

Анализ состава когерентных нановключений твердых растворов по высокоразрешающим электронно-микроскопическим изображениям

© И.П. Сошников[¶], О.М. Горбенко*, А.О. Голубок*, Н.Н. Леденцов

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

*Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
Санкт-Петербург, Россия

(Получена 30 августа 2000 г. Принята к печати 5 сентября 2000 г.)

Представлен программный комплекс, обеспечивающий возможности прямого и обратного быстрого Фурье преобразования изображений, фильтрации различными способами шумов и частотных окон, определения локальных межплоскостных расстояний по высокоразрешающим электронно-микроскопическим изображениям поперечных сечений. Алгоритм определения локальных межплоскостных расстояний включает получение отфильтрованного по соответствующей комбинации рефлексов высокоразрешающего изображения в результате двойного быстрого преобразования Фурье и последующее определение характерных локальных межплоскостных расстояний по полученному изображению. Отметим, что особенностью алгоритма определения межплоскостных расстояний является использование весового метода с коррекцией области интегрирования. Получаемые в результате обработки карты локальных межплоскостных расстояний могут быть использованы для определения химического состава: в твердых растворах замещения, например A_xB_{1-x} , $A_xB_{1-x}C$. Действие метода продемонстрировано на примере обработки высокоразрешающего электронно-микроскопического изображения гетероструктуры с субмонослойной решеткой InGaAs/GaAs.

1. Введение

Прогресс в современных микроэлектронике и физике полупроводников связан с появлением нового типа объектов — гетероструктур с когерентными включениями нанометровых размеров. Такие гетероструктуры получили название гетероструктур с квантовыми точками [1,2]. Свойства квантово-точечных гетероструктур зависят от особенностей структуры: состава, геометрии, размеров квантовых точек. Традиционные методы, такие как рентгеновская дифрактометрия (РДМ), рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия (РФЭС), электронно-зондовый рентгеновский микроанализ (РМА), не позволяют охарактеризовать объект с необходимой точностью в силу недостаточного пространственного разрешения [3,4]. Применение высокоразрешающей просвечивающей электронной микроскопии (ВРЭМ, НРЕМ) позволяет получить необходимую информацию о структуре [5–7]. Отметим, что методика получения качественного изображения в электронном микроскопе ранее обсуждалась многими исследователями и в настоящее время является отработанной [5–9]. Однако проблема определения состава по изображениям, полученным по методу просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), требует применения их количественной обработки и не является в настоящее время полностью решенной [7,8]. Поэтому цель настоящей работы состоит в развитии методов анализа локального состава квантовых точек по ВРЭМ изображениям поперечных

сечений структуры и создании программного комплекса для такого анализа.

Предлагаемая методика анализа состава базируется на постулате о зависимости решеточных расстояний от состава [9,10], т.е. постулируется, что в случае твердого раствора типа A_xB_{1-x} или $A_xB_{1-x}C$ параметры решетки зависят от состава. ВРЭМ изображения поперечного сечения когерентных включений таких твердых растворов будут иметь отличный от матрицы период [6–8]. Использование этого эффекта в результате применения представляемого алгоритма обработки позволяет количественно определить локальный состав.

2. Описание процедуры

В этой части работы представлена методика обработки ВРЭМ изображений поперечных сечений с целью получения информации о распределении состава. Результаты применения различных численных методов показаны на примере обработки изображения сверхрешеточной гетероструктуры с субмонослойными вставками InAs в матрице GaAs.

2.1. Фильтрация шумов

Оцифрованное ВРЭМ изображение содержит шумы, которые могут быть связаны с подготовкой ПЭМ изображений образцов и получением изображения в микроскопе, проблемами оптического преобразования изображения в компьютерный вид [5,6,11]. Поэтому в качестве первого шага проводились вычитание огибающей и фильтрация шумов методом Вина.

