

01;05

Влияние формы и упругих полей деформаций квантовых точек на диффузное рассеяние рентгеновских лучей

© В.И. Пунегов, Д.В. Сивков

Коми научный центр УрО РАН, Сыктывкар
E-mail: vpunegov@dm.komisc.ru

Поступило в Редакцию 29 мая 2013 г.

Исследовано влияние формы и упругих полей деформаций скрытых квантовых точек (КТ) на угловое распределение диффузного рассеяния рентгеновских лучей. Расчеты упругих атомных смещений выполнены с использованием метода функции Грина. Проведено численное моделирование диффузного рассеяния от полупроводниковой матрицы с КТ в форме цилиндра, усеченного конуса и сфероида. Показано, что при малой объемной плотности наноструктур в кристалле угловые распределения диффузного рассеяния для КТ разной формы имеет существенные отличия. При большой плотности КТ, что характерно для сверхрешеток, эти отличия становятся слабыми.

Исследование различных неоднородностей наномасштабных размеров в кристаллической среде методом высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии представляет на сегодняшний день актуальную проблему [1]. В частности, такими неоднородностями могут служить самоорганизованные квантовые точки (КТ). Поскольку структуры с КТ имеют широкий спектр практического применения, например в приборах электроники, фотоники, оптоэлектроники и т. д. [2], неразрушающий контроль размеров, формы, пространственного расположения КТ в эпитаксиальных системах остается важнейшей задачей современных физических исследований. Среди характеристик наноструктурированных материалов особую роль играют упругие деформации, возникающие из-за несоответствия параметров решеток КТ и материала матрицы. Эти деформации приводят к существенным изменениям электронной зонной структуры материала. Кроме того, они играют важную роль в процессах пространственного упорядочения КТ в полупроводниковой структуре.

Исследованию распределений упругих деформаций внутри и вне самоорганизованных КТ в последние годы уделяется пристальное внимание (см. [3] и приведенную в обзоре литературу). Для вычисления этих деформаций применяются разные подходы, основанные на численных методах конечных элементов [4], молекулярной динамики [5], валентно-силового поля [6], а также с использованием формализма функций Грина [7] и аналогии между задачами электростатики и теории упругости [8].

Метод высокоразрешающей рентгеновской дифракции оказался весьма перспективным для анализа структурных характеристик эпитаксиальных систем с КТ [9,10]. Форма, размеры и упругие деформации вокруг КТ заметно влияют на угловое распределение диффузного рассеяния вблизи узла обратной решетки полупроводниковой матрицы. В рамках теоретического рассмотрения эта задача в общем случае не имеет аналитического решения и, как правило, реализуется трудоемкими численными расчетами на основе метода конечных элементов [11,12]. Лишь сферически симметричные неоднородности позволяют записать выражение для диффузного рассеяния в формульном виде для случая бесконечной или полубесконечной среды [13]. Для КТ в форме сфероида [14] получено приближенное решение с использованием метода разложения вектора упругих смещений по мультиполям [15].

Данная работа посвящена анализу диффузного рассеяния от эпитаксиальных слоев со скрытыми КТ разной формы. Решения для поля атомных смещений вокруг КТ произвольной формы получены с использованием метода Грина [7].

Рассмотрим диффузное рассеяние в кристаллическом слое со скрытыми КТ без учета их пространственной корреляции. Угловое распределение интенсивности рассеяния зависит от величины вектора \mathbf{q} , задающего отклонение вектора дифракции от узла обратной решетки. Выражение для интенсивности имеет простой вид

$$I_h^d(\mathbf{q}) = K_D \text{Re}[\tau(\mathbf{q})], \quad (1)$$

где

$$\tau(\mathbf{q}) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\rho g(\rho) \exp(i\mathbf{q}\rho) \quad (2)$$

— корреляционный объем, K_D — постоянный коэффициент [16]. Термин корреляционный объем введен в [17] по аналогии с корреляционной дли-

