

# Рентгенодифракционные исследования многослойных гетероструктур InAs–GaAs с квантовыми точками InAs

© Н.Н. Фалеев<sup>¶</sup>, К.М. Павлов\*, В.И. Пунегов\*, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, С.С. Михрин, В.М. Устинов, М. Tabuchi<sup>†</sup>, Y. Takeda<sup>†</sup>

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

\*Сыктывкарский государственный университет,  
167001 Сыктывкар, Россия

<sup>†</sup>Department of Materials Science & Engineering, Nagoya University,  
464–8603, Nagoya, Japan

(Получена 23 марта 1999 г. Принята к печати 25 марта 1999 г.)

Многослойные структуры InAs–GaAs с массивом вертикально совмещенных квантовых точек InAs в матрице GaAs, выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии, были исследованы методами Crystal Truncation Rods и высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии. Показано, что формирование в структурах рассеивающих объектов типа вертикально совмещенных квантовых точек существенно влияет на механизм дифракционного рассеяния рентгеновского излучения, меняет пространственное распределение дифрагируемого излучения. Это объясняется появлением в периодических структурах дополнительного дальнего порядка в латеральном расположении рассеивающих объектов, изгибом кристаллографических плоскостей в периодической части структуры и квазипериодичностью деформационного рельефа, обусловленного вертикально связанными квантовыми точками. Наблюдаемое пространственное распределение дифрагируемой интенсивности качественно объясняется в рамках новой модели, в которой рассеивающие слои с квантовыми точками состоят из бездефектных, когерентно сопряженных кластеров InAs и GaAs.

## Введение

Эпитаксиальные гетероструктуры с массивами вертикально совмещенных квантовых точек [1–8] являются интересными объектами исследований с точки зрения изучения возможностей их применения в различных опто- и микроэлектронных приборах, например в лазерных диодах. В связи с этим актуальны: исследование структурных свойств таких структур, изучение механизмов эпитаксиального роста и релаксации упругих напряжений, выявление особенностей дифракционного взаимодействия рентгеновского излучения с рассеивающими объектами подобного типа. Известно, что формирование на ростовой поверхности массива квантовых точек (КТ) изменяет механизм эпитаксиального роста промежуточных слоев GaAs, влияет на характер распределения упругих напряжений в слоях и их планарность. В процессе роста многослойных структур формируется упорядоченная структура КТ как в направлении эпитаксиального роста ( $q_z$ ) — массив вертикально связанных точек, так и в плоскости гетерограницы (латеральных направлениях  $q_x, q_y$ ). При этом параметры КТ и характер их пространственного упорядочения определяются условиями эпитаксиального роста.

Известно, что формирование в структурах квантовых точек существенно изменяет их физические параметры. В частности, изменение пространственного распределения деформации в эпитаксиальных слоях, обусловленное наличием КТ, должно заметно влиять на условия дифракции рентгеновского излучения, менять характер про-

странственного распределения интенсивности. Результаты рентгенодифракционных исследований помогают установить закономерности формирования КТ, определить особенности релаксации упругих напряжений в структурах данного типа. Все это важно для понимания физических характеристик квантово-размерных объектов пониженной размерности.

## Экспериментальные методы

Исследованные образцы были выращены на точно ориентированных подложках  $n^+$ -GaAs (001) методом молекулярно-пучковой эпитаксии в установке Riber 32P с твердотельным источником мышьяка. Для уменьшения сегрегации и переиспарения In температура подложки при формировании многослойной структуры с КТ и осаждении слоя GaAs толщиной 100 Å, закрывающего массив квантовых точек, была понижена до 480°C. Температура роста остальной части структуры составляла 620°C. Рост проводился в As-стабилизированных условиях. Массив вертикально совмещенных точек формировался на буферных слоях GaAs толщиной примерно 1.2 мкм в результате трех-, шести- и десятикратного осаждения слоев КТ, разделенных слоями GaAs толщиной 50 Å. Эффективная толщина слоев InAs составляла 5.5–6.0 Å. Сверху периодические структуры InAs–GaAs зарастивались слоем GaAs толщиной порядка 0.4–0.5 мкм. По данным просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), сформированные таким образом КТ InAs близки по форме и размерам и слабо упорядочены в латеральных направлениях. Собственно периодические структуры, содержащие КТ InAs, представляют собой массивы верти-

<sup>¶</sup> E-mail: Faleev@pop.ioffe.rssi.ru  
Fax: (812)–247–1017

кально совмещенных КТ в матрице GaAs [9]. Однако вследствие локальности методов ПЭМ наличие дальнего порядка в латеральном расположении КТ InAs требует подтверждения этих данных методами рентгеновской дифрактометрии, обладающими высокой чувствительностью к структурному упорядочению.

Выбор в качестве объектов исследования структур с дополнительным пространственным упорядочением слоев в направлении эпитаксиального роста (сверхрешеток) объясняется тем, что в рентгенодифракционных экспериментах на совершенных периодических структурах, так же как и на структурах интерференционного типа, можно достичь пространственного разрешения, сопоставимого с разрешением просвечивающей электронной микроскопии [10,11], и получить существенную информацию о структуре слоев и интерфейсов.

Измерения по методу Crystal Truncation Rods (CTR) проводились на двухкристальном дифрактометре станции BL6A фотонной фабрики в Цукуба (Tsukuba, Japan) с использованием синхротронного излучения от накопительного кольца с энергией позитронов 2.5 ГэВ (ток в кольце — 380–250 мА). Монохроматизация и коллимация синхротронного излучения осуществлялась с помощью изогнутого кварцевого зеркала и кристалла Si (111) треугольной формы, изогнутого для формирования квазипараллельного пучка монохроматизированного излучения. Для регистрации двумерных дифракционных картин использовались специальные светочувствительные пластины (Imaging Plate — IP), информация с которых считывалась оптическим путем [12].

CTR-картины снимались вблизи отражения (004) GaAs на длине волны синхротронного излучения 1.6 Å. После считывания информации с IP и удаления некогерентного фона дифракционные кривые восстанавливались из полных двумерных картин как в направлении вектора дифракции  $q_z$  (аналоги рентгенодифракционных кривых  $\omega-2\theta$ ), так и в перпендикулярном направлении  $q_x$  (аналоги  $\omega$ -кривых). В дальнейшем эти кривые использовались для получения численных данных о структурах.

