

01;05

## **Влияние вертикальной корреляции квантовых точек на диффузное рассеяние рентгеновских лучей**

© В.И. Пунегов

Коми Научный Центр УрО РАН, Сыктывкар  
E-mail: vpunegov@dm.komisc.ru*Поступило в Редакцию 28 января 2013 г.*

В рамках статистической теории дифракции исследовано влияние вертикальной корреляции квантовых точек (КТ) на диффузное рассеяние рентгеновских лучей в многослойных структурах. Рассмотрена модель дальнего структурного порядка для функции пространственного распределения вертикально совмещенных КТ. Проведено численное моделирование диффузного рассеяния в сверхрешетках с КТ. Показано применение полученных результатов для количественного анализа гетероструктур с КТ по экспериментальным данным высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии.

Упорядоченность квантовых точек (КТ) в полупроводниковых структурах играет важную роль в явлении туннелирования носителей заряда в квантовой среде. Системы с вертикально совмещенными КТ можно рассматривать в качестве базовых элементов для инжекционных гетеролазеров, солнечных элементов, транзисторов, квантовых компьютеров и т.д. [1]. Перспективным методом исследования пространственного распределения КТ в полупроводниковой матрице является высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия [2]. Несмотря на то что данный метод является неразрушающим, высокочувствительным, бесконтактным и экспрессным, позволяет исследовать структурные характеристики всего образца, а не отдельных его участков, однако используется реже, чем, например, электронная микроскопия [3]. Связано это с тем, что дифракция рентгеновских лучей относится к числу непрямых методов, требующих развития теории и проведения численного моделирования. Кроме того, следует учитывать все факторы, влияющие на угловое распределение интенсивности рассеяния рентгеновских лучей от наноструктурированных сред.

Данная работа посвящена теоретическому исследованию диффузного рассеяния рентгеновских лучей от сверхрешеток (СР) с вертикально совмещенными КТ для количественного анализа структурных характеристик полупроводниковых гетеросистем.

При наличии пространственной корреляции КТ в сверхрешетке выражение для интенсивности диффузного рассеяния имеет вид

$$I_h^d(\mathbf{q}) = |a_h|^2(1 - f^2)V_0T(\mathbf{q}), \quad (1)$$

где  $V_0$  — засвеченный рентгеновским пучком объем кристалла,  $\mathbf{q}$  — угловая координата в обратном пространстве,  $f = (f_1l_1 + f_2l_2)/l_{SL}$  и  $a_h = (a_1l_1 + a_2l_2)/l_{SL}$  — усредненные значения статического фактора Дебая–Валлера и рассеивающей способности СР,  $l_{1,2}$  и  $f_{1,2}$  — толщины слоев и статические факторы периода СР,  $l_{SL} = l_1 + l_2$  — толщина периода сверхрешетки.

Основным параметром выражения (1), отвечающим за угловое распределение интенсивности диффузного рассеяния, является корреляционный объем

$$T(\mathbf{q}) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\boldsymbol{\rho} G(\boldsymbol{\rho}) \exp(i\mathbf{q}\boldsymbol{\rho}), \quad (2)$$

где  $G(\boldsymbol{\rho})$  — обобщенная корреляционная функция. Отметим, что пространственная корреляция КТ может быть описана моделями дальнего или ближнего порядка. В случае дальнего порядка имеет место жесткая фиксация равновесных положений всех КТ, при этом эти равновесные положения имеют строгий трансляционный порядок. Для ближнего порядка значение имеет закон распределения ближайших соседей, при этом отсутствует строгая периодическая фиксация всех соседей. Обобщенная корреляционная функция может быть представлена в виде свертки функции пространственного распределения КТ  $W(\boldsymbol{\rho})$  и их собственной корреляционной функции  $g(\boldsymbol{\rho})$ :

$$G(\boldsymbol{\rho}) = \int_{-\infty}^{\infty} d\boldsymbol{\rho}' W(\boldsymbol{\rho}') g(\boldsymbol{\rho}' + \boldsymbol{\rho}). \quad (3)$$

Собственную корреляционную функцию КТ можно представить в виде

$$g(\boldsymbol{\rho}) = (1/V_p) \int D(\mathbf{r})D^*(\mathbf{r} + \boldsymbol{\rho})d\mathbf{r}, \quad (4)$$

где  $V_p$  — объем КТ. Функция  $D(\mathbf{r})$  зависит от поля случайных деформаций и описывает локальные нарушения кристаллической решетки. В рассматриваемом случае эти нарушения вызваны присутствием КТ в кристаллической матрице. Поведение собственной корреляционной функции определяется формой, размерами КТ, а также распределением упругих деформаций вокруг внедренных в кристаллическую матрицу наноструктур.

