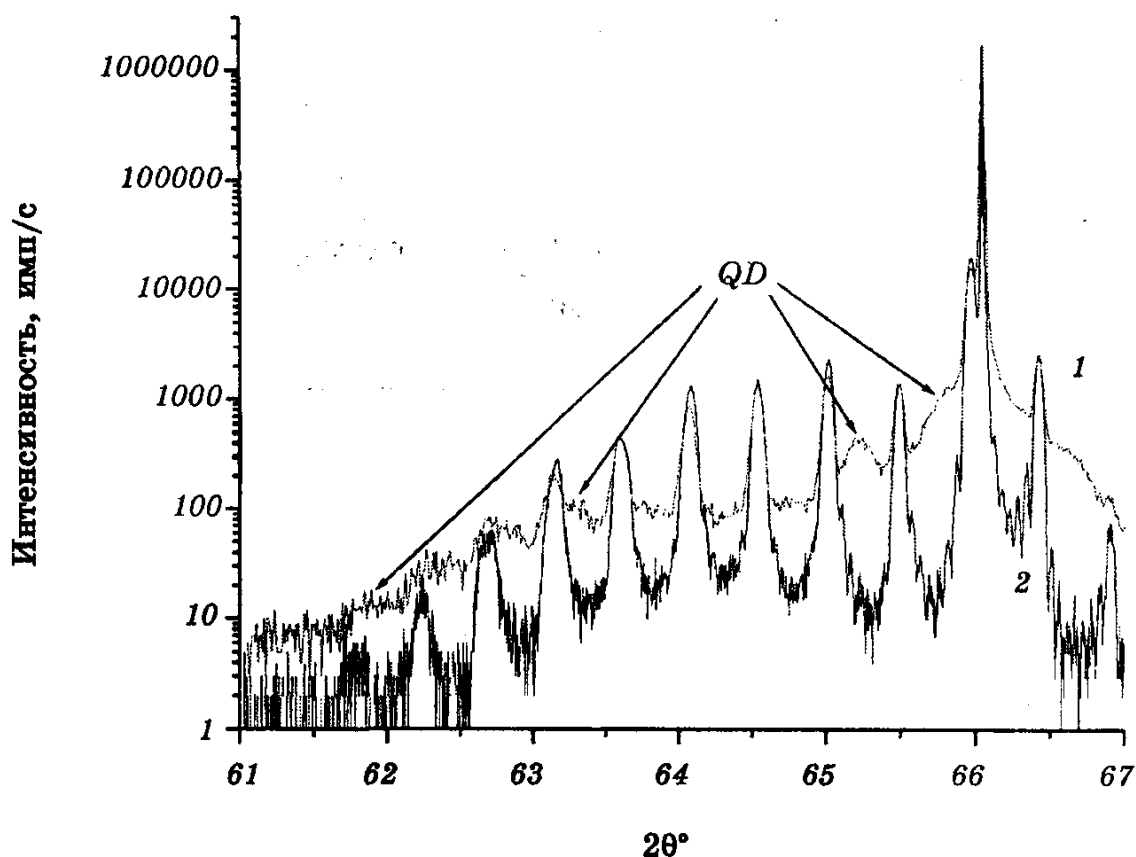


Рис. 1. Экспериментальные дифракционные спектры для 400-отражения: 1 — ω -сканирование (двухкристальный вариант); 2 — 2θ - ω -сканирование (трехкристальный вариант) (QD — пики от квантовых точек).

проявляются при ω - 2θ -сканировании без анализатора (1).

Сравнение двух- и трехкристальных (с анализатором) кривых качания показывает, что пики, обозначенные на графике QD, действительно вызваны формированием квантовых точек с той же периодичностью. Анализируя эти системы сателлитов, можно определить среднее напряжение в решетке КТ. Отсюда, используя уравнения Пуассона, получим средний состав КТ. Эти данные приведены в табл. 1.

Рис. 1 также наглядно демонстрирует подавление сателлитной периодической структуры, вызванной островками в области больших отрицательных углов. Сбои высоты островков не гасят моду-

ТАБЛИЦА 1. Состав и параметры СР с квантовыми ямами $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по данным рентгеновской дифрактометрии.