ной. Без учета полей деформаций вне КТ, собственная корреляционная функция $g(\boldsymbol{\rho})$ в соотношении (2) описывает форму КТ. В узле обратной решетки, когда $\mathbf{q} = \mathbf{0}$, корреляционный объем равен объему КТ V_{QD} : $\tau(0) = \int d\boldsymbol{\rho} g(\boldsymbol{\rho}) = V_{QD}$. Собственную корреляционную функцию КТ в кристаллической матрице можно представить в виде свертки [18]

$$g(\boldsymbol{\rho}) = (1/V_{QD}) \int D(\mathbf{r})D^*(\mathbf{r} + \boldsymbol{\rho})d\mathbf{r}, \quad (3)$$

где функция $D(\mathbf{r})$ зависит от поля упругих деформаций и описывает локальные нарушения кристаллической решетки [18]. Подставляя (3) в выражение для корреляционного объема (2), получаем

$$\tau(\mathbf{q}) = |D(\mathbf{q})|^2/V_{QD}. \quad (4)$$

Здесь $D(\mathbf{q})$ — Фурье-образ функции $D(\mathbf{r})$. Согласно (1) и (4), параметр $D(\mathbf{q})$ имеет смысл амплитуды диффузного рассеяния.

Вычисление упругих деформаций как внутри, так и вне КТ представляет собой достаточно сложную задачу [3–8]. Численный анализ диффузного рассеяния является еще более сложной проблемой, поскольку требует как вычисления упругих деформаций вокруг КТ, так и дальнейшего расчета диффузного рассеяния на искажениях кристаллической решетки, вызванных этими деформациями.

Следуя [7], рассмотрим модель среды с периодически распределенными КТ в трех направлениях. В этом случае тензор деформации массива КТ e_{rr} может быть представлен в виде трехмерного ряда Фурье

$$e_{rr}(\mathbf{r}) = \frac{1}{V_L} \sum_{n_1, n_2, n_3} \tilde{e}_{rr}^s(\boldsymbol{\xi}_n) \exp(i\boldsymbol{\xi}_n \mathbf{r}), \quad (5)$$

где $V_L = d_1 d_2 d_3$, d_1, d_2, d_3 — периоды трансляционного порядка КТ в соответствующих направлениях кристалла с кубической элементарной ячейкой и

$$\tilde{e}_{rr}^s(\boldsymbol{\xi}) = \varepsilon_0 \tilde{\chi}_{QD}(\boldsymbol{\xi}) \left\{ 1 - \frac{C_{11} + 2C_{12}(C_{44}\xi^2/\xi_r^2 + C_{an})^{-1}}{1 + (C_{12} + C_{44}) \sum_{p=1}^3 \frac{\xi_p^2}{C_{44}\xi^2 + C_{an}\xi_p^2}} \right\} \quad (6)$$

— Фурье образ компоненты тензора деформации отдельной КТ внутри кубического кристалла [7]. Здесь C_{11}, C_{12}, C_{44} — упругие константы; коэффициент $C_{an} = C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$ описывает анизотропную часть тензора деформации; $\varepsilon_0 = (a_M - a_{QD})/a_M$ — деформация несоответствия, a_M, a_{QD} — постоянные решетки основной матрицы и КТ. В (6) присутствует Фурье-образ характеристической функции $\chi_{QD}(\mathbf{r})$ квантовой точки [7]

$$\tilde{\chi}_{QD}(\xi) = \int_{V_{QD}} \chi_{QD}(\mathbf{r}) \exp(i\xi\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (7)$$

где $\chi_{QD}(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1, & \mathbf{r} \in V_{QD} \\ 0, & \mathbf{r} \notin V_{QD} \end{cases}$ и интегрирование проводится по всему объему КТ. Отметим, что характеристическая функция КТ $\chi_{QD}(\mathbf{r})$ является аналогом функции формы в теории рентгеновской дифракции, а ее Фурье-образ $\tilde{\chi}_{QD}(\xi)$ по своей структуре совпадает с корреляционным объемом при отсутствии упругих полей деформаций вокруг КТ.