В сверхрешетке расположение КТ в вертикальном направлении вдоль оси  $z$  имеет строго выраженный дальний порядок, связанный с периодическим чередованием слоев разного химического состава. В латеральном направлении самоорганизованные КТ в большинстве случаев создают ближний порядок, который можно описать паракристаллической моделью [4]. Функция пространственного распределения КТ  $W(\boldsymbol{\rho})$  может быть записана в виде произведения

$$W(\boldsymbol{\rho}) = W_L(\rho_x, \rho_y)W_V(\rho_z), \quad (5)$$

где  $W_L(\rho_x, \rho_y)$  описывает латеральное и  $W_V(\rho_z)$  — вертикальное распределение КТ.

Поскольку функция  $W_L(\rho_x, \rho_y)$  детально исследована в [4], латеральное распределение КТ оставим вне рамок данной работы и для простоты примем  $W_L(\rho_x, \rho_y) \equiv 1$ .

Рассмотрим более детально вертикальную корреляционную функцию  $W_V(\rho_z)$ . Пусть функция  $w(z)$  задает вероятность расположения наночастицы в точке  $z$ , тогда положение другой частицы в точке  $z'$ , сдвинутой строго в вертикальном направлении на расстояние  $\rho_z = z - z'$ , описывается функцией  $w(z')$ . Тогда по определению [5] вертикальная корреляционная функция может быть представлена в виде свертки

$$W_V(\rho_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} dz w(z)w(z - \rho_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} dz' w(z')w(z' + \rho_z). \quad (6)$$

Обычно вертикальное совмещение (стекирование) КТ формируется в условиях заданной ростовой технологии и зависит от многих параметров, в частности от распределения упругих деформаций, толщин смачивающего и разделяющего (спейсера) слоев, их композиционного состава, температуры роста и т.д. В результате последовательного осаждения смачивающих и разделяющих слоев формируется СР с массивом КТ, имеющих трансляционную упорядоченность в вертикальном направлении. Трансляционный период соответствует периоду сверхрешеточной модуляции композиционного состава. Поэтому  $w(z)$ , описывающая стекирование КТ, является периодической функцией и  $w(z) = w(z + l_{SL})$ . Пусть  $l_v$  — вертикальное расстояние по толщине СР, на котором КТ выстроены в колонку строго друг над другом. Назовем это расстояние толщиной стекирования КТ. С другой стороны, это расстояние  $l_v$  может быть определено как вертикальная длина корреляции.

С учетом вышесказанного корреляционный объем (2), отвечающий за угловое распределение диффузного рассеяния от гетероструктур с КТ, может быть записан в виде произведения

$$T(\mathbf{q}) = \tau(\mathbf{q})F_V(q_z), \quad (7)$$

где

$$\tau(\mathbf{q}) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho g(\rho) \exp(i\mathbf{q}\rho) \quad (8)$$

— собственный корреляционный объем, зависящий от формы, размеров и упругих деформаций КТ [6]. Влияние вертикального совмещения КТ на распределение диффузного рассеяния описывается интерференционным структурным фактором

$$F_V(q_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho_z \exp(iq_z\rho_z)W_V(\rho_z). \quad (9)$$

Подставив (6) в выражение (9), для интерференционного структурного фактора вдоль вертикального направления  $z$  получаем

$$F_V(q_z) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dz w(z) \exp(iq_z z) \right|^2. \quad (10)$$

Запишем интерференционный структурный фактор стекированных КТ в виде

$$F_V(q_z) = \begin{cases} F_V(q_z, l_v), & |z| \leq l_v, \\ 1, & |z| > l_v, \end{cases} \quad (11)$$

где

$$F_V(q_z, l_v) = \left| \frac{1}{2l_v} \int_{-l_v}^{l_v} dz w(z) \exp(iq_z z) \right|^2. \quad (12)$$

Такое представление структурного фактора стекированных КТ означает следующее: интерференционное диффузное рассеяние в вертикальном направлении формируется КТ, периодически расположенными вдоль оси  $z$  на расстоянии корреляционной длины. За пределами толщины стекирования корреляционные эффекты отсутствуют, поэтому  $F_V(q_z) \equiv 1$ . Если в СР нет вертикально совмещенных КТ, т.е. корреляционная длина  $l_v$  меньше периода СР  $l_{SL}$ , интерференционный фактор в вертикальном направлении всегда принимает значение 1. Это означает, что в спектре углового распределения интенсивности будут отсутствовать сверхструктурные порядки диффузного рассеяния (сателлиты). Форма изодиффузных линий в этом случае зависит только от усредненных структурных характеристик случайно распределенных вдоль оси  $z$  КТ и описывается их собственным корреляционным объемом (8).

