

01;05

Диффузное рассеяние рентгеновских лучей на системах с квантовыми точками эллипсоидальной формы

© В.И. Пунегов, Д.В. Сивков, В.П. Кладько

Коми научный центр УрО РАН, Сыктывкар, Россия
Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева НАН Украины,
Киев, Украина
E-mail: vpunegov@dm.komisc.ru

Поступило в Редакцию 29 ноября 2010 г.

Разработана теория диффузного рассеяния на полупроводниковых системах с квантовыми точками (КТ) эллипсоидальной формы. Для вычисления упругих деформаций вне КТ использован метод разложения по мультиполям. Выражение для поля атомных смещений представлено с точностью до квадрупольного члена разложения. В рамках данного подхода получено аналитическое решение для диффузного рассеяния от кристаллической среды с эллипсоидальными включениями. Проведено численное моделирование карт распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве для разных отношений высоты и латерального радиуса квантовой точки.

Эффективным методом исследования различных систем с самоорганизованными квантовыми точками является высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия [1–4].

Распределению упругих деформаций вокруг квантовых точек (КТ) в последние годы уделяется пристальное внимание (см. [5] и приведенную в обзоре литературу). Вычисления упругих деформаций в основном проводятся численными методами с использованием формализма функции Грина или метода конечных элементов. Данная проблема весьма сложна для рассмотрения и, как правило, в редких случаях допускает аналитическое решение. С другой стороны, изучение систем с КТ методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии требует построения моделей с учетом распределения упругих деформаций. Такая задача является еще более сложной, поскольку требует как вычисления упругих деформаций, так и расчета диффузионного рассеяния рентгеновских лучей на искажениях кристаллической решетки,

вызванных этими деформациями. По-видимому, из-за сложности таких исследований число работ в этом направлении в настоящее время незначительно [6–8].

Известно, что теория диффузного рассеяния достаточно полно разработана для модели сферически симметричных включений, однако такая форма самоорганизованных КТ встречается крайне редко. Как правило, размер квантовой точки в латеральном направлении существенно превышает ее вертикальный размер. В [6–8] рассматривалась цилиндрическая форма КТ, учитывались упругая деформация и релаксация напряжений на свободной поверхности. В этих работах решение для вычисления диффузного рассеяния представлено в виде произведения Фурье-образа поля смещений точечного дефекта и функции формы КТ. Такой подход не совсем корректен, поскольку пространственное изменение деформаций от включений сферической и цилиндрической форм отличается [9]. С другой стороны, это отличие не столь существенно для дефектов в виде эллипсоида вращения. Недавно эллипсоидальная форма КТ InAs была обнаружена методом сканирующей туннельной микроскопии [10].

В [11] для вычисления наведенных деформаций от КТ использована аналогия между задачами электростатики и теории упругости. Вектор упругих смещений в точке \mathbf{r} кристаллической среды, вызываемый включением произвольной формы, может быть записан в виде

$$\delta \mathbf{u}(\mathbf{r}) = \Lambda \int_V \frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3} d\mathbf{r}', \quad (1)$$

где $\Lambda = \varepsilon_0(1 + \nu)/[4\pi(1 - \nu)]$, $\varepsilon_0 = (a_{inclusion} - a_{matrix})/a_{matrix}$ — рассогласование решеток включения $a_{inclusion}$ и матрицы a_{matrix} , ν — коэффициент Пуассона, V — объем включения. Введем понятие потенциала однородного включения [11]

$$\varphi(\mathbf{r}) = \Lambda \int_V \frac{d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (2)$$

который может быть вычислен методом разложения по мультиполям

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^{-1} = (r^2 - 2rr' \cos(\gamma) + r'^2)^{-1/2} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{r'^n}{r^{n+1}} P_n(\cos(\gamma)), \quad (3)$$

где $P_n(\cos(\gamma))$ — полиномы Лежандра, γ — угол между векторами \mathbf{r} и \mathbf{r}' . Таким образом, потенциал (2) можно записать в виде ряда

$$\varphi(\mathbf{r}) = \varphi_0(\mathbf{r}) + \varphi_1(\mathbf{r}) + \varphi_2(\mathbf{r}) \dots \varphi_n(\mathbf{r}) \dots, \quad (4)$$

где $\varphi_n(\mathbf{r}) = \Lambda \frac{P_n(\cos(\gamma))}{r^{n+1}} \Omega_n$, $\Omega_n = \int_V r'^n d\mathbf{r}'$. Здесь $\varphi_0(\mathbf{r})$ описывает потенциал точечного или сферически симметричного поля, $\varphi_1(\mathbf{r})$ и $\varphi_2(\mathbf{r})$ — дипольный и квадрупольный члены разложения и т.д.