Номер структуры	Состав	Средняя деформация в периоде СР, %	Толщина слоя GaAs, нм	Период СР, нм
1	0,2	4,5	18,91	$22,9 \pm 0,2$
2	0,25	5,5	15,87	$17,8 \pm 0,3$

ТАБЛИЦА 2. Параметры квантовых точек $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по данным рентгеновской дифрактометрии.

Номер структуры	Средний состав КТ, %	Латеральные напряжения в КТ, %	Средний латеральный размер КТ, нм	Высота КТ, нм
1	58	0,0004	98	7,0
2	63	0,0003	86	7,8

ляцию, поскольку идеальный сверхпериод поддерживается решеткой смачивающих слоев. Небольшие сбои сверхпериода подавляют модуляцию пика средней решетки слоев, так как слои в этой модели составляют совершенную кристаллическую решетку, а решетка островков ближе к мозаичной структуре. В этом случае на фоне подавленных когерентных пиков хорошо виден пик, образованный диффузной компонентой от квантовых точек. По его полуширине была проведена оценка размеров КТ вдоль направления интерфейса (табл. 2). Эти значения близки по величине к полученным в работе [21] средним размерам квантовых островков для этого соединения.

Подтверждением вышесказанному являются двумерные карты обратного пространства вокруг узлов 400 и 224. На рис. 2 приведены