Поскольку  $w(z)$ , как было отмечено выше, является периодической функцией, ее можно рассматривать в рамках модели дальнего порядка и записать в виде ряда Фурье

$$w(z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} B_n \exp(-inK_{SL}z), \quad (13)$$

где  $K_{SL} = 2\pi/l_{SL}$  — период модуляции сверхрешетки в обратном пространстве (расстояние между дифракционными сателлитами). Фурье-коэффициенты в (13) равны

$$B_n = \frac{1}{l_{SL}} \int_{-l_{SL}/2}^{l_{SL}/2} w(z) \exp(inK_{SL}z) dz. \quad (14)$$

Подставляя (13) в (12), получаем

$$F_V(q_z, l_v) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left| B_n \frac{\sin([q_z - nK_{SL}]l_v)}{[q_z - nK_{SL}]l_v} \right|^2. \quad (15)$$

Интерференционный фактор стекированных КТ в виде (15) имеет прозрачный физический смысл. Сверхструктурные максимумы диффузного рассеяния от СР с вертикально совмещенными КТ формируются вблизи узла обратной решетки при значениях  $q_z^{SL} = nK_{SL} = 2\pi n/l_{SL}$ , где  $n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$  указывает на порядковый номер диффузного сателлита. Интенсивности диффузных максимумов определяются фурьекоэффициентами  $B_n$ . Согласно (14), значения этих коэффициентов зависят от статистического распределения центров КТ. Из-за разного размера КТ эти центры могут смещаться относительно гетерограницы между смачивающим слоем и спейсером. Ширины диффузных сателлитов в обратном пространстве вдоль вертикального направления зависят от корреляционной длины  $l_v$ . Поскольку в СР с самоорганизованными КТ толщины стекирования соседних вертикальных колонок из КТ могут отличаться, то для описания диффузного рассеяния необходимо ввести статистически усредненную корреляционную длину  $\bar{l}_v$ , а также соответствующую дисперсию ее вероятностного распределения. Интерференционный фактор стекированных КТ в этом случае может быть записан в виде

$$F_V(q_z, \bar{l}_v) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} |B_n|^2 \Psi(q_z, \bar{l}_v, n), \quad (16)$$

где  $\Psi(q_z, \bar{l}_v, n)$  определяется вероятностной функцией распределения  $p(z, \bar{l}_v)$  корреляционных длин по толщине СР:

$$\Psi(q_z, \bar{l}_v, n) = \int_0^{\infty} \left| \frac{\sin([q_z - nK_{SL}]z)}{[q_z - nK_{SL}]z} \right|^2 p(z, \bar{l}_v) dz. \quad (17)$$

Рассмотрим модель, в рамках которой вертикальная вероятностная функция распределения КТ в промежутке  $(-l_{SL}/2; l_{SL}/2)$  имеет вид