Согласно (1) и (2), поле атомных смещений от КТ определяется градиентом потенциала $\delta\mathbf{u}(\mathbf{r}) = -\nabla\varphi(\mathbf{r})$, следовательно, оно также может быть записано в виде ряда

$$\delta\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \delta\mathbf{u}_0(\mathbf{r}) + \delta\mathbf{u}_1(\mathbf{r}) + \delta\mathbf{u}_2(\mathbf{r}) + \dots \delta\mathbf{u}_n(\mathbf{r}) \dots, \quad (5)$$

где $\delta\mathbf{u}_n(\mathbf{r}) = \Lambda(n+1) \frac{r P_n(\cos(\gamma))}{r^{n+3}} \Omega_n$. Для точечного (или сферически симметричного) источника упругих напряжений решение (1) хорошо известно как поле атомных смещений „кулоновских дефектов“ [12] и определяется главным членом разложения (5)

$$\delta\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \delta\mathbf{u}_0(\mathbf{r}) = \begin{cases} \text{random,} & |\mathbf{r}| \leq R, \\ \Lambda \frac{4\pi R^3}{3} \frac{\mathbf{r}}{r^3}, & |\mathbf{r}| > R. \end{cases} \quad (6)$$

Здесь R — радиус сферического включения.

Рассмотрим модель КТ в форме эллипсоида вращения (рис. 1). Пусть l_z — вертикальная эллиптическая ось, R — горизонтальный радиус ($2R$ — латеральная эллиптическая ось). В рамках данной модели упругие смещения с точностью до квадрупольного члена разложения по мультиполям имеют вид

$$\delta\mathbf{u}(\mathbf{r}) \approx \begin{cases} \text{random,} & |z| \leq |l_z/2|, \sqrt{x^2 + y^2} \leq R, \\ A \frac{\mathbf{r}}{r^3} + B \frac{\mathbf{r}(3 \cos^2(\theta) - 1)}{r^5}, & |z| > |l_z/2|, \sqrt{x^2 + y^2} > R. \end{cases} \quad (7)$$

Здесь $A = \Lambda V_{ell}$ — мощность КТ эллипсоидальной формы, $V_{ell} = \frac{2\pi}{3} l_z R^2$ — объем эллипса, $B = -A \frac{3(R^2 - (l_z/2)^2)}{25}$. В отличие от (6), для эллипсоидальных КТ упругие смещения зависят от угла θ между осью z

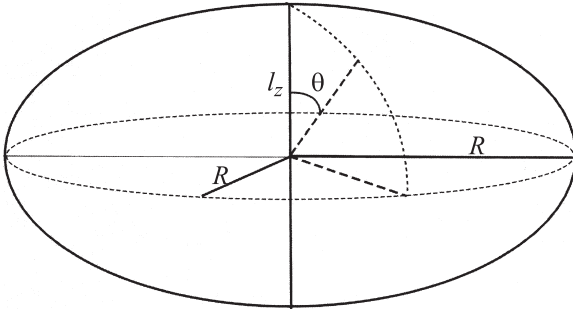


Рис. 1. Модель квантовой точки в форме эллипсоида вращения.

и направлением \mathbf{r} (рис. 1). В случае $l_z = 2R$ эллипсоид принимает форму сферы, коэффициент B обращается в нуль и решение (7) трансформируется в формулу (6).

Интенсивность диффузного рассеяния запишем как

$$I_h^d(\mathbf{q}) = K_D |D(\mathbf{q})|^2, \quad (8)$$

где K_D — постоянный коэффициент [13]. Амплитуда диффузного рассеяния имеет вид

$$D(\mathbf{q}) = D_{SW}(\mathbf{q}) + D_H(\mathbf{q}) + D_Q(\mathbf{q}). \quad (9)$$

В (9) первое слагаемое $D_{SW}(\mathbf{q})$ — амплитуда рассеяния для эллиптических включений без учета деформаций вне КТ (амплитуда рассеяния Стокса–Вильсона), $D_H(\mathbf{q})$ — амплитуда хуанговского рассеяния, $D_Q(\mathbf{q})$ — поправка к амплитуде за счет учета квадрупольного члена поля деформаций.

Вычисление амплитуды рассеяния Стокса–Вильсона для эллиптического включения выполнено в цилиндрической системе координат. Решение может быть представлено в виде

$$D_{SW}(\mathbf{q}) = 2\pi \int_{-l_z/2}^{l_z/2} \frac{R_z}{q_0} J_1(q_0 R_z) \exp(iq_z z) dz, \quad (10)$$

где $J_1(q_0 R_z)$ — функция Бесселя первого порядка, $q_0 = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$, $R_z = R \sqrt{1 - z^2 / (l_z/2)^2}$.