Проекция поля упругих смещений на выделенное направление является результатом интегрирования тензора деформаций

$$U_r(\mathbf{r}) = \int_{\notin V_{QD}} e_{rr}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' + U_{r0}, \quad (8)$$

где U_{r0} — начальное смещение на поверхностной границе КТ и основной матрицы. Здесь уместно подчеркнуть, что в рамках рассматриваемой модели мы не учитываем реально существующую взаимную диффузию компонент матрицы и КТ. Подставляя (5) в (8), окончательно получаем

$$U_r(\mathbf{r}) = \frac{1}{V_L} \sum_{n_1, n_2, n_3} \tilde{e}_{rr}^s(\xi_n) \frac{\exp(i\xi_n \mathbf{r})}{(\xi_n)_r} + U_{r0}, \quad (9)$$

где $\tilde{e}_{rr}^s(\xi_n)$ задается соотношением (6). Амплитуду диффузного рассеяния в (4) представим в виде суммы двух слагаемых

$$D(\mathbf{q}) = D_{SW}(\mathbf{q}) + D_D(\mathbf{q}). \quad (10)$$

Здесь первое слагаемое $D_{SW}(\mathbf{q})$ — амплитуда диффузного рассеяния от кристаллической матрицы без учета упругих деформаций вне КТ

(рассеяние Стокса–Вильсона). Второе слагаемое $D_D(\mathbf{q})$ учитывает влияние полей атомных смещений вблизи КТ. Этот член суммы (10) может быть представлен как

$$D_D(\mathbf{q}) = \int_{\notin V_{QD}}^{\infty} [1 - \exp(i\mathbf{h}\mathbf{U})] \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (11)$$

Численный расчет диффузного рассеяния от кристалла со скрытыми КТ с учетом упругих атомных смещений (9) удобно проводить в обобщенной сферической системе координат, в итоге получаем следующее выражение для второго слагаемого суммы (10):

$$D_D(\mathbf{q}) = -2\pi \frac{\mathbf{h}\mathbf{q}}{q} \int_0^{\pi} d\theta \sin \theta \cos \theta \int_{r_0(\theta)}^{\infty} dr r^2 U_r(r, \theta) \exp(iqr \cos \theta), \quad (12)$$

где $r_0(\theta)$ — расстояние от центра КТ до ее границы в вертикальной плоскости дифракции.

В рамках вышеизложенного подхода проведено численное моделирование распределения интенсивности диффузного рассеяния от периодического массива скрытых InAs КТ разной формы в кристаллической матрице GaAs. Выбор КТ цилиндрической формы обусловлен тем, что это была первая модель, которая использовалась для анализа диффузного рассеяния от сверхрешетки Si/Ge с КТ Ge в рамках концепции точечных дефектов в изотропном полубесконечном континууме с учетом упругих релаксаций на свободной поверхности [19]. Рассмотрение конусообразных и сфероидальных КТ продиктовано тем, что эти модели хорошо описывают часто встречающиеся КТ в форме пирамиды [3] и эллипсоида [14] соответственно. Более того, модель КТ сфероидальной формы хорошо аппроксимирует также часто встречающиеся КТ в форме линзы [20]. Еще одной причиной рассмотрения указанных моделей КТ является наличие аналитического решения для рассеяния Стокса–Вильсона.

Расчеты диффузного рассеяния выполнены для симметричного отражения (004) $\text{CuK}\alpha$ -излучения. На всех рисунках с изображениями карт распределения диффузного рассеяния отношение интенсивностей между соседними контурами дается в логарифмическом масштабе и равно 0.316. Высота для всех моделей КТ составляла $h = 5 \text{ nm}$,

латеральный максимальный размер соответственно $2R = 20$ nm. Для модели КТ в форме усеченного конуса угол α между высотой и образующей составляет 45 угловых градусов. Карты распределения упругих смещений представлены в линейном масштабе, отношение значений между соседними линиями $0.6 \cdot 10^{-3}$ nm. Поскольку имеет место большое несоответствие параметров решетки InAs и GaAs, распределение деформаций внутри КТ, а также весьма слабое диффузное рассеяние от ее внутренней части в расчетах не учитывались.

Аналитические формулы для рассеяния Стокса–Вильсона для КТ цилиндрической, конусообразной и сфероидальной формы соответственно имеют вид

$$D_{SW}^{cyl}(\mathbf{q}) = 2\pi \frac{Rh}{q_0} J_1(q_0 R) \text{sinc}(q_z h/2),$$

$$D_{SW}^{con}(\mathbf{q}) = 2\pi \int_0^h dz \frac{R_z^{con}}{q_0} J_1(q_0 R_z^{con}) \exp(iq_z z),$$

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

где $J_1(q_0 R)$ — функция Бесселя первого порядка, $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$, $R_z^{con} = R + z \tan \alpha$ и $R_z^{ell} = R \sqrt{1 - z^2/(h/2)^2}$ — изменяющиеся с координатой z радиусы КТ конусообразной и сфероидальной формы, $q_0 = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$.