Высокоразрешающие рентгенодифракционные исследования проводились на высокоярком двухкристальном  $\theta-\theta$ -дифрактометре фирмы Rigaku (Япония) с двукратным Ge (001)-монохроматором прорезного типа, излучение  $\text{CuK}\alpha_1$ . Для записи кривых дифракционного отражения (КДО) и распределения интенсивности в обратном пространстве (Reciprocal Space Mapping — RSM) использовались методики  $\omega-2\theta$ - и  $\omega$ -сканирования. Для разделения когерентной и диффузной компонент дифрагируемого излучения использовалась узкая приемная щель перед детектором.

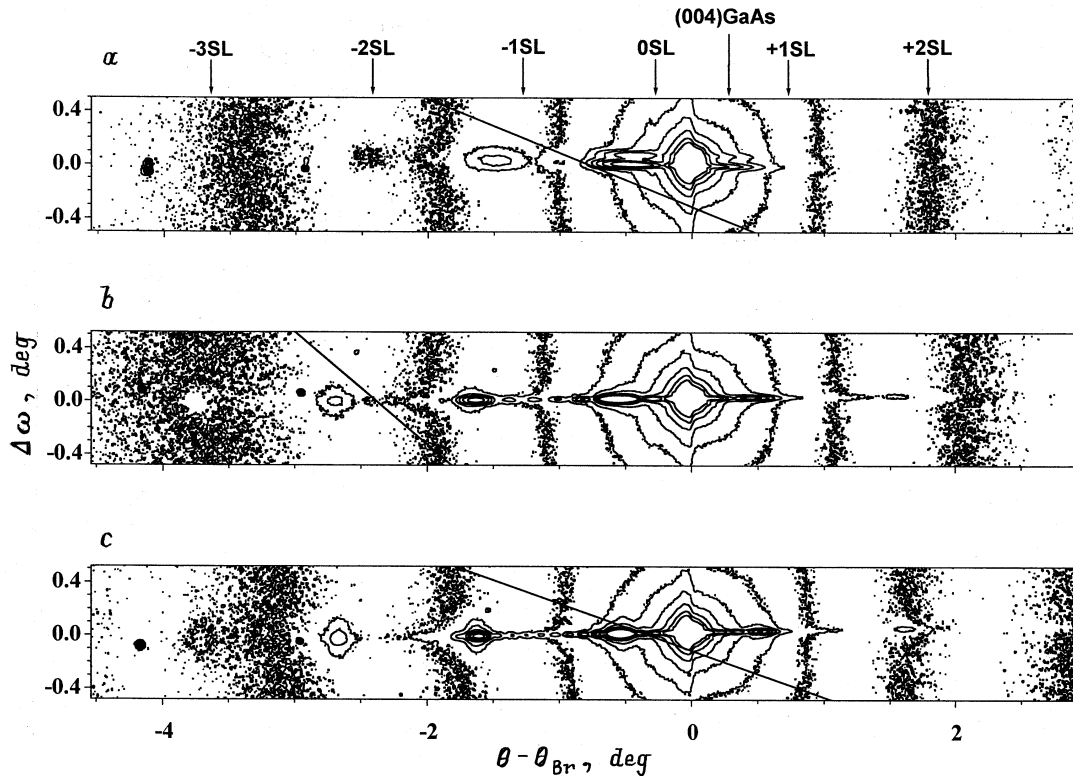
## Результаты эксперимента

Предварительно для точной оценки кристаллического структурного совершенства образцы исследовались вблизи отражения (004) GaAs на двухкристальном дифрактометре TRC-1 с высоким угловым разрешени-

ем (расходимость излучения после асимметричного Ge (001)-монохроматора составляла 1.0–1.2"). Особенностью структур исследуемого типа является то, что промежуточные слои, содержащие КТ InAs, служат интерференционными прослойками для излучения, дифрагируемого верхним слоем GaAs. Вследствие значительного рассогласования средних параметров решетки в слоях с КТ верхний слой GaAs пространственно смещается относительно подложки и буферного слоя GaAs. Последний в свою очередь оказывается пространственно смещен относительно подложки из-за наличия на его нижнем интерфейсе слоя GaAs, легированного кремнием. В кристаллически совершенных гетероструктурах наличие таких прослоек приводит к появлению на КДО протяженных интерференционных картин, по форме и параметрам которых можно определить кристаллическое совершенство буферного и верхнего слоев GaAs, а по угловой протяженности толщинных осцилляций оценить планарность эпитаксиальных слоев [13], формирующих интерференционную картину. Результаты измерений показали, что исследуемые структуры обладают высоким кристаллическим совершенством, а плотность ростовых дефектов (преимущественно точечного типа) мала. Протяженные структурные дефекты типа дислокационных петель и (или) дислокаций несоответствия в исследованных структурах практически полностью отсутствуют.

Известно, что основная часть кристаллических дефектов в эпитаксиальных структурах образуется в процессе эпитаксиального роста [14–16]. Мигрируя по структуре, дефекты, образовавшиеся на ростовой поверхности, оказывают существенное влияние на кристаллическое совершенство как вышележащих, так и нижележащих слоев, включая подложку [14,15]. Поэтому данные о структурном совершенстве толстых прилегающих слоев позволяют оценить степень совершенства промежуточных слоев, содержащих квантовые точки, и корректно интерпретировать результаты дальнейших дифракционных исследований. В случае высокого кристаллического совершенства гетероструктур, определяемого структурным совершенством каждого из слоев в отдельности, это дает возможность напрямую сопоставить особенности рентгенодифракционных данных с истинной структурой исследуемых объектов, например квантовых точек. В случае же эпитаксиальных структур с низким кристаллическим совершенством образовавшиеся структурные дефекты оказывают преимущественное влияние на рассеяние рентгеновского излучения, существенно меняя характер дифракционных картин.

Анализ CTR дифракционных картин (рис. 1) показывает, что с увеличением общего числа пар слоев (InAs+КТ)-GaAs изменяется характер пространственного распределения интенсивности как вдоль направления  $q_z$ , так и в направлении  $q_x$ , ( $q_y$ ). Заметные изменения вдоль направления  $q_z$  — уменьшение линейной протяженности сверхструктурных пятен, появление дополнительных толщинных осцилляций, все это — проявления динамического эффекта, обусловленного увеличением



**Рис. 1.** Полученные методом Crystal Truncation Rods картины пространственного распределения интенсивности излучения вблизи отражения (004) GaAs для структур с парами слоев InAs–GaAs в количестве: 3 (a), 6 (b) и 10 (c). Длина волны синхротронного излучения 1.6 Å.