Второй член суммы (9) описывает хуанговское рассеяние. Расчет этого слагаемого производился в обобщенной сферической системе координат, в итоге получено следующее выражение для амплитуды хуанговского диффузного рассеяния:

$$D_H(\mathbf{q}) = \frac{2\pi A \mathbf{h}\mathbf{q}}{q^2} \Phi_1(q, R, l_z). \quad (11)$$

Здесь функция $\Phi_1(q, R, l_z)$ зависит от $q = \sqrt{q_x^2 + q_y^2 + q_z^2}$ и параметров R, l_z эллипсоида вращения:

$$\Phi_1(q, R, l_z) = \int_{-1}^1 dx \exp(iq\rho(x, l_z)x),$$

где

$$\rho(x, l_z) = R \left(1 + \left[\frac{R^2}{(l_z/2)^2} - 1 \right] x^2 \right)^{-1/2}.$$

Квадрупольная поправка при $R \leq 4l_z$ существенно меньше двух первых слагаемых в (9) и может быть записана по аналогии с (11) как

$$D_Q(\mathbf{q}) = 6\pi A \frac{[R^2 - (l_z/2)^2] \mathbf{h}\mathbf{q}}{25} \Phi_2(q, R, l_z), \quad (12)$$

где

$$\Phi_2(q, R, l_z) = \int_{-1}^1 dx (3x - 1)x^2 \left(\frac{e^{iqR(x)x}}{iqR(x)x} + E_1(-iqR(x)x) \right),$$

$$E_1(iR) = \int_R^\infty dz \frac{\exp(-iz)}{z}$$

— интегральная экспонента.

На основе решений (8)–(12) проведено численное моделирование карт распределения интенсивности диффузного рассеяния в обратном пространстве от кристаллической среды с хаотически распределенными КТ эллипсоидальной формы. Для простоты рассмотрим модель бесконечной среды и не будем учитывать релаксацию напряжений на свободной поверхности, а также пространственную корреляцию в расположении КТ.

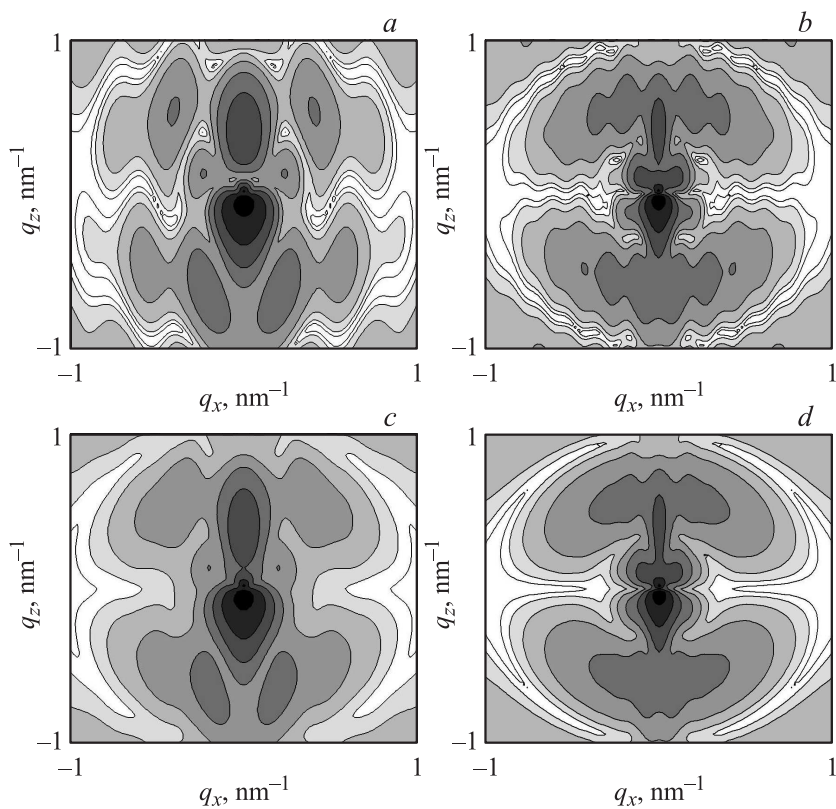


Рис. 2. Карты распределения интенсивности рассеяния от кристаллической системы с КТ эллипсоидальной формы: *a, c* — высота КТ $l_z = 10$ nm, латеральный радиус $R = 20$ nm; *b, d* — высота КТ $l_z = 10$ nm, латеральный радиус $R = 40$ nm. *a, b* — КТ одного размера; *c, d* — КТ разного размера; дисперсия флуктуаций размеров КТ в вертикальном и латеральном направлениях 30 %.