$$w(z) = \exp(-|z|/a). \quad (18)$$

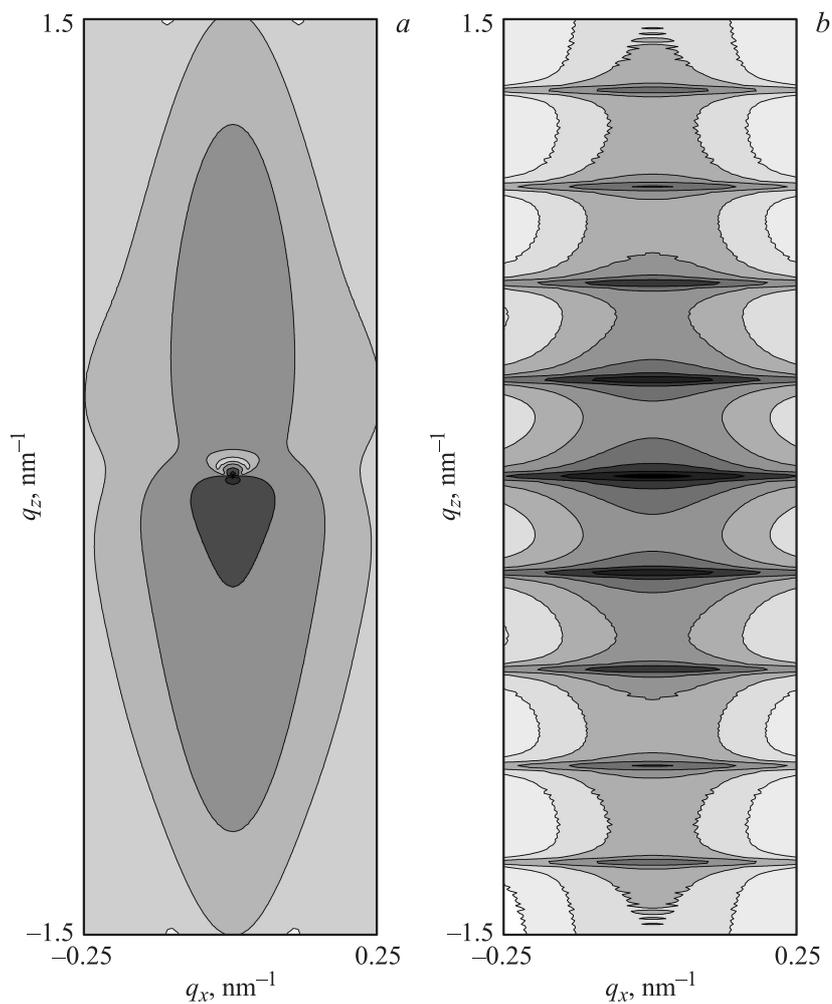
Для этой экспоненциальной функции фурье-коэффициенты (14) имеют аналитическое решение

$$B_n = \frac{2a/l_{SL}}{1 + 4\pi^2(a/l_{SL})^2 n^2} (1 - ie^{-l_{SL}/2a}(-1)^n). \quad (19)$$

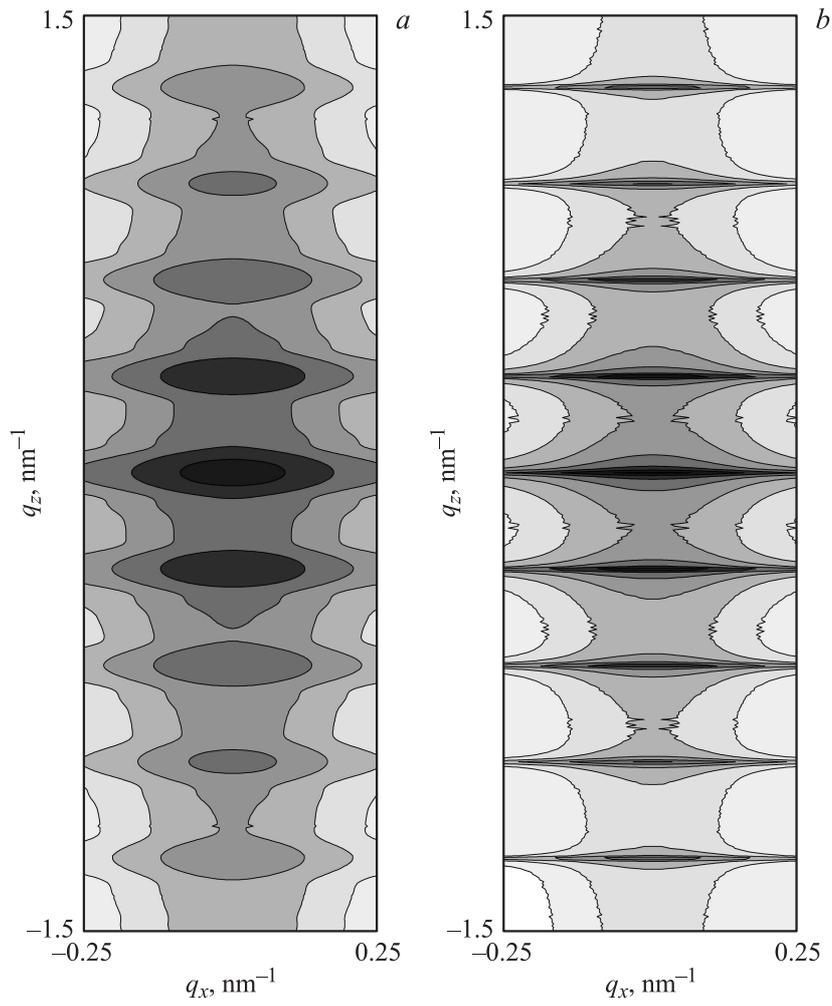
Численное моделирование углового распределения диффузного рассеяния проведем для двадцатипериодной сверхрешетки InAs QDs–GaAs с КТ эллипсоидальной формы [5]. Период СР равен 20 nm, толщина спейсера GaAs — 15 nm. Средний латеральный радиус КТ равен  $R = 12.5$  nm, высота КТ  $l_z = 5$  nm. Статистическое усреднение по размерам КТ и по длине корреляции выполнено с использованием логарифмического нормального распределения. Дисперсия разброса КТ по размерам составляла 30% от радиуса и высоты КТ. В расчетах использована формула (18) для описания вертикального распределения КТ, параметр  $a = 3$  nm. На рис. 1, *a* представлена карта углового распределения интенсивности диффузного рассеяния в отсутствие вертикальной корреляции. Это выполняется при условии  $l_v < l_{SL}$ , т.е. в многослойной структуре отсутствуют колонки стекированных КТ. Здесь и на следующих картах контуры равной интенсивности диффузного рассеяния представлены в логарифмическом масштабе, отношение интенсивностей между соседними линиями равно 0.875. Картина диффузного рассеяния на рис. 1, *a* находится в полном соответствии с контурами равной интенсивности от кристалла с хаотически распределенными включениями эллипсоидальной формы. Таким образом, некогерентное рассеяние на сверхрешетке в отсутствие вертикальной корреляции КТ не сопровождается формированием сверхструктурных диффузных сателлитов.