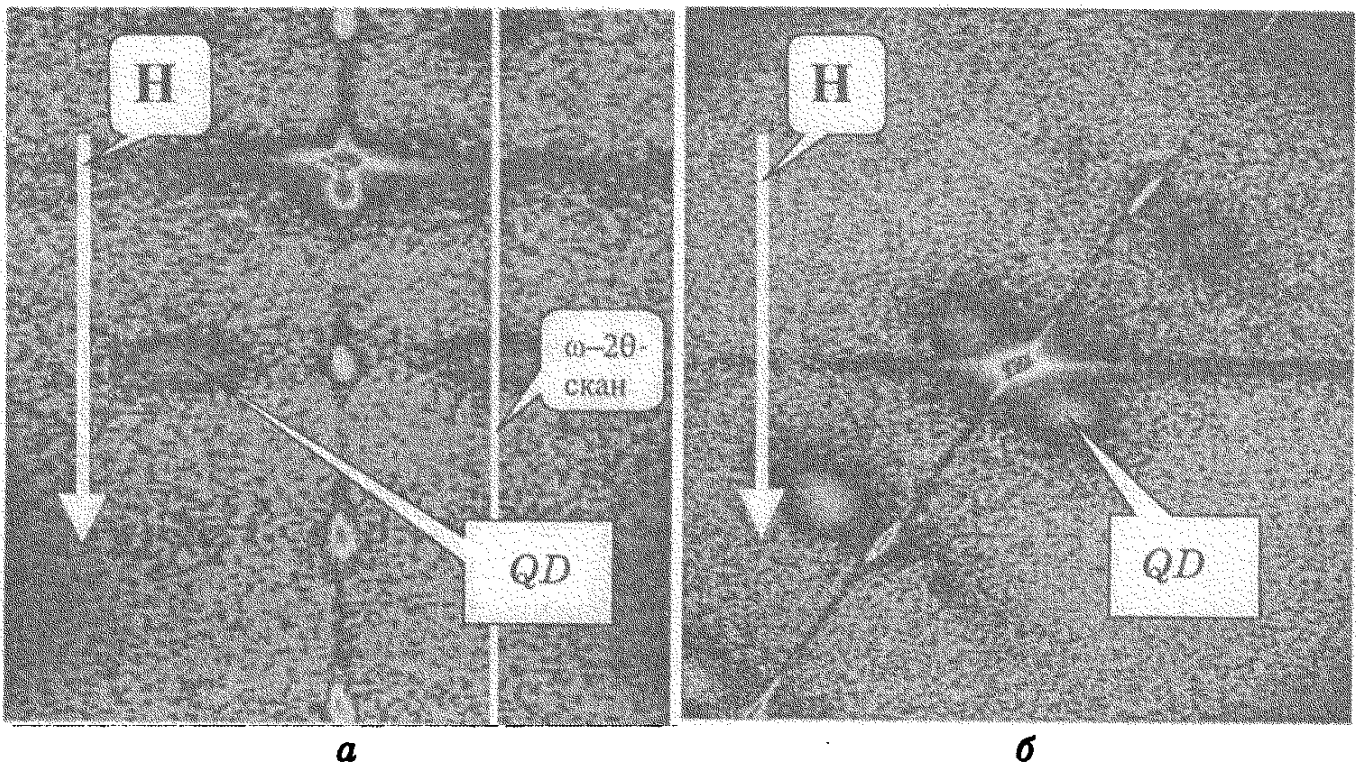


Рис. 2. Карты распределения дифрагируемой интенсивности в обратном пространстве вблизи узлов 400 (а) и 224 (б) для структуры $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ ($\text{CuK}\alpha_1$ -излучение; Н — дифракционный вектор; QD — рассеяние от квантовых точек).

карты, снятые в симметричном 400- и асимметричном 224-отражениях. Из рисунка следует, что дополнительные сателлиты на КДО 400 действительно соответствуют системе упорядоченных максимумов интенсивности. Причем это упорядочение наблюдается как в направлении роста q_z (вдоль вектора дифракции), так и в плоскости интерфейса (в направлениях $q_x(q_y)$). Период этих упорядоченных максимумов отличается в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Вдоль вектора дифракции он совпадает с периодом СР и немного увеличивается в латеральном направлении. Само наличие упорядоченной системы максимумов уже свидетельствует о высоком качестве СР с квантовыми точками, наличие которых и подтверждается картиной рассеяния [9].

Еще более детальную информацию о структуре деформационных полей в этих СР можно получить из анализа асимметричных двухмерных карт рассеяния РЛ в обратном пространстве. На этих картах отчетливо наблюдаются рассеяние, вызванное подложкой, сателлитная структура от СР, а также пики, вызванные упорядоченной структурой квантовых точек. Сравним сечение, показанное прямой на карте узла обратной решетки 400 со спектром ω -сканирования (рис. 3). Видно, что максимумы сечения двумерной карты распределения