[¶] Факс: (812) 2471017
E-mail: ipsosh@beam.ioffe.rssi.ru

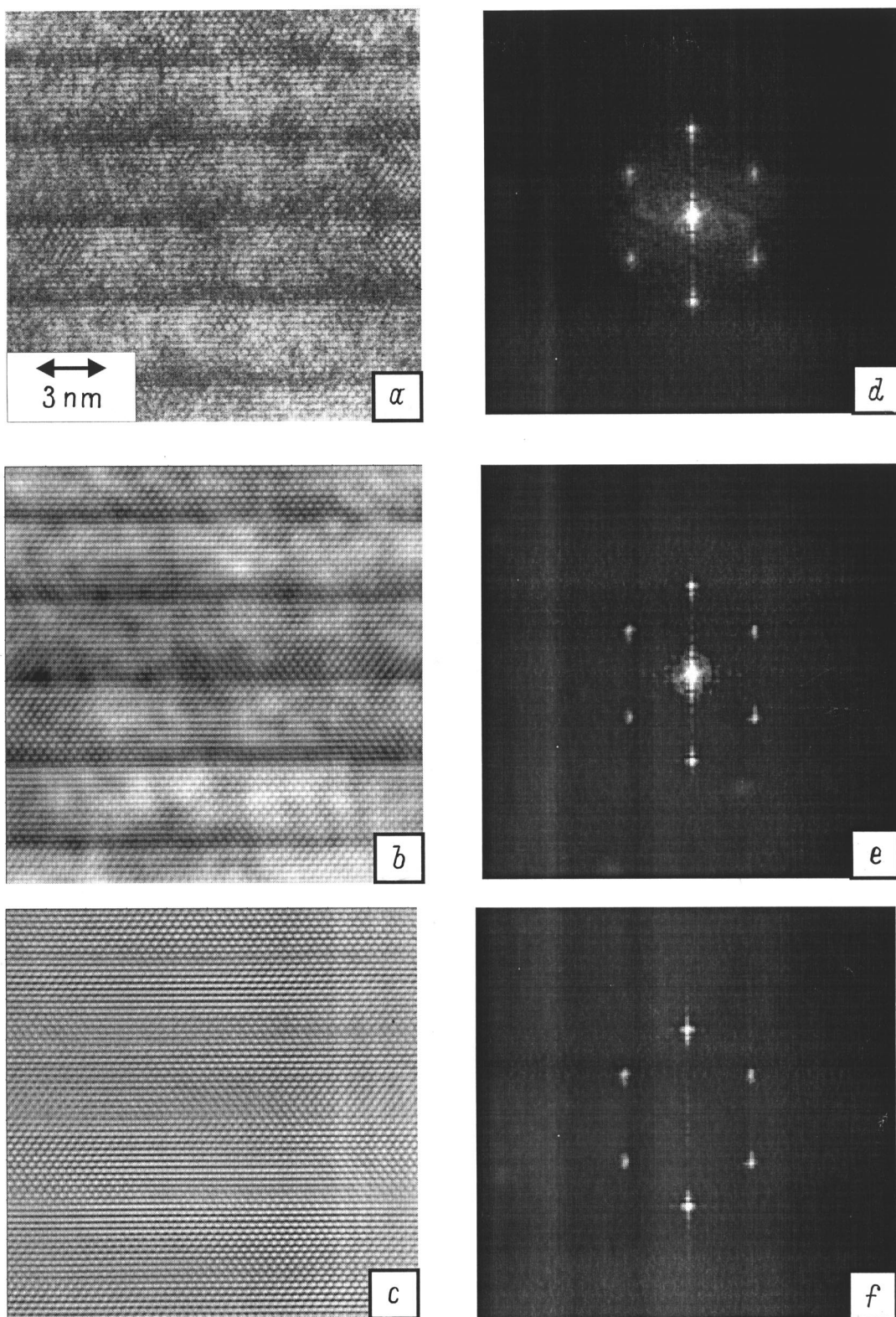


Рис. 1. Высокорастворяющее светлопольное электронно-микроскопическое изображение поперечного сечения (110) сверхрешеточной гетероструктуры с субмонослойными вставками InAs (~ 0.5 монослоев) в матрице GaAs, полученное на электронном микроскопе CM20FEG (*a-c*): *a* — до фильтрации, *b* — после фильтрации шумов методом Вина, *c* — после фильтрации шумов и вычитания огибающей, *d-f* — фурье-образы изображений: *d* — *a*, *e* — *b*, *f* — *c*.

Операция вычитания огибающей может быть представлена в виде [11]

$$I'(x, y) = I(x, y) - I(x, y) \otimes A(x, y),$$

где $I(x, y)$ и $I'(x, y)$ — исходный и обработанный по методу вычитания огибающей сигналы; \otimes — операция свертки; $A(x, y)$ — матрица, содержащая единичные элементы, размер которой соответствует размеру элементов информативной структуры изображения. Фурье-образ после применения такой операции не содержит нулевого рефлекса.