На рис. 1 представлены карты распределения упругих смещений и диффузного рассеяния для случая малой объемной плотности КТ в кристаллической матрице. Среднее расстояние между соседними КТ составляет 500 nm. В этом случае поля атомных смещений от КТ распространяются на достаточно большие расстояния. Такое пространственное изменение деформаций сказывается на угловом распределении интенсивности диффузного рассеяния. Атомные смещения вблизи сердцевины КТ влияют на формирование удаленного от узла обратной решетки распределения интенсивности диффузного рассеяния. Так, например, контуры равной интенсивности диффузного рассеяния от кристалла с конусообразными КТ имеют характерный наклон, связанный с величиной угла α между высотой и образующей конуса

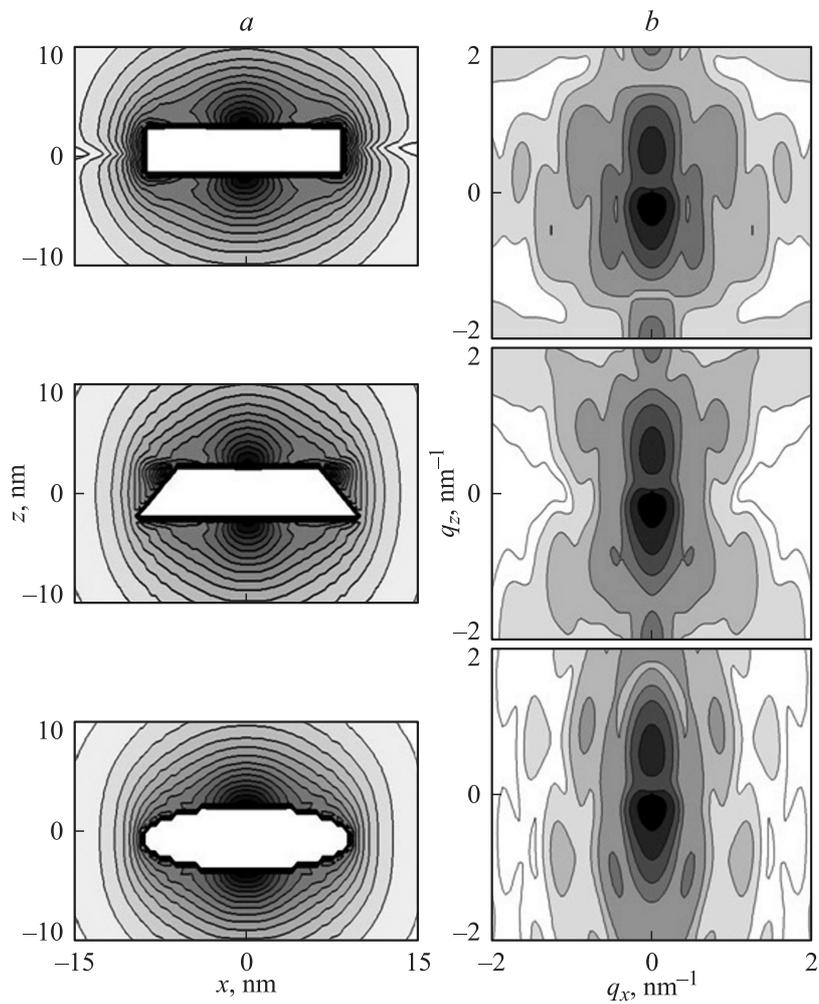


Рис. 1. Двумерные карты распределения упругих смещений (*a*) и диффузного рассеяния (*b*) от кристаллической матрицы GaAs с КТ InAs в форме цилиндра, усеченного конуса и эллипсоида (сверху вниз). Расстояние между соседними КТ в вертикальном и латеральном направлении 500 nm.