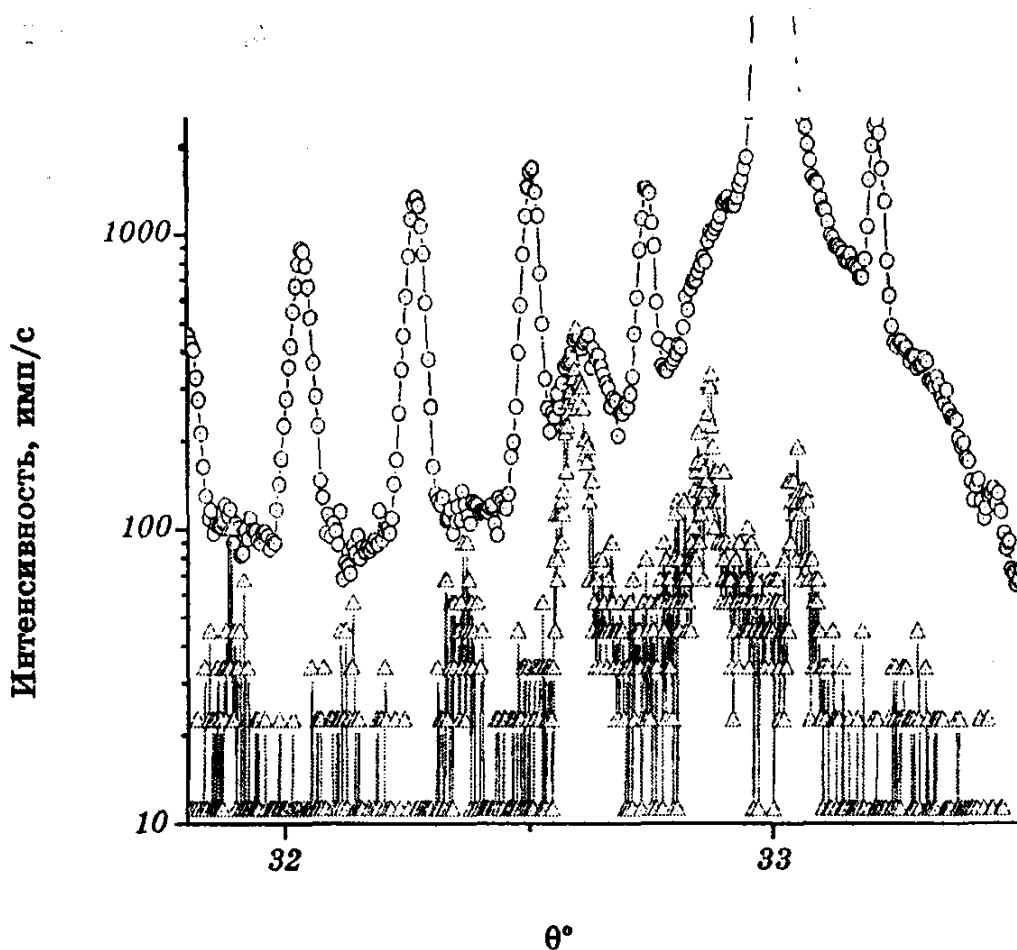


Рис. 3. Фрагменты экспериментальных дифракционных спектров: O — ω -сканирование (двухкристальный вариант); Δ — ω - 2θ -сечение двумерной карты рассеяния вдоль направления, указанного стрелкой на рис. 2, а.