когерентно-рассеивающего объема. Но одновременно меняется форма сверхструктурных пиков и в перпендикулярном (латеральном) направлении. Сужаясь в направлении  $q_z$ , дальние сверхструктурные пятна заметно вытягиваются в направлении  $q_x$ , около них появляются тяжи, длина которых растет при переходе от пика  $-1\text{SL}$  к пику  $-3\text{SL}$ . Форма и параметры CTR- $\omega$ -кривых для пиков  $-1\text{SL}$  и  $-2\text{SL}$  показали, что уширение пятен в направлении  $q_x$  существенно превышает инструментальную погрешность метода, обусловленную конечным размером падающего пучка. Поэтому можно предположить, что наблюдаемое в экспериментах удлинение дифракционных пятен в боковом направлении связано с появлением в периодической части структур некоторых особенностей, обусловленных прежде всего формированием КТ InAs.

Численный анализ  $\omega-2\theta$ -CTR-кривых показал, что толщины квантово-размерных слоев в многослойных структурах близки к заданным (табл. 1). Планарность гетерограниц InAs/GaAs периодической части структур, оцениваемая по полной протяженности дифракционных картин, составила 3–4 монослоя. При этом различия между CTR и рентгенодифракционными данными не превысили 1.5 Å, несмотря на существенно большую ( $> 10^4$  раз) интенсивность синхротронного излучения.

Сопоставление с результатами исследований периодических структур InAs–GaAs других типов [17,18] показывает, что такое размытие гетерограниц InAs/GaAs является характерным для поверхности GaAs (001) и

определяется морфологией ростовой поверхности [19]. Это позволяет утверждать, что в эпитаксиальных структурах с низкой плотностью ростовых дефектов ( $\leq 10^4-10^5 \text{ см}^{-2}$ ) именно размытие или непланарность гетерограниц, обусловленное морфологией ростовой поверхности, становится основным фактором, уменьшающим протяженность информативной части когерентных КДО и ограничивающим пространственное разрешение дифракционных методов.

**Таблица 1.** Параметры исследованных структур, полученные по методу Crystal Truncation Rods

Образец	$n$	$t_{\text{SL}}$ , Å	$\Delta t_{\text{if}}$ , Å	$\Delta a_{\text{SL}}$ , $10^{-2}$ Å	$x_{\text{InAs}}$ , %	$t_{\text{InAs}}$ , Å
1	3	54.6	9.6	6.44	7.63	4.15
2	6	52.7	9.2	7.69	9.1	4.80
3	10	52.0	9.0	7.57	9.00	4.65

*Примечание.*  $n$  — число пар слоев InAs–GaAs;  $t_{\text{SL}}$  — период сверхструктуры InAs(QDs)–GaAs;  $\Delta t_{\text{if}}$  — величина размытия интерфейса в сверхструктуре;  $\Delta a_{\text{SL}}$  — величина рассогласования параметров решетки в сверхструктуре InAs(QDs)–GaAs, определяемая методами рентгеновской дифрактометрии по положению на дифракционной кривой пика 0SL, соответствующего среднему составу (параметру рассогласования) в сверхструктуре;  $x_{\text{InAs}}$  — концентрация InAs в сверхструктуре (оценивается по величине параметра рассогласования и периоду сверхструктуры);  $t_{\text{InAs}}$  — толщина InAs в сверхструктуре (в пересчете на чистый InAs).

**Таблица 2.** Параметры структур, полученные из данных высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии и методом численного моделирования экспериментальных кривых дифракционного отражения

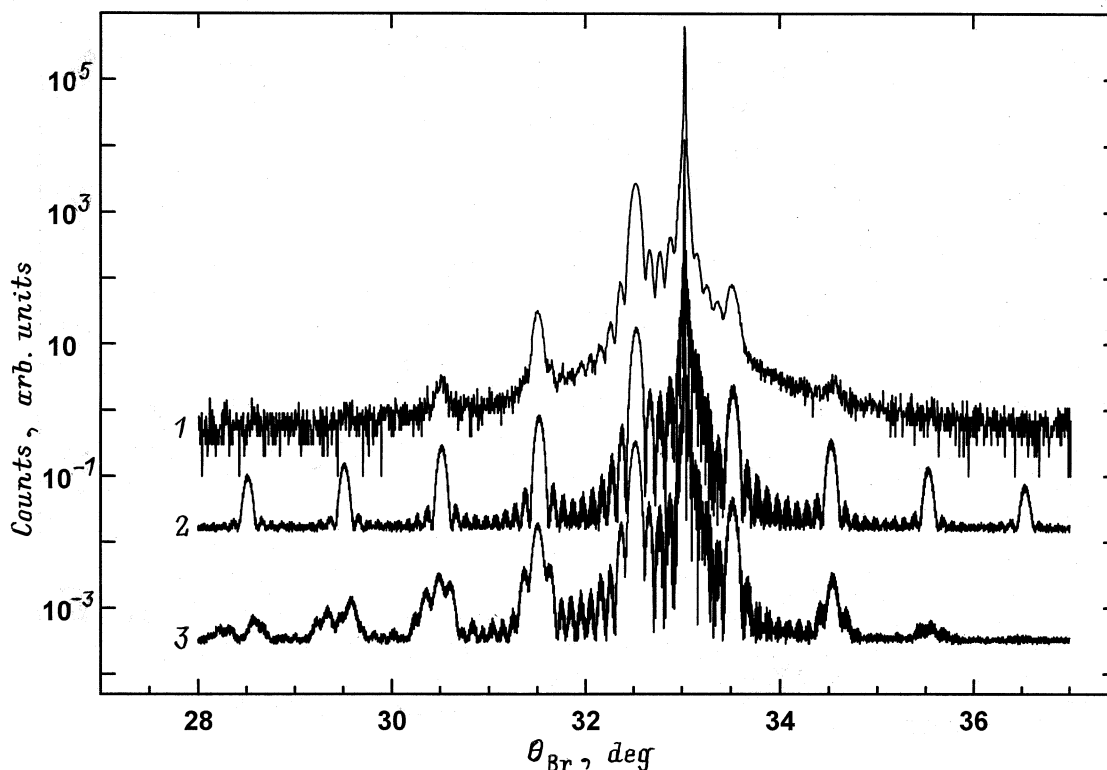
Образец	$t_{\text{capL}}$ , nm	$t_{\text{SL}}$ , Å	$\Delta t_{\text{if}}$ , Å	$\Delta a_{\text{SL}}$ , $10^{-2}$ Å	$x_{\text{InAs}}$ , %	$t_{\text{InAs}}$ , Å	Расчетные значения		
							$t_{\text{SL}}^{\text{calc}}$ , Å	$x_{\text{InAs}}^{\text{calc}}$ , %	$t_{\text{InAs}}^{\text{calc}}$ , Å
1	$505 \pm 24$	54.2	11	6.58	7.8	4.22	55	9.8	5.40
2	$410 \pm 28$	52.3	10.8	7.60	9.0	4.70	53	9.5	5.04
3	$450 \pm 23$	52.4	10.5	7.66	9.05	4.75	52	9.6	5.00

Примечание.  $t_{\text{capL}}$  — толщина верхнего слоя GaAs в структуре.