Высота КТ во всех вычислениях карт распределения интенсивности диффузного рассеяния вблизи узла обратной решетки составляла 10 nm. На рис. 2, *a* показаны контуры равной интенсивности для КТ одного размера с латеральным радиусом $R = 20$ nm. На этом и всех последующих рисунках с изображениями карт распределения диффузного рассеяния отношение интенсивностей между соседними контурами дается в логарифмическом масштабе и равно 0.237. Поскольку латеральный размер в

4 раза больше высоты КТ, то картина диффузного рассеяния существенно отличается от случая сферически симметричных включений [13]. Наблюдается сужение углового распределения интенсивности рассеяния, к тому же оно имеет ясно выраженный осцилляционный характер. Дальнейшее увеличение латерального размера КТ ($R = 40 \text{ nm}$) еще сильнее меняет контуры равной интенсивности диффузного рассеяния (рис. 2, *b*) по сравнению со сферически симметричными включениями.

В процессе эпитаксиального роста невозможно создать совершенно одинаковые самоорганизованные КТ, поэтому необходимо провести процедуру усреднения по размерам включений. Результаты такого усреднения показаны на рис. 2, *c* и *d*.

Следует подчеркнуть, что, исходя из численных оценок, формирование картины диффузного рассеяния преимущественно определяется двумя первыми членами суммы (9). Вклад квадрупольного члена разложения упругого поля смещений крайне мал и по угловому распределению имеет сходство с хуанговским рассеянием.

В заключение отметим, что для расчета упругих полей деформаций эллиптического включения существует аналитическое решение [14], однако вычисление диффузного рассеяния на основе этого решения не менее сложно и требует не меньших временных затрат, чем, например, использование метода конечных элементов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 10-02-00445-а), а также при финансовой поддержке в рамках проектов: НАН Украины № 3.5.1.12, № 3.5.1.30 (Государственная целевая научно-техническая программа „Нанотехнологии и наноматериалы“) и МОН Украины № М90/2010.

Список литературы

- [1] *Springholz G., Holy V. Lateral Alignment of Epitaxial Quantum Dots.* Berlin: Springer, 2007. P. 247–303.
- [2] *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. Т. 33. В. 11. С. 1359–1368.*
Faleev N.N., Egorov A.Yu., Zgukov A.E., Kovsh A.R., Mikhrin S.S., Punegov V.I., Pavlov K.M., Tabuchi M., Takeda Y. // Semiconductors. 1999. V. 33. N 11. P. 1229–1237.

- [3] Пунегов В.И. // Письма в ЖТФ. 2008. Т. 34. В. 20. С. 8–14;
Punegov V.I. // Tech. Phys. Lett. 2008. V. 34. P. 864–866.
- [4] Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92. В. 7. С. 483–489;
Punegov V.I., Faleev N.N. // JETP Letters. 2010. V. 92. N 7. P. 437–443.
- [5] Maranganti R., Sharma P. // Handbook of Theoretical and Computational Nanotechnology. N.Y.: Amer. Sci. Publishers, 2005. V. 1. P. 1–44.
- [6] Darhuber A.A., Schüttenhelm P., Holý V., Stangl J., Bauer G., Abstreiter G. // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. P. 15652–15663.
- [7] Holý V., Darhuber A.A., Stangl J., Zerlauth S., Schäffler F., Bauer G., Darowski N., Lübbert D., Pietsch U., Vávra I. // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 7934–7943.
- [8] Bauer G., Darhuber A.A., Holý V. // Cryst. Res. Technol. 1999. V. 34. P. 197–209.
- [9] Yang M., Sturm J.C. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. P. 1973–1980.
- [10] Blokland J.H., Bozkurt M., Ulloa J.M., Reuter D., Wieck A.D., Koenraad P.M., Cristianen P.C.M., Maan J.C. // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 94. P. 093107 (1–3).
- [11] Nenashev A.V., Dvurechenskii A.V. // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 064322 (1–8).
- [12] Ekstein H. // Phys. Rev. 1945. V. 68. N 5–6. P. 120.
- [13] Пунегов В.И. // Кристаллография. 2009. В. 54. С. 423–431; Punegov V.I. // Crystallography Reports. 2009. V. 54. P. 391–398.
- [14] Eshelby J.D. // Proc. R. Soc. London. 1959. V. A252. P. 561–569.