Фильтрация аддитивных шумов изображения осуществляется методом спектрального вычитания [11]:

$$\hat{I}'(k_x, k_y) = \hat{I}(k_x, k_y) - V(k_x, k_y),$$

где $\hat{I}(k_x, k_y)$ и $\hat{I}'(k_x, k_y)$ — исходный и профильтрованный фурье-преобразованные сигналы соответственно; $V(k_x, k_y) = \hat{I}(k_x, k_y)$ при $\hat{I} < \hat{I}_0$, $V = 0$ при $\hat{I} > \hat{I}_0$ — аппаратная функция фильтра по номинальному значению сигнала \hat{I}_0 , которое определяется адаптивно. В алгоритме также реализовано использование \hat{I}_0 , имеющего форму Гаусса, высота и ширина по осям OX и OY которого определяются адаптивно.

Результаты применения операций вычитания огибающей и фильтрация шумов методом Вина для ВРЭМ изображения поперечного сечения сверхрешеточной гетероструктуры с субмонослойными вставками InAs в матрице GaAs и их фурье-образы приведены на рис. 1. Отметим, что фурье-образ после фильтрации шумов и вычитания огибающей не содержит нулевого пика, что может облегчить дальнейшие операции с изображением.

2.2. Фильтрация выделенных частот

В программе реализована возможность фильтрации рефлексов в частотной области. Эта операция выражается в виде

$$\hat{I}'(k_x, k_y) = \hat{I}(k_x, k_y)P,$$

где $\hat{I}(k_x, k_y)$ и $\hat{I}'(k_x, k_y)$ — исходный и профильтрованный фурье-сигналы соответственно; P — частотный фильтр. Программа позволяет реализовать различные фильтры оконного типа. Оператор оконного фильтра выражается в виде

$$P = 1 \text{ при } k_x, k_y \in W, \quad P = 0 \text{ при } k_x, k_y \notin W,$$

где W — область определения окна. В рамках программы могут быть реализованы окна кольцевого, прямоугольного и селективного типов [12].

Так как различные рефлексы несут разную информацию о структуре, важно выделить компоненты спектров, связанные с композицией материала. В многочисленных работах [5–10] указывается, что наиболее информативными с этой позиции являются рефлексы (002). Поэтому один из возможных алгоритмов расчета заключается в селективной фильтрации этих рефлексов. На рис. 2 представлен пример применения селективной фильтрации к изображению, приведенному на рис. 1.