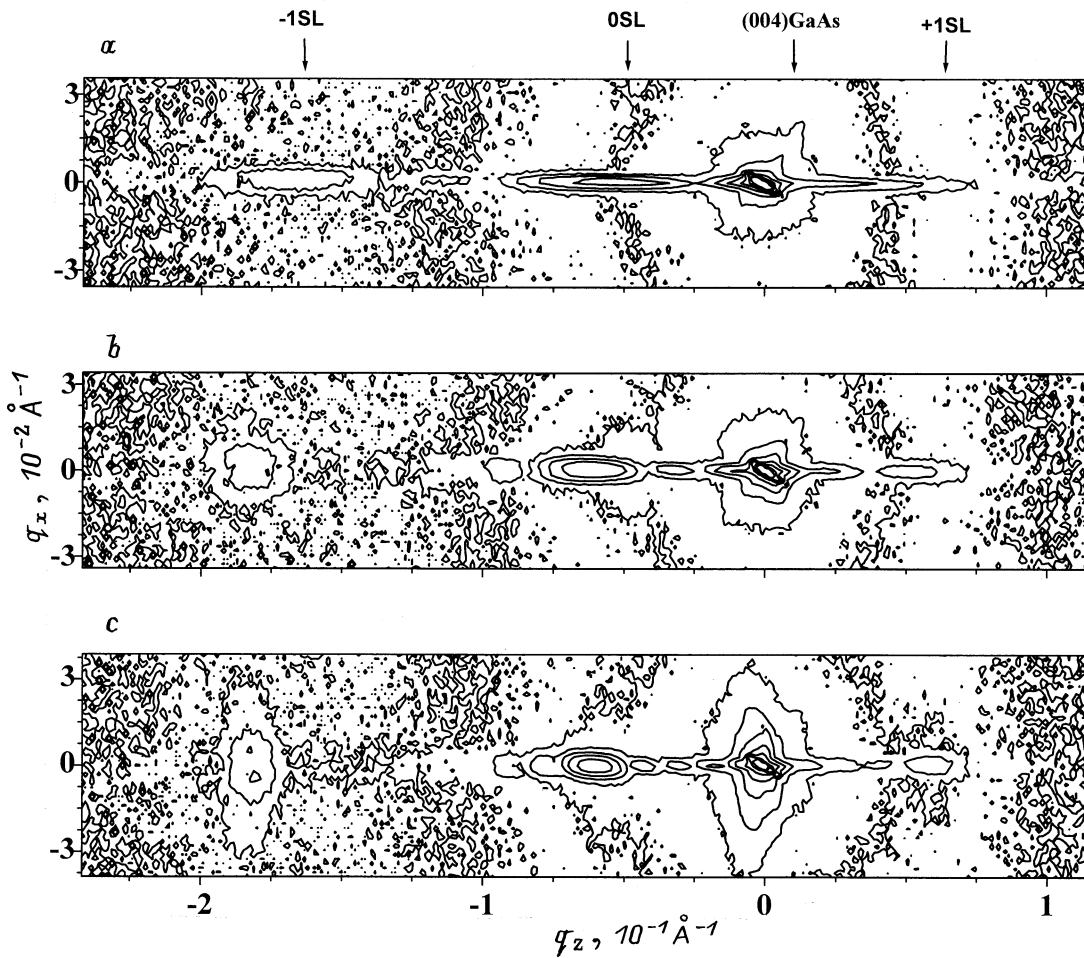
Данные высокоразрешающих рентгенодифракционных измерений (табл. 2) подтвердили результаты, полученные методом СТР. Сравнение показывает, что различия в параметрах структур незначительны и укладываются в погрешность измерений. Для уточнения геометрических параметров структур применялось численное моделирование когерентных кривых дифракционного отражения. Для расчетов использовалась обычная динамическая теория дифракции на основе уравнений Такаги [20]. Квантовые точки моделировались в виде слоя InGaAs переменного состава со смачивающим слоем InAs на гетерогранице. При этом в рамках динамического приближения без учета реального размытия границ InAs/GaAs и особенностей внутреннего строения слоев, содержащих квантовые точки, удалось получить хорошее совпадение экспериментальных (рис. 2, кривая 1) и расчетных кривых только в огра-

ниченном угловом диапазоне — вблизи центрального (0SL) и ближайших ( $\pm 1SL$ ) сверхструктурных пиков (рис. 2, кривая 2). Учет размытия границ InAs/GaAs несколько изменил форму дальних сверхструктурных пиков, однако, как и ожидалось, не привел к принципиальным изменениям картины в целом (рис. 2, кривая 3). Результаты проведенных расчетов так же приведены в табл. 2. Оказалось, что расчетные значения периодов сверхструктур хорошо совпадают с экспериментальными, тогда как толщины слоев InAs, рассчитанные с учетом закона Вегарда, ближе к технологическим параметрам. Это можно объяснить динамическим эффектом рассеяния на тонких слоях, показанным для однослойных структур в работе [21].

Результаты рентгенодифракционного исследования пространственного распределения дифрагируемой ин-



**Рис. 2.** Экспериментальная (1) и расчетные (2 и 3) когерентные дифракционные кривые  $\theta-2\theta$  для структуры, содержащей 10 пар слоев InAs–GaAs. Отражение (004) GaAs, излучение —  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ .

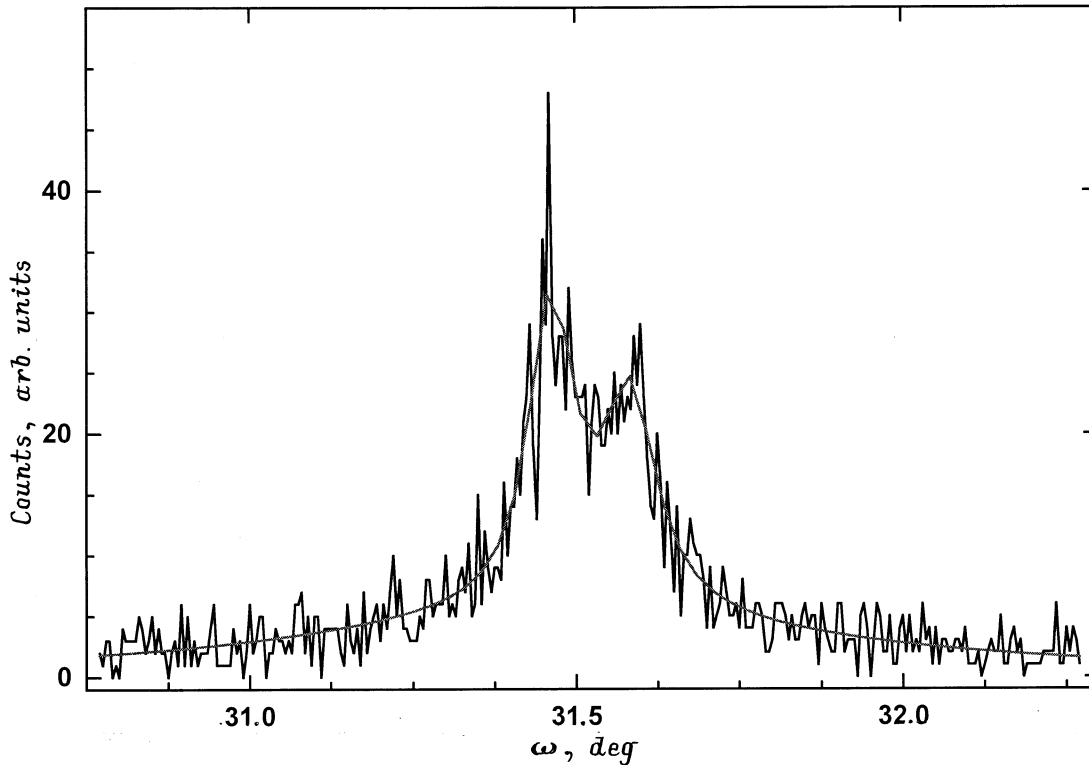


**Рис. 3.** Рентгенодифракционные картины распределения дифрагируемой интенсивности в обратном пространстве вблизи отражения (004) GaAs для структур с парами слоев InAs–GaAs в количестве: 3 (а), 6 (б) и 10 (с). Излучение —  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ .

тенсивности (RSM), а также форма и параметры  $\omega$ -кривых полностью подтвердили данные CTR-измерений. RSM-картины показали (рис. 3), что пространственное распределение дифрагируемой интенсивности существенно отличается от подобных картин для планарных периодических структур или структур с искусственно созданной периодичностью в латеральном направлении [22]. Наибольшие отличия в распределении интенсивности наблюдаются вблизи пика от подложки и сверхструктурных пиков. Как и на CTR-картинах, размер основных дифракционных пятен уменьшается в направлении  $q_z$ , но увеличивается в направлении  $q_x$  ( $q_y$ ) при переходе от центрального сверхструктурного максимума (пика 0SL) к боковым сверхструктурным максимумам. Кроме того, отличительной особенностью RSM-картин является наличие протяженных  $\omega$ -тяжей не только у сверхструктурных пиков, но и у пика подложки.

Измеренные вблизи сверхструктурных пиков  $\omega$ -кривые показали, что вместо одиночного пика, характерного для планарных структур, кривые могут иметь два или более дифракционных максимумов, форма и параметры которых определяются, по-видимому, упорядочением в системе квантовых точек. На

симметричном отражении (004) наиболее протяженные тяжи в направлении  $q_x$  ( $q_y$ ) наблюдаются у пика –1SL и у центрального рефлекса (004) GaAs. Так, в центральном сечении пика –1SL на  $\omega$ -кривых наблюдаются 2 максимума (рис. 4), а при уходе от точного углового положения, соответствующего пику –1SL, их число увеличивается до 5. Средние размеры рассеивающих кластеров в азимутальном направлении [110], оцениваемые по расстоянию между пиками на  $\omega$ -кривых, соответствуют рассеянию на комплексах со средними размерами  $(64 \pm 4)$  и  $(26 \pm 2)$  нм, что близко к средним размерам кластеров GaAs и InAs. Для азимутального направления [100] характер распределения дифрагируемой интенсивности в целом не меняется. Средний размер кластеров GaAs составляет 90.0 нм. Изменение формы  $\omega$ -кривых и появление на них дополнительных пиков свидетельствует о формировании дальнего порядка в расположении рассеивающих центров. Характер изменения формы сверхструктурных пятен на RSM-картинах позволяет предположить, что степень латерального упорядочения в слоях с КТ возрастает с увеличением общего числа пар слоев, что подтверждается расчетными и экспериментальными (ПЭМ) данными [23,24].



**Рис. 4.**  $\omega$ -кривая вблизи центра сверхструктурного пика — 1SL. Приведена результирующая подгоночная кривая, соответствующая закону Лоренца. Отражение (004) GaAs, излучение —  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ .

Рентгенодифракционные измерения позволили получить детальную картину пространственного распределения дифрагируемой интенсивности вблизи центрального дифракционного пятна (004) GaAs. По картинам RSM удалось четко выявить наличие  $\omega$ -тяжа у пика подложки, тогда как на CTR-картинах вблизи основных структурных максимумов вследствие ограниченности динамического диапазона детектирующих пластин всегда присутствует сильная фоновая подсветка, затрудняющая изучение деталей пространственного распределения дифрагируемой интенсивности.

## Обсуждение экспериментальных результатов

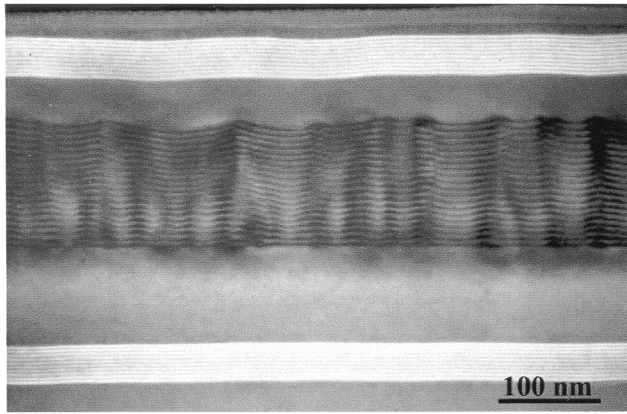
Анализ полученных экспериментальных результатов позволяет предположить, что основное влияние на латеральное рассеяние рентгеновского излучения оказывают сверхрешетки InAs–GaAs, содержащие КТ InAs. Кроме того, необходимо учесть влияние заметного изгиба кристаллографических плоскостей, обусловленного наличием КТ на дифракционное рассеяние рентгеновского излучения, а также квазипериодического деформационного потенциала, наведенного вертикально связанными квантовыми точками в прилегающей части слоя GaAs.