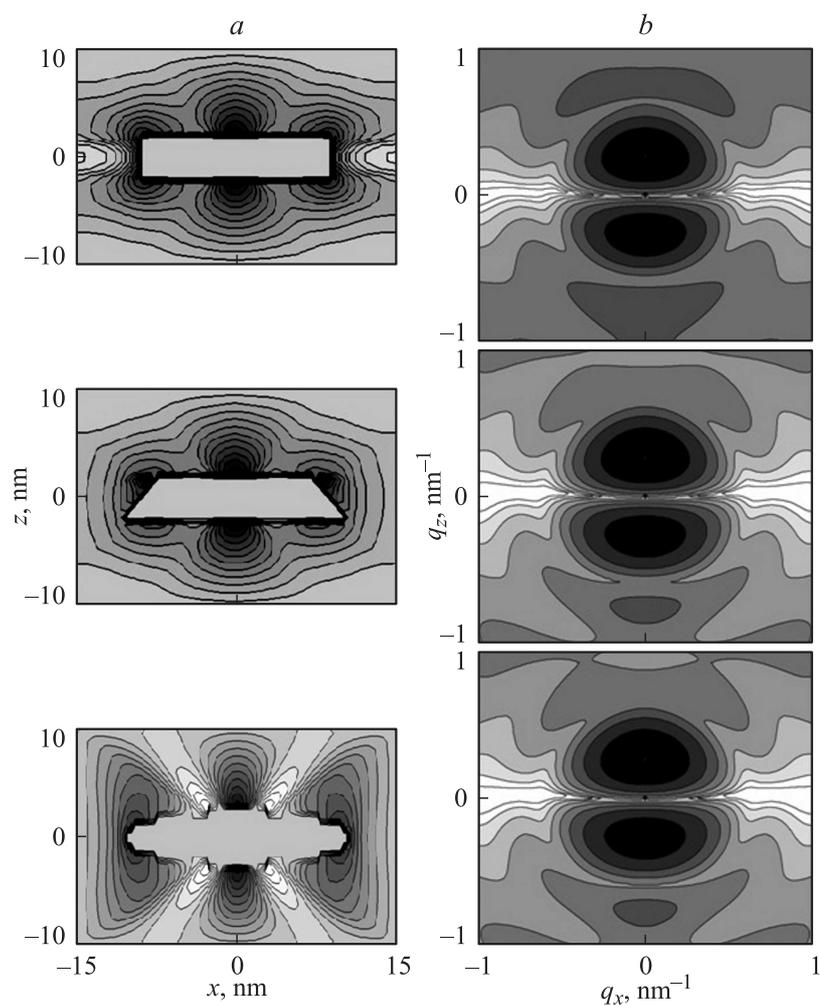


Рис. 2. Двумерные карты распределения упругих смещений (*a*) и диффузного рассеяния (*b*) от сверхрешетки InAs/GaAs с некоррелированными КТ InAs в форме цилиндра, усеченного конуса и эллипсоида (сверху вниз). Расстояние между соседними КТ в вертикальном направлении 20 nm, в латеральном направлении 30 nm.

(рис. 1, *b*). В частности, такое поведение интенсивности вблизи узла обратной решетки возникает и в случае дифракции на кристаллах с трапецеидальным сечением [21].

На рис. 2 показаны карты распределения упругих смещений и диффузного рассеяния для КТ большой объемной плотности. Вертикальное расстояние между стекированными КТ составляет 20 нм. Расстояние между соседними КТ в латеральном направлении 30 нм. Такое пространственное расположение КТ характерно для наноструктурированных сверхрешеток. В данном случае поля упругих атомных смещений быстро затухают с расстоянием. Следовательно, форма КТ слабо влияет на угловое распределение диффузного рассеяния (рис. 2, *b*). Поэтому основным фактором при анализе диффузного рассеяния от сверхрешеток с КТ является не сама форма нановключений, а отношение высоты КТ к ее латеральному размеру [22]. Все же различия в угловом распределении диффузного рассеяния от сверхрешетки с КТ разной формы существуют (рис. 2, *b*). Однако эти различия практически исчезают при учете флуктуации размеров КТ и их пространственной корреляции. Таким образом, в методе высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии при анализе диффузного рассеяния от сверхрешеток с КТ достаточно использовать наиболее простую для численных расчетов модель квантовых точек. Наиболее предпочтительной является модель эллипсоидальных КТ.