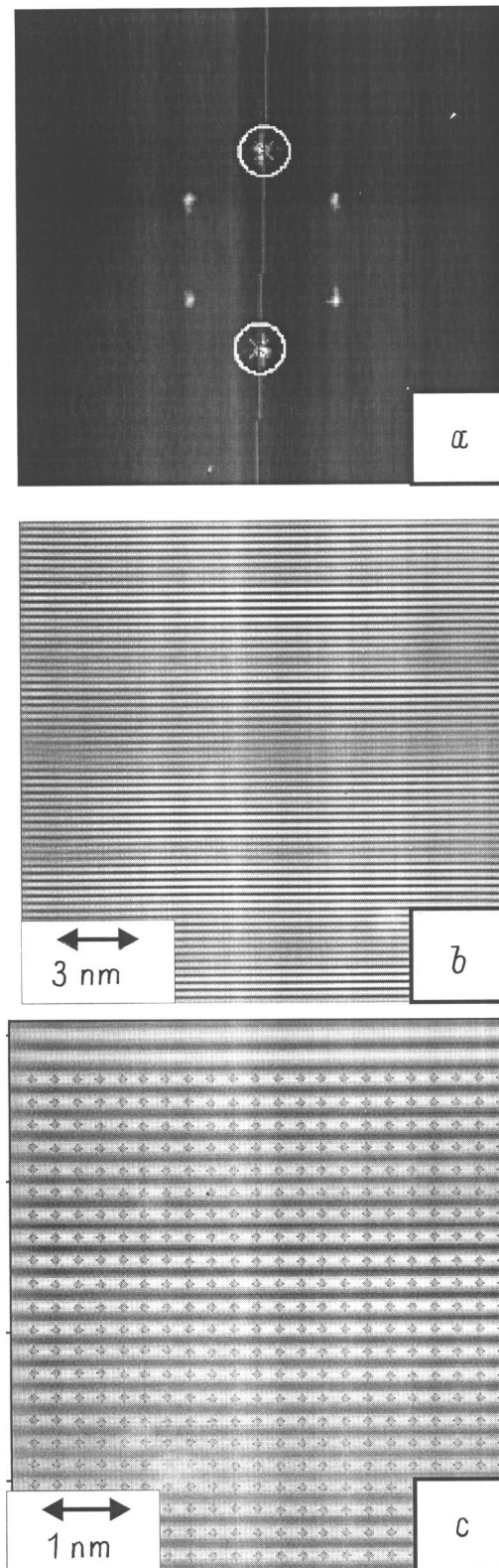


Рис. 2. *a* — фурье-образ изображения после фильтрации шумов и вычитания огибающей с отмеченными областями для селективной фильтрации рефлексов (002), *b* — изображение, полученное в результате фильтрации, оставляющей область рефлексов (200); *c* — фрагментированное изображение рис. *b*.

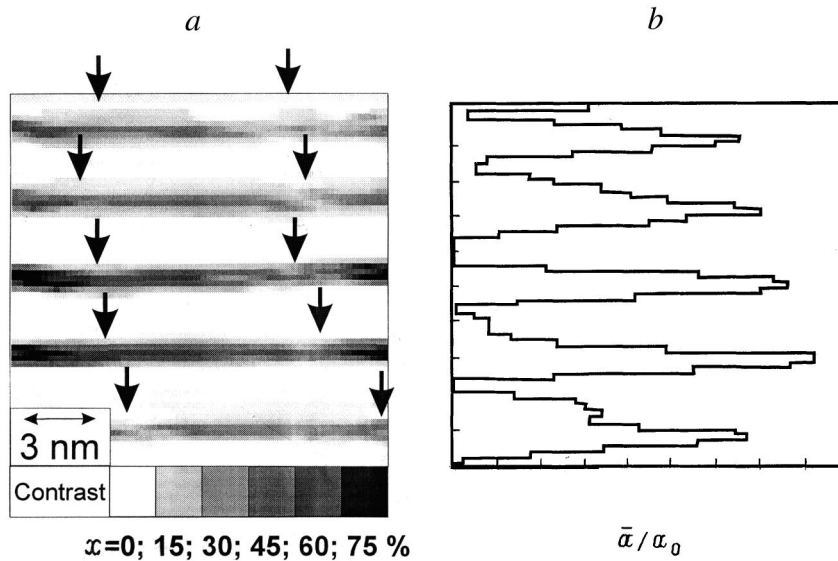


Рис. 3. *a* — карта тонового контраста, связанного с локальными межплоскостными расстояниями (ЛМПР), *b* — среднее значение ЛМПР.

2.3. Процедура определения локальных межплоскостных расстояний (ЛМПР)

Для выполнения этой процедуры требуется изображение, сориентированное так, чтобы нормаль к слоям была близка к вертикальной оси.

Полученное в результате фильтрации изображение фрагментируется в направлениях, параллельном и нормальном к вектору поверхности, который совпадает с кристаллографическим направлением (002). При этом границы областей в направлении, нормальном поверхности, выбираются так, что y_n является n локальным минимумом. Отметим, что минимум определялся с точностью до 0.05 пикселя. В направлении, параллельном поверхности, выбор границ фрагмента осуществлялся адаптивно и составлял величину, близкую периоду. Затем проводилось численное интегрирование сигнала в пределах каждого фрагмента и определялись их весовые центры (x_{ml}, y_{ml}) . Положения весовых центров определялось с точностью не менее, чем 0.01 пикселя, что при обычных размерах фрагментов ~ 10 пикселей составляет около 0.1%. Полученные положения используются для определения локальных относительных межплоскостных расстояний:

$$a_{m,l} = y_{m,l+1} - y_{m,l}.$$

Результаты определения относительных ЛМПР могут быть представлены в виде тоновой карты или графиков средних ЛМПР в направлении нормальном поверхности. На рис. 3 приведены примеры таких карты и графика ЛМПР, полученные в результате обработки изображения рис. 2.