Это позволило предложить структурную модель рассеивающих слоев, качественно объясняющую экспериментальные результаты. В общепринятой модели квантовые

точки InAs, лежащие на смачивающем слое InAs, рассматриваются как идеальные упругонапряженные кластеры InAs определенной формы и размеров, когерентно, т.е. без структурных дефектов, встроенные в совершенную матрицу GaAs. При этом предполагается, что упругие напряжения, вносимые КТ, не оказывают существенного влияния на структуру промежуточных слоев GaAs и распределение напряжений в них, т.е. слои GaAs являются планарными и однородными по структурным параметрам. Изгиб кристаллографических плоскостей не учитывается.

В такой модели основным фактором, который может заметно влиять на дифракционное рассеяние рентгеновского излучения, являются КТ InAs. При хаотическом пространственном распределении и заметной неоднородности собственных размеров они будут давать вклад только в диффузное рассеяние, которое вследствие незначительности их полного рассеивающего объема и отсутствия связанных с ними протяженных структурных дефектов будет мало. Сравнение с экспериментальными результатами показывает, что данная модель не учитывает некоторые особенности структуры рассеивающих слоев и требует уточнения.

Полученные результаты позволяют предположить, что упругие напряжения, вносимые квантовыми точками, оказывают существенное влияние на структуру промежуточных слоев GaAs. Учитывая особенности формирования квантово-размерных слоев с упруго напряженными кластерами и характер распределения напряжений в



**Рис. 5.** Электронно-микроскопическое изображение структуры с 20 парами слоев InAs–GaAs в геометрии поперечного сечения,  $g(002)$ .

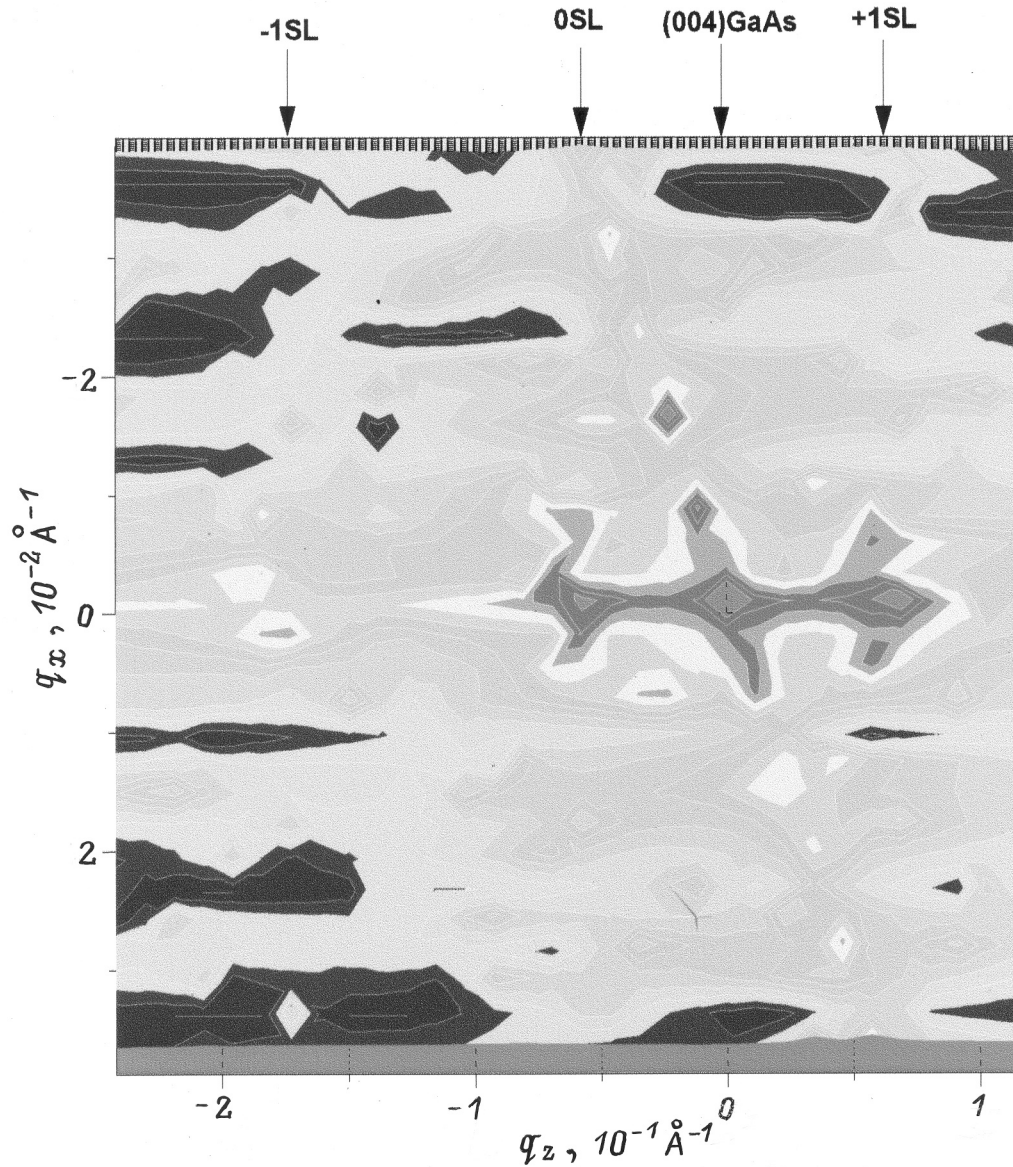
них [25], слои GaAs с встроенными в них квантовыми точками InAs нельзя считать планарными и однородными. В предлагаемой нами модели периодическая структура формируется слоями, состоящими из кластеров InAs пирамидальной формы, разделенных когерентно-сопряженными кластерами GaAs в форме перевернутых пирамид. Слой таких кластеров ограничен снизу смачивающим слоем InAs, а сверху — тонким слоем GaAs. В отличие от предыдущей модели, в которой слой GaAs, содержащий КТ InAs, рассматривался как обычный эпитаксиальный слой, неограниченный в латеральных направлениях, в новой модели слой GaAs, содержащий КТ InAs, рассматривается как система квантово-размерных кластеров InAs и GaAs, обладающих конечными размерами по всем направлениям. При этом предполагается, что при оптимальных условиях роста кластеры формируются без образования протяженных структурных дефектов по границам. В процессе роста многослойной структуры уменьшается дисперсия их собственных размеров, а в результате вертикального совмещения КТ формируется система кластеров InAs–GaAs с признаками дальнего упорядочения в латеральных направлениях. Кроме того, необходимо учесть изгиб кристаллографических плоскостей, обусловленный когерентным встраиванием напряженных КТ InAs в матрицу основного материала (рис. 5). На микрофотографии видно, что изгиб кристаллографических плоскостей растет с увеличением общего числа пар слоев в периодической части структуры. Кроме того, изгиб наследуется вышележащим слоем GaAs, постепенно уменьшаясь по мере удаления от слоев с КТ.