Проведенные исследования показали, что разработанный метод численного расчета углового распределения диффузного рассеяния может быть использован для неразрушающего количественного рентгенодифракционного анализа полупроводниковых систем с КТ разной формы.

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] *Pietsch U., Holy V., Baumbach T.* High Resolution X-ray Scattering — from Thin Films to Lateral Nanostructures. New York: Springer-Verlag, 2004. 408 p.
- [2] *Wang Z.M.* (ed.). Self-Assembled Quantum Dots. Berlin: Springer, 2008. 463 p.
- [3] *Maranganti R., Sharma P.* // Handbook of Theoretical and Computational Nanotechnology. N. Y.: Amer. Sci. Publishers, 2005. V. 1. P. 1–44.

- [4] Benabbas T, Androussi Y, Lefebvre A // J. Appl. Phys. 1999. V. 86. N 4. P. 1945–1950.
- [5] Daruka I, Barabasi A-L, Zhou S.J, Germann T.C, Lomdahl P.S, Bishop A.R // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. P. R2150–R2153.
- [6] Yang M, S. Xu J, Wang J // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 92. P. 083 112 (1–3).
- [7] Andreev A.D., Downes J.R., Faux D.A., O'Reilly E.P // J. Appl. Phys. 1999. V. 86. N 1. P. 297–305.
- [8] Nenashv A.V., Dvurechenskii A.V. // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 064 322 (1–8).
- [9] Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92. С. 483–489; Punegov V.I., Faleev N.N. // JETP Letters. 2010. V. 92. P. 437–443.
- [10] Faleev N.N., Honsberg C., Punegov V.I. // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. P. 163 506 (1–9).
- [11] Hrauda N, Zhang J.J, Stoffel M, Stangl J, Bauer G, Rehman-Khan A, Holy V, Schmidt O.G., Jovanovic V, Nanver L.K. // Eur. Phys. J. 2009. V. 167. P. 41–46.
- [12] Schroth P, Slobodskyy T, Grigoriev D, Minkevich A, Riotte M, Lazarev S, Fohntung E, Hu D.Z., Schaadt D.M., Baumbach T // Materials Science and Engineering B. 2012. V. 177. P. 721–724.
- [13] Krivoglaz M.A. X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals. Berlin: Springer, 1996. 467 p.
- [14] Blokland J.H., Bozkurt M., Ulloa J.M., Reuter D., Wieck A.D., Koenraad P.M., Christianen P.C.M., Maan J.C. // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 94. P. 093 107 (1–3).
- [15] Пунегов В.И., Сивков Д.В., Кладько В.П. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 8. С. 41–47; Punegov V.I., Sivkov D.V., Kladko V.P. // Tech. Phys. Lett. 2011. V. 37. P. 41–47.
- [16] Пунегов В.И. // Кристаллография. 2009. Т. 54. № 3. С. 423–431; Punegov V.I. // Crystallography Reports. 2009. V. 54. N 3. P. 423–431.
- [17] Nesterets Ya.I., Punegov V.I. // Acta Cryst. A. 2000. V. 56. P. 540–548.
- [18] Бушуев В.А. Угловое распределение интенсивностей динамической дифракции рентгеновских лучей в кристаллах с микродефектами в геометриях Лауэ и Брэгга. М.: ВИНТИ, 1988. № 486–В88. 51 с.
- [19] Darhuber A.A., Schittenhelm P, Holy V, Stangl J, Bauer G., Abstreiter G. // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. P. 15 652–15 663.
- [20] Maia A.D.B., da Silva E.C.F., Quivy A.A., Bindilatti V., de Aquino V. M., Dias I.F.L. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2012. V. 45 . P. 225 104 (1–5).
- [21] Пунегов В.И., Колосов С.И., Павлов К.М. // Письма в ЖТФ. 2006. Т. 32. В. 18. С. 65–72; Punegov V.I., Kolosov S.I., Pavlov K.M. // Tech. Phys. Lett. 2006. V. 32. P. 809–812.
- [22] Hesse A, Stangl J, Holy V, Roch T, Bauer G, Schmidt O.G., Denker U, Struth B. // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. P. 085 321 (1–8).