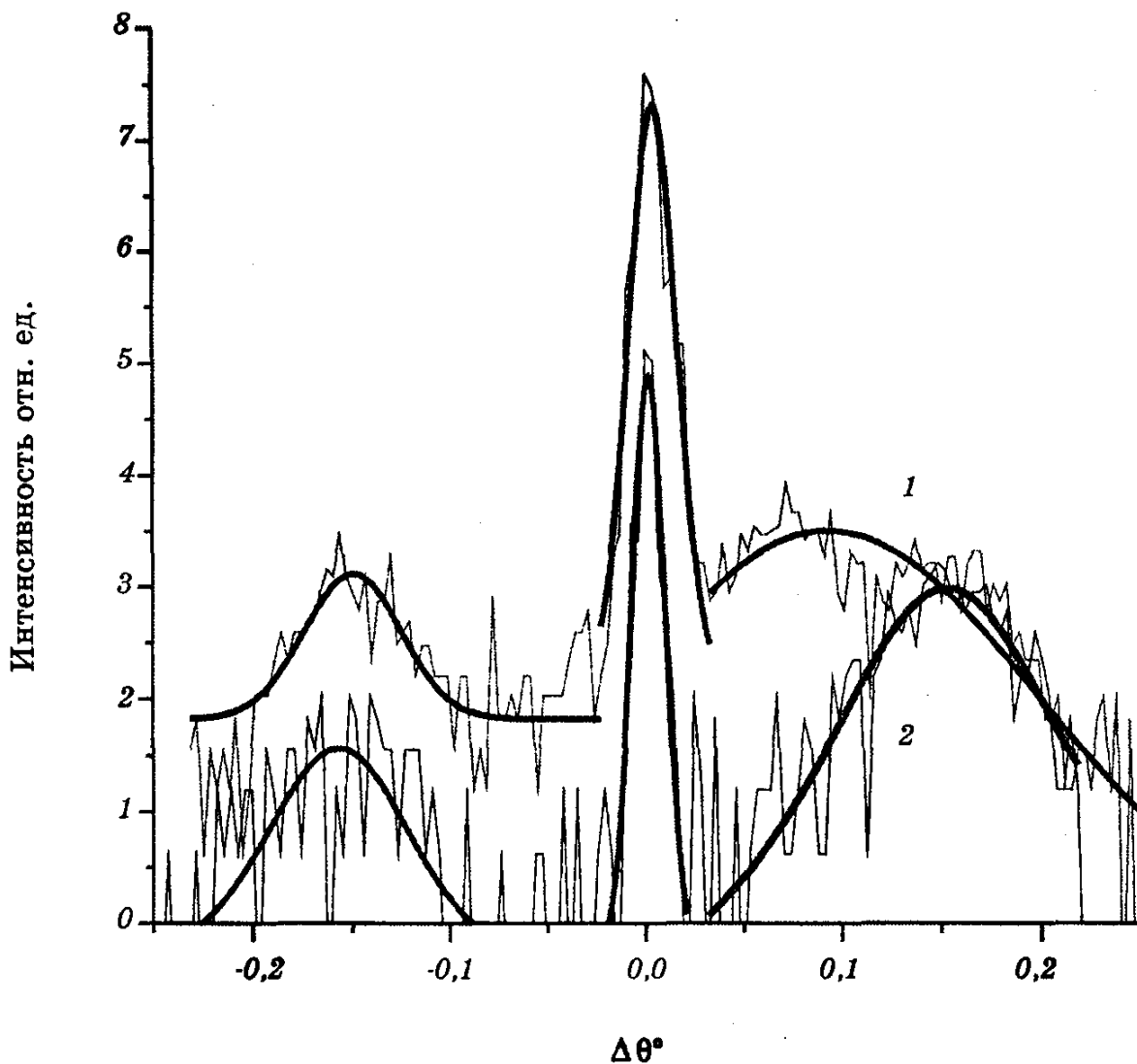


Рис. 4. Проекция сечения пиков диффузного рассеяния возле сателлита SL_{-1} на ось q_x , полученная из RSM, вокруг узлов 400 (1) и 224 (2) для 17-периодной структуры InGaAs/GaAs.

интенсивности, отвечающие рассеянию от КТ и КДО, совпадают, что дает основание считать двухкристальную ω -кривую качания очень информативным инструментом для исследования структур с квантовыми точками.

Проанализируем теперь сечение вдоль вектора q_x вблизи сателлита первого порядка (рис. 4). В отличие от аналогичных сечений, приведенных в работе [18], в нашем случае наблюдаются диффузные пики по обе стороны от когерентного сателлита основной сверхрешетки. Положение максимумов диффузных пиков вдоль q_x будет отвечать вкладу деформационных полей вокруг квантовых точек в латеральной плоскости. Поэтому их положение можно связать с напряжениями в латеральной плоскости $q_x^{\max} \sim \epsilon_{xx}$. Полученные значения латеральных напряжений в КТ приведены в табл. 2.

Как отмечалось в постановке работы, одна из ее задач — выяснение причин расщепления спектров КДО, особенно в области больших отрицательных углов отклонения от точного брэгговского по-

ложения. Используя соотношения [4, 16, 17], были проведены расчеты спектров КДО для данных структур. В качестве стартовых условий для подгонки теоретических спектров КДО к экспериментальным использовались технологические параметры структур.

На рис. 5 приведены в качестве примера экспериментальный и расчетный спектры для многослойной системы InGaAs/GaAs с квантовыми точками. На графиках отчетливо наблюдаются системы расщепленных спутных пиков.

Расчетные зависимости с большой точностью описывают эти экспериментальные кривые, что свидетельствует о правомочности наших допущений и версии о происхождении механизма расщепления (удвоения) спутников. Некоторое смазывание дифракционной картины на экспериментальных КДО в области спутников высоких порядков вызвано подавлением спутников диффузной компонентой, вызванной рассеянием от КТ.