В рамках представленной модели рассмотрим процесс взаимного упорядочения кластеров GaAs и InAs в плоскости (001) и проанализируем связанные с этим особенности пространственного распределения дифрагируемой интенсивности. При полностью неупорядоченном расположении кластеров дифракционное рассеяние будет диффузным и в основном обусловлено рассеянием на кластерах GaAs вследствие их большего рассеивающего объема (порядка 90% от полного объема периодических

структур). Вследствие этого рассеяние будет локализовано вблизи соответствующего узла GaAs, что и было показано в работе [26]. При наличии периодичности в направлении эпитаксиального роста ( $q_z$ ) диффузное рассеяние должно появиться и вблизи сверхструктурных максимумов. Упорядочение кластерной системы как в вертикальном, так и в латеральном направлениях, а также дисперсии собственных размеров кластеров InAs и GaAs должно привести к возрастанию локального статического фактора Дебая–Валлера [26] и в итоге к увеличению интенсивности когерентного рассеяния в направлении  $q_x$  ( $q_y$ ) вблизи сверхструктурных пиков и появлению дополнительных пиков на  $\omega$ -кривых.

Резкое удлинение тяжей у пиков  $-1SL$  и  $-2SL$  по сравнению с пиком  $0SL$  можно объяснить тем, что с увеличением угловой отстройки от центрального пика существенно возрастает чувствительность формы сверхструктурных пиков к неоднородностям в параметрах структур, например к градиенту периода сверхструктуры и изгибу кристаллографических плоскостей. Одновременно с этим увеличивается относительный вклад в рассеяние от верхней части структуры [13]. Это обстоятельство весьма существенно, если учесть, что вертикальное и латеральное упорядочение кластерной системы увеличивается в каждом последующем слое [23,24]. Вследствие этого положение кластеров в верхней части структур оказывается более упорядоченным, а размеры их более однородными. Одновременно растет и изгиб кристаллографических плоскостей. Наиболее заметно это должно проявиться в изменении формы  $\omega$ -кривых — появлении на них дополнительных пиков (эффект латерального упорядочения) и удлинении  $\omega$ -тяжей около дальних сверхструктурных пиков и пика подложки (дополнительное диффузное рассеяние, обусловленное локальной деформацией кристаллической решетки вблизи КТ, приводящей к изгибу кристаллографических плоскостей), что и наблюдается в эксперименте. Существенное отличие формы тяжей у сателлитов  $-1SL$  и  $+1SL$ , по-видимому, связано с различием механизмов фазового взаимодействия волн, дифрагируемых подложкой и эпитаксиальной структурой.

Используя описанную выше физическую модель за основу, в качестве модели для расчетов примем в среднем упорядоченное расположение квантовых точек в направлении осей  $x$ ,  $y$  с одинаковым средним шагом. Для описания данной системы введем  $n$ -мерное нормальное распределение, где  $n$  — среднее число квантовых точек в одном периоде сверхрешетки. Для простоты примем, что случайные смещения КТ из средних положений не скоррелированы, т. е. статистически независимы, и будем считать, что в каждом из периодов дисперсии смещений, размеры КТ и средние расстояния между КТ одинаковы. Изменяя от периода к периоду дисперсию, среднее расстояние между КТ и их средний размер, мы можем моделировать изменение вертикальной и латеральной корреляции в параметрах КТ. Моделирование распределения интенсивности в обратном пространстве проводилось на



**Рис. 6.** Расчетная картина распределения дифрагируемой интенсивности в обратном пространстве вблизи отражения (004) GaAs для структуры с 10 парами слоев InAs–GaAs. Излучение —  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ .

основании теории, изложенной в работе [27], которая была расширена на случай многокристальной схемы дифракции. Результаты моделирования приведены на рис. 6. Вид расчетного распределения когерентной интенсивности в обратном пространстве во многом совпадает с экспериментальными результатами, что подтверждает предположение, что когерентная составляющая вносит значительный вклад в рассеянную интенсивность. Отметим, что расчетная модель позволяет описать лишь в самых общих чертах структуру реально образующихся квантовых точек. Вследствие этого достигнуто лишь качественное совпадение экспериментальных и теоретических данных. В дальнейшем планируется использовать в расчетах многочастичные корреляционные функции для более корректного описания корреляций в параметрах квантовых точек.

Кроме того, в модели необходимо учесть влияние на рассеяние рентгеновского излучения изгиба кристаллографических плоскостей и упругих напряжений, проникающих из слоев с КТ в вышележащий слой GaAs. Следует учесть, что изменения, обусловленные встроенными квантовыми точками, сказываются на значительных по сравнению с размерами самих КТ расстояниях (см. рис. 5) и приводят наряду с изгибом плоскостей к появлению в прилегающих сверху слоях GaAs неоднородно распределенного деформационного рельефа. В совокупности это должно привести к появлению вблизи пика (004) GaAs дополнительного квазикогерентного рассеяния в направлениях  $q_x$  ( $q_y$ ), действительно наблюдаемого на экспериментальных RSM-данных в виде узких  $\omega$ -тяжей. Различия в экспериментальной и теоретической картинах объясняется также тем, что при моделиро-



вании не учитывалось диффузное рассеяние, которое, несомненно, вносит значительный вклад в распределение дифрагируемого излучения.

Вообще, вопрос о степени когерентности дифрагируемого излучения представляется весьма сложным и находится в настоящий момент в стадии исследования. Отметим только следующее обстоятельство, относящееся к вопросу о степени когерентности излучения. Вдоль направления  $q_z$  полуширина  $\omega$ -тяжей, наблюдаемых на RSM-картинах, в любом сечении по  $x$  не превышает их полуширины в центральном ( $\theta-2\theta$ )-сечении, которая определяется суммарной толщиной периодической структуры. Такие же узкие тяжи в направлениях  $q_x$ ,  $q_y$  наблюдаются и на асимметричном отражении (115) при малом угле входа. Объяснить это можно тем, что степень пространственного упорядочения системы в направлении эпитаксиального роста значительно выше, чем в латеральном, прежде всего в силу коренного различия механизмов их формирования. Поэтому и фазовые корреляции в направлении  $q_z$  более сильны, чем в направлениях  $q_x$ ,  $q_y$ , в которых дальнейшее упорядочение статистически распределенных кластеров (или КТ) только начинает проявляться. Тем не менее полученные нами данные показывают, что скорость латерального упорядочения кластеров в реальных структурах существенно выше в сравнении с расчетной моделью [23], так как выбор начального положения для квантовых точек InAs и условия их формирования в реальной структуре не являются случайными, а определяются механизмом эпитаксиального роста и качеством исходной ростовой поверхности в процессе формирования слоев с квантовыми точками.