2.4. Определение локального состава по межплоскостным расстояниям

Проблема определения состава по периоду решетки обсуждалась в литературе многократно [5–10]. Основная формула, связывающая параметр решетки a и состав твердых растворов замещения типа $A_xB_{1-x}C$, может быть представлена в виде [9]

$$x = f^{-1} \frac{a - a_A}{a_A} \bigg/ \frac{a_B - a_A}{a_A},$$

где a_A , a_B и a — периоды решеток материалов матрицы, вставки и твердого раствора соответственно; f — фактор тетрагонального сжатия. В работе [13] показано, что фактор тетрагонального сжатия в случае кубических кристаллов может изменяться от величины $f \simeq (1 + \nu)/(1 - \nu)$ для толстых образцов до $f \simeq 1 + \nu$ для тонких. Здесь $\nu = C_{12}/(C_{11} + C_{12})$ — коэффициент Пуассона. Основные формулы для оценки фактора дилатации приведены в *Приложении*. В качестве параметров для расчетов использовались следующие значения постоянных упругости:

$$C_{11} = 8.34, \quad C_{12} = 4.54, \quad C_{44} = 3.95$$

для InAs и

$$C_{11} = 11.9, \quad C_{12} = 5.34, \quad C_{44} = 5.96$$

для GaAs [14–16]. Используя данные о толщине образца и результаты расчета по методике Трейси и Гибсона, можно определить величину фактора тетрагонального сжатия f . Толщина образца, ВРЭМ изображение которого анализировалось выше, составляла около 30 нм, что позволяет оценить величину фактора тетрагонального сжатия как $f \simeq 2$. Полученные результаты позволяют

откалибровать карты ЛМППР по составу, как это сделано на рис. 3, где наблюдаются модуляции состава в пределах каждого слоя. На рис. 3 стрелочками отмечены места минимумов содержания InAs. Характерный размер этих модуляций находится в пределах 12–16 нм. Кроме того, следует отметить, что модуляции при толщине спейсера 3 нм, как правило, оказываются коррелированными. Последний результат находится в хорошем согласии с теорией формирования квантово-точечных сверхрешеток [17,18], которая предсказывает, что в зависимости от толщины спейсера квантовые точки могут располагаться коррелировано, антикоррелировано и случайно. Коррелированное расположение квантовых точек, по теории [17,18], возможно при толщинах спейсеров до величин порядка размеров квантовой точки. Антикоррелированное и случайное расположение квантовых точек становится возможным при толщинах спейсеров больше размеров квантовых точек.

Исследования ПЭМ в геометрии *plan view* показали, что в исследуемом образце наблюдаются нанодомены с формой, близкой к квадратичной, со сторонами, ориентированными в направлениях (100). Характерные размеры нанодоменов в направлении (100) и их плотность составляют около 6–8 нм и $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ соответственно. Сопоставление показывает, что результаты количественной обработки и данные исследований в геометрии *plan view* находятся в хорошем согласии между собой.

Заключение

Таким образом, в работе представлен оригинальный алгоритм количественного анализа ВРЭМ изображений поперечных сечений образцов с когерентными включениями твердых растворов замещения для определения локального состава. Работа алгоритма показана на примере обработки изображения поперечного сечения сверхрешеточной гетероструктуры с субмонослойными вставками InAs в матрице GaAs.

Авторы считают своим приятным долгом выразить признательность проф. В.М. Устинову за предоставленный образец и проф. Д. Гертсен (D. Gerthsen) за предоставленную возможность работы на электронном микроскопе.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 98-02-18229, 00-02-17006, 00-02-17007), INTAS (проекты 96-0467, 97-751, 99-00928) и программы NanOp.

Приложение

Методика расчета фактора дисторсии

В работах Трейси и Гибсона [9,19] был проведен анализ упругой релаксации для случая сверхрешетки с параметром решетки, изменяющимся по синусоидально-

му закону $a = a_0 + \varepsilon_0 \cos(2\pi z/L)$, где a_0 — средний параметр решетки; ε_0 — амплитуда модуляции нерелаксированного параметра решетки, связанного с составом мишени как $x = 2\varepsilon_0/(a_B - a_A)$; a_B, a_A — параметры решеток материалов В или А; L — период модельной сверхрешетки. Из анализа упругих напряжений можно получить формулу для амплитуды модуляций параметра решетки в направлении модуляции после релаксации упругих напряжений ε_{xx} :

$$\frac{\varepsilon_{xx}}{\varepsilon_0 \cos\left(\frac{\pi z}{L}\right)} = \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \left[1 - \beta \frac{AE - CD}{R} + \gamma(1 - 2\nu) \frac{AD + CE}{R} \right],$$

где

$$A = \text{ch}(\beta t/2) \sin(\gamma t/2), \quad E = \text{ch}(\beta x) \cos(\gamma x),$$

$$C = \text{sh}(\beta t/2) \cos(\gamma t/2), \quad D = \text{sh}(\beta x) \sin(\gamma x),$$

$$R = \beta \sin(\gamma t) + \gamma \text{sh}(\beta t),$$

$$\beta = \frac{2\pi\sqrt{2+B}}{L}, \quad \gamma = \frac{2\pi\sqrt{2-B}}{L},$$

$$B = \frac{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12}) - 2C_{12}C_{44}}{C_{44}(C_{11} + C_{12})},$$

C_{11}, C_{12}, C_{44} — коэффициенты упругости, t — толщина образца.