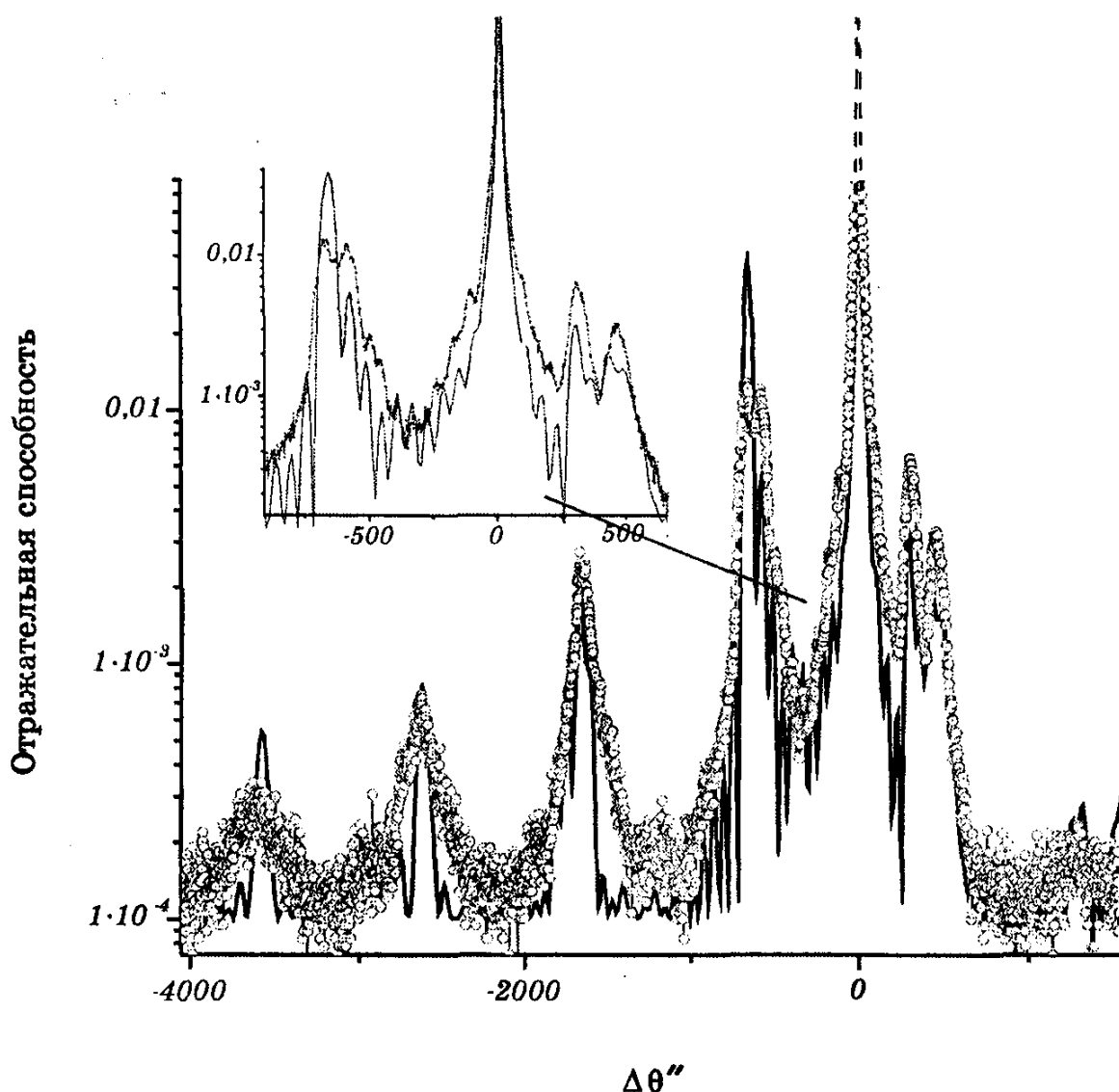


Рис. 5. Экспериментальные (O) и расчетные (—) дифракционные спектры для 400-отражения ($\omega-2\theta$ -сканирование (двухкристальный вариант) для CP InGaAs/GaAs).

Анализ КДО (для симметричных 400-отражений) показал, что структуры в той или иной степени являются псевдоморфными. С учетом этого обстоятельства проводилась оценка среднего содержания индия в квантовых ямах. В результате процедуры подгонки для рефлекса 400 были получены толщины слоев в периоде СР, а также изменение параметра решетки в направлении роста структуры для двух систем периодов СР, которые для приведенного на рис. 5 спектра составляют соответственно 0,045–0,03.

Важными причинами разрешения тонкой структуры сателлитов являются совершенство слоев и их однородность по площади. Как было показано ранее [5, 22], даже при хорошем инструментальном разрешении картина сателлитной структуры для структурных рефлексов сильно зависит от наличия дефектов в том или ином слое СР.

5. ВЫВОДЫ

Показано, что при сканировании кристалла вдоль вектора дифракции наряду со сверхструктурными максимумами, вызванными наличием СР, образуется система сателлитов, обусловленных формированием квантовых точек. Наличие дальнего порядка в расположении этих максимумов на двухмерных картах в обратном пространстве свидетельствует о латеральном и нормальном упорядочении квантовых точек с разными периодами. Об этом также свидетельствует и форма ω -кривых вблизи сверхструктурных максимумов. Однако следует заметить, что фазовые корреляции в направлении вектора дифракции (обратной решетки) более сильны, чем в параллельном направлении. Отметим также, что наличие деформированных областей в структурах, вызванных квантовыми точками, в отличие от других типов нарушений не оказывает существенного влияния на когерентность дифрагированного излучения и, следовательно, на пространственное разрешение метода ВРРД.