Угловое распределение диффузного рассеяния от СР с учетом статистического разброса толщин стекирования  $\bar{l}_v = 10l_{SL}$  и дисперсией  $\sigma_v = \bar{l}_v/4 = l_{SL}$  демонстрирует рис. 1, *b*. Отметим, что полуширина диффузных пиков в вертикальном направлении может быть оценена как  $\Delta q_z \approx 0.444\pi/l_v \approx 0.007$  nm<sup>-1</sup>.

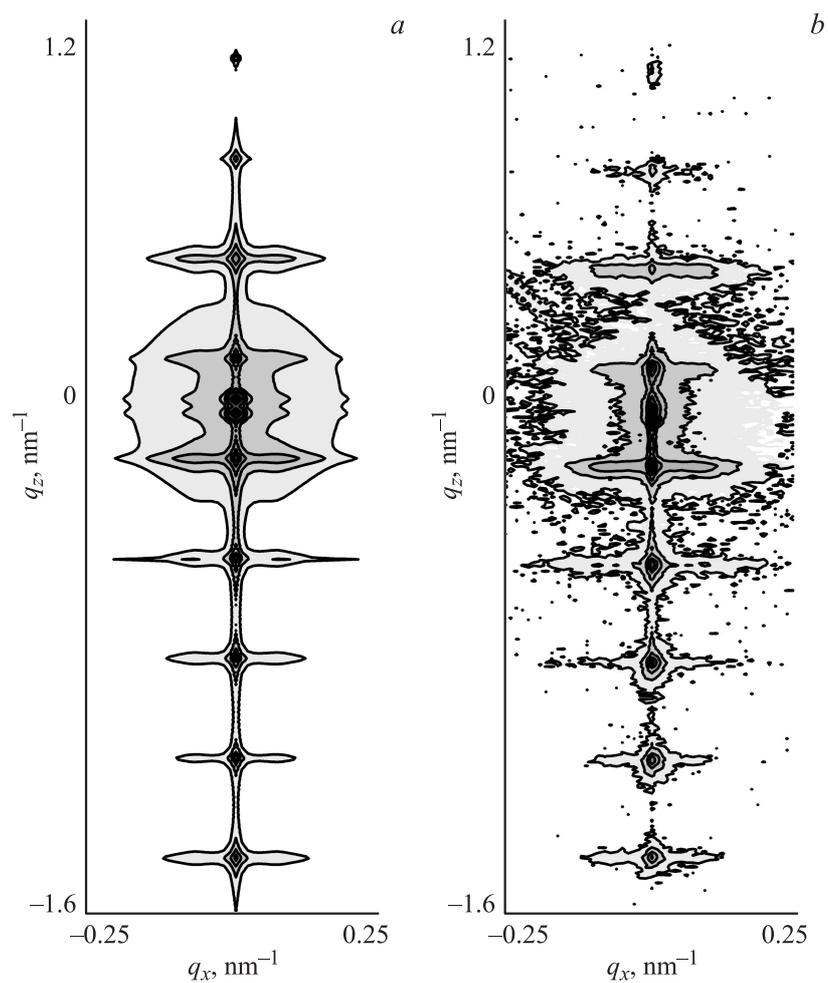
На рис. 2 показано влияние длины корреляции (толщины стекирования) на формирование углового распределения диффузного рассеяния. При малой длине корреляции  $\bar{l}_v = 2l_{SL}$  сателлиты диффузных максимумов в вертикальном направлении размыты (рис. 2, *a*), полуширина диффузных пиков равна  $\Delta q_z \approx 0.035$  nm<sup>-1</sup>. С увеличением длины корреляции в десять раз, т.е. для случая, когда КТ выстроены в вертикальные