Если теперь представить зависимость параметра решетки в виде ряда Фурье

$$a = a_0 + \sum g_k \varepsilon_0 \cos(2\pi k z/L),$$

то можно оценить фактор дисторсии как

$$f = \sum g_k f_k,$$

где $f_k = \varepsilon_{zz}^{\max}/\varepsilon_0$ — фактор дисторсии для сверхрешетки с синусоидальной модуляцией параметра решетки с периодом $L/2\pi k$.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (J. Wiley, 1999).
- [2] N.N. Ledentsov. *Growth Processes and Surface Phase Equilibria in Molecular Beam Epitaxy*. In: *Springer Tracts in Modern Physics*, **156** (Springer, Berlin, 1999).
- [3] D.P. Woodruff, T.A. Delchar. *Modern techniques of surface science* (Cambridge University Press, 1986).
- [4] D. Brandon, W.D. Kaplan. *Microstructural Characterization of Materials* (J. Wiley, 1999).
- [5] X. Хирш. *Просвечивающая электронная микроскопия тонких пленок* (М., Мир, 1972).
- [6] С. Спенсер. *Экспериментальная высокоразрешающая электронная микроскопия* (М., Мир, 1990).
- [7] R. Bierwolf, M. Hohenstein, F. Philipp, O. Brandt, G.E. Crook, K. Ploog. *Ultramicroscopy*, **49**, 273 (1993).

- [8] A. Rosenauer, S. Kaiser, T. Reisinger, J. Zweck, W. Gerhardt, D. Gerthsen. *Optik*, **102** (2), 63 (1996).
- [9] M.M.J. Treacy, J.M. Gibson. *J. Vac. Sci. Technol.*, **B4**, 1458 (1986).
- [10] *Современная кристаллография*. (М., Мир, 1990) т. 1.
- [11] Л.П. Ярославский. *Введение в цифровую обработку изображений* (М., Сов. радио, 1979).
- [12] O.M. Gorbenko, D.V. Kurochkin, A.O. Golubok. *Proc. I Int. Conf. on Digital Signal Processing and its Application* (Moscow, June 30–July 3, 1998) v. III, part E, p. 130.
- [13] J.W. Cahn. *Acta Met.*, **9**, 795 (1961).
- [14] Ю.А. Буренков, Ю.М. Бурдуков, С.Ю. Давыдов, С.П. Никаноров. *ФТТ*, **15** (6), 1757 (1973). [*Sov. Phys. Sol. St.*, **15** (6), 1175 (1973)].
- [15] Ю.А. Буренков, С.Ю. Давыдов, С.П. Никаноров. *ФТТ*, **17**, 2183 (1975). [*Sov. Phys. Sol. St.*, **17**, 1446 (1975)].
- [16] Landolt-Börnstein. *Num. Data and Functional Relationships in Science and Technology* (Springer Verlag, 1982) v. 17c.
- [17] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2968 (1995).
- [18] V.A. Shchukin, D. Bimberg. *Rev. Mod. Phys.*, **71**, 1125 (1999).
- [19] M.M.J. Treacy, J.M. Gibson. *Ultramicroscopy*, **14**, 345 (1984).

Редактор Т.А. Полянская

Composition analysis of coherent nanostructures of a solid solution by high resolution electron microscopy images

I.P. Soshnikov, O.M. Gorbenko*, A.O. Golubok*, N.N. Ledentsov

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

*Institute of Analytical Instruments,
St. Petersburg, Russia

Abstract A program is presented of back fast Fourier transformation of images, as well as of the filtration by any methods of noises and of spectral windows, and of the calculation of local surface distance (LISD) by high resolution electron microscopy images. The algorithm of LISD calculation includes the filtration of the reflexes combination and the determination of corrected periods by the filtered image. Notice that the algorithm peculiarity is applied to the weight method with correction of summary ranges. The map of LISD obtained can be used for determining composition of the exchange solid solution, for example: A_xB_{1-x} , $A_xB_{1-x}C$. The method employment is demonstrated on InGaAs/GaAs submonolayer superlattice heterostructure image.