Согласие между экспериментальными и теоретически рассчитанными КДО свидетельствуют о том, что многослойная структура, созданная на подложке GaAs, имеет хорошее кристаллическое качество с четкими границами раздела между барьерными слоями GaAs и смачивающим слоем с КТ, а предложенный теоретический подход адекватно описывает экспериментальные спектры.

Применение двухкристального спектрометра для исследования структур с квантовыми точками на начальном этапе исследований может быть более информативным, чем использование трехкристальной схемы с анализатором.

Работа выполнена в рамках бюджетного проекта ИФП НАН Украины «Комплексные структурные и морфологические исследования гетероэпитаксиальных (в том числе наноразмерных) систем на основе полупроводников IV группы и соединений A^3B^5 и A^2B^6 » и

программы «Физика наноструктур».

Авторы выражают благодарность Yu. I. Mazur, Z. M. Wang, M. Xiao и G. J. Salamo (из отделения физики, University of Arkansas, USA) за предоставленные для исследований образцы.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo et al., *IEEE J. Quantum Electron.*, **36**: 556 (2000).
2. H. Li, Q. Zhuang, Z. Wang, and T. Daniels-Race, *Appl. Phys. Lett.*, **87**: 188 (2000).
3. L. Brussaferi, S. Sanguinatti, and E. Grilli, *Appl. Phys. Lett.*, **69**: 3354 (1996).
4. V. Hóly, U. Pietch, and T. Baumbach, *High-Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers* (Berlin: Springer: 1998).
5. Я. И. Нестерец, В. И. Пунегов, К. М. Павлов, Н. Н. Фалеев, *ЖТФ*, **69**, № 2: 44 (1999).
6. V. Kladko, L. Datsenko, V. Machulin et al., *J. Appl. Crystallogr.*, **37**: 150 (2004).
7. D. V. Korbutyak, V. P. Kladko, S. V. Krylyuk et al., *Semicond. Sci. Technol.*, **19**: 475 (2004).
8. T. Mano, R. Notzel, G. J. Hamhuis et al., *J. Appl. Phys.*, **95**, No. 1: 109 (2004).
9. V. Hóly, J. Stangl, G. Springholz et al., *Physica B*, **283**: 65 (2000).
10. I. Kegel, T. H. Metzger, A. Lorke et al., *Phys. Rev. Lett.*, **85**, No. 8: 1694 (2000).
11. Q. D. Zhuang, J. M. Li, Y. P. Zeng et al., *Cryst. Growth*, **200**: 375 (1999).
12. Dong Pan, Y. P. Zeng, J. Wu et al., *Appl. Phys. Lett.*, **70**, No. 18: 2440 (1997).
13. A. Krost, J. Blasing, F. Heinrichsdorf, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.*, **75**, No. 19: 2957 (1999).
14. Н. Н. Фалеев, К. М. Павлов, В. И. Пунегов и др., *ФТП*, **33**, № 11: 1359 (1999).
15. В. П. Кладько, В. Ф. Мачулин, В. В. Стрельчук и др., *Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии*, **1**, № 2: 447 (2003).
16. Y. I. Nesterets and V. I. Punegov, *Acta Crystallogr. A*, **56**: 540 (2000).
17. К. М. Павлов and V. I. Punegov, *Acta Crystallogr. A*, **56**: 227 (2000).
18. A. A. Darchuber, P. Schittenhelm, V. Hóly et al., *Phys. Rev. B*, **55**, No. 23: 15652 (1997).
19. P. H. Dederichs, *Phys. Rev. B*, **4**: 1041 (1971).
20. V. B. Molodkin, S. I. Olikhovski, and M. E. Osinovski, *Phys. Metals*, **5**: 1 (1984).
21. A. Malachias, W. N. Rodriguez, M. V. B. Moreira et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36**, No. 3: A249 (2003).
22. В. П. Кладько, Л. И. Даценко, В. Ф. Мачулин, В. Б. Молодкин, *Металлофиз. новейшие технол.*, **25**, № 5: 547 (2003).