**Рис. 1.** Расчетные карты распределения интенсивности диффузного рассеяния от двадцатипериодной сверхрешетки с КТ: *a* — отсутствие вертикальной корреляции,  $l_v < l_{SL}$ ; *b* — средняя корреляционная длина  $\bar{l}_v = 10l_{SL}$ , дисперсия стекирования  $\sigma_v = \bar{l}_v/4$ .



**Рис. 2.** Расчетные карты распределения интенсивности диффузного рассеяния от двадцатипериодной сверхрешетки с разной длиной корреляции КТ (дисперсия стекирования  $\sigma_v = \bar{l}_v/4$ ): *a* —  $\bar{l}_v = 2l_{SL}$ ; *b* —  $\bar{l}_v = 20l_{SL}$ .



**Рис. 3.** Расчетная (a) и экспериментальная (b) карты распределения интенсивности рассеяния от гетероструктуры GaAs(001)–Al GaAs–{InAs QDs–GaAs}<sub>x20 SL</sub>. Контуры равной интенсивности представлены в логарифмическом масштабе, отношение интенсивностей между соседними линиями равно 0.675.

колонки по всей толщине сверхрешетки, наблюдается заметное сужение диффузных максимумов, и для  $\bar{l}_v = 20l_{SL}$  получаем  $\Delta q_z \approx 0.0035 \text{ nm}^{-1}$  (рис. 2, *b*).

Описанная в данной работе модель формирования диффузного рассеяния от сверхрешетки с вертикально совмещенными КТ использована для количественного анализа дифракции рентгеновских лучей на полупроводниковой системе GaAs(001)–Al GaAs–{InAs QDs–GaAs}<sub>x20.SL</sub> (рис. 3). Численные расчеты показали, что наилучшее совпадение расчетных и экспериментальных данных получается при вертикальной длине корреляции  $\bar{l}_v = 7l_{SL}$ . Это означает, что исследуемая двадцатипериодная сверхрешетка InAs QDs–GaAs имеет в среднем семь периодов стекированных КТ.

Автор выражает благодарность Н.Н. Фалееву (Arizona State University, USA) за предоставление экспериментальных данных.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (проект № 13-02-00272-а), программы президиума РАН 12-П-1-1014 и программы фундаментальных исследований УрО РАН 12-У-1-1010.

## Список литературы

- [1] Wang Z.M. (Ed). Self-Assembled Quantum Dots. Berlin: Springer, 2008. 463 p.
- [2] Pietsch U., Holy V., Baumbach T. High Resolution X-ray Scattering — from Thin Films to Lateral Nanostructures. New York: Springer-Verlag, 2004. 408 p.
- [3] Cullis A.G., Hutchison J.L. (eds) / Proceedings of the 14th Conference. April 11–14, 2005. Oxford, UK/ Berlin: Springer, 2005. 538 p.
- [4] Пунегов В.И. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 15. С. 8–16. (*Punegov V.I. // Tech. Phys. Lett.* 2011. V. 37. P. 696–699).
- [5] Steward E.G. Fourier optics: An Introduction. Chichester: Ellis Horwood Ltd (John Wiley & Sons), 1983. 185 p.
- [6] Пунегов В.И., Сивков Д.В., Кладько В.П. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 8. С. 41–48. (*Punegov V.I., Sivkov D.V., Klad'ko V.P. // Tech. Phys. Lett.* 2011. V. 37. P. 364–367).