Отметим к вопросу о когерентности дифрагируемого излучения еще одно важное обстоятельство. Полученные данные показывают, что в исследованных структурах деформационный изгиб кристаллографических плоскостей в отличие от нарушения планарности слоев и гетерограниц, по-видимому, не оказывает существенного влияния на когерентность дифрагируемого излучения, а следовательно, и на пространственное разрешение методов рентгеновской дифрактометрии.

## Заключение

Методами Crystal Truncation Rods (CTR) и высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии исследованы кристаллические совершенные многослойные периодические структуры InAs–GaAs с квантовыми точками InAs. Обнаружены характерные закономерности дифракционного рассеяния рентгеновского излучения на структурах данного типа. С помощью CTR-картин и картин пространственного распределения дифрагируемой интенсивности показано, что вблизи сверхструктурных пиков и рефлекса от подложки формируются узкие длинные тяжи в направлении  $q_x$  ( $q_y$ ), параллельном поверхности, что указывает на изгиб кристаллографических плоскостей в областях, содержащих КТ, а также в верхних прилегающих слоях.

Показано, что с ростом числа пар слоев в периодической структуре длина  $\omega$ -тяжей увеличивается, меняется картина пространственного распределения дифрагируемой интенсивности. Форма и параметры  $\omega$ -кривых вблизи сверхструктурных пиков свидетельствуют о начале формирования дальнего порядка в латеральном расположении рассеивающих центров (КТ, кластеры GaAs) в многослойных периодических структурах. Показано, что по направлению к поверхности латеральное упорядочение кластеров в слоях растет, а дисперсия размеров уменьшается.

Предложена новая модель квантово-размерных слоев с квантовыми точками. Слои состоят из бездефектных когерентно сопряженных кластеров InAs и GaAs. Формирование системы кластеров обусловлено наличием неоднородно распределенных упругих напряжений вокруг зарождающихся квантовых точек InAs. В модели учтены изгибы кристаллографических плоскостей, обусловленные локальными деформациями вблизи КТ InAs, и дополнительный деформационный потенциал, наведенный в вышележащем слое GaAs. Расчеты, проведенные на основе предложенной модели, показали, что полученные результаты во многом совпадают с экспериментальными, подтверждая тем самым, что когерентная составляющая дифрагируемого излучения вносит значительный вклад в рассеянную интенсивность. Показано, что формирование дополнительного деформационного рельефа в прилегающем сверху слое GaAs, а также изгиб кристаллографических плоскостей существенно влияют на пространственное распределение дифрагируемой интенсивности и приводят к появлению дополнительного  $\omega$ -тяжа у пика подложки.

Показано, что непланарность или размытие интерфейсов в совершенных гетероструктурах является основным фактором, ограничивающим пространственное разрешение методов рентгеновской дифрактометрии. В отличие от этого эффекта деформационный изгиб кристаллографических плоскостей, по-видимому, не оказывает существенного влияния на пространственное разрешение метода.

Методы Crystal Truncation Rods и высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии дополняют друг друга, позволяя установить детальные особенности дифракционного рассеяния рентгеновского излучения на сложных рассеивающих объектах.

Авторы выражают благодарность А.А. Суворовой и Ю.Г. Мусихину за любезно предоставленные результаты электронно-микроскопических исследований.

Работа выполнена в рамках научной программы Monbusho Project "Venture Business Laboratory" в Государственном университете г. Нагоя (Япония) и частично поддержана грантом Daiko Foundation. Работа также поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований, Министерства общего и профессионального образования России (грант № 97-0-7.2-116) и ИНТАС (гранты № 95-618 и № 96-0128), а также программой Министерства науки РФ "Физика твердых тел и наноструктур".

## Список литературы

- [1] Y. Arakawa, H. Sakaki. Appl. Phys. Lett., **40**, 939 (1982).
- [2] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu. Jap. J. Appl. Phys., **24**, L95 (1985).
- [3] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. LeRoux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [4] Y. Arakawa, A. Yariv. IEEE J. Quant Electron., **QE-22**, 1887 (1986).
- [5] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu. IEEE J. Quant Electron., **QE-22**, 1915 (1986).
- [6] M. Tabuchi, S. Noda, A. Sasaki. In: *Science and Technology of Mesoscopic Structures*, ed. by S. Namba, C. Hamaguchi, T. Ando (Tokyo, Springer Verlag, 1992).
- [7] *Nanostructures and Quantum Effects*, ed. by H. Sakaki and H. Noge (Berlin, Springer Verlag, 1994).
- [8] *Epitaxial Microstructures*, ed. by A.C. Gossard. *Semiconductors and Semimetals* (Academic Press, Boston, 1994) v. 40.
- [9] П.Н. Брунков, А.А. Суворова, Н.А. Берг, А.Р. Ковш. ФТП, **32**, 1229 (1998).
- [10] L. Tapfer, K. Ploog. Phys. Rev. B, **40**, 9802 (1989); L. Tapfer, M. Ospelt, H. Kanel. J. Appl. Phys., **67**, 1298 (1990).
- [11] N.N. Faleev, I.K. Solomin, L.I. Flaks, S.V. Batashova, S.G. Konnikov. Phys. St. Sol. (a), **120**, 327 (1990).
- [12] T. Shimura, J. Harada. J. Appl. Cryst., **26**, 151 (1993).
- [13] А.М. Афанас'ев, Р.А. Александров, С.С. Фанченко, В.А. Чапманов, С.С. Якимов. Acta Cryst. A, **42**, 116 (1986).
- [14] N. Faleev, R. Stabenow, M. Sinitsyn, B. Yavich, A. Haase, A. Grudsky. Mater. Sci. Forum, **166–169**, 293 (1994).
- [15] В.Г. Груздов, А.О. Косогов, Н.Н. Фалеев. Письма ЖТФ, **20**, вып. 14, 1 (1994).
- [16] L. Dong, J. Schnitker, R.W. Smith, D.J. Srtolovitz. J. Appl. Phys., **83**, 217 (1998).
- [17] Н.А. Берг, Ю.Г. Мусихин, В.В. Преображенский, М.А. Пулято, Б.Р. Семягин, А.А. Суворова, В.В. Чалдышев, Р. Werner. ФТП, **32**, 769 (1998).
- [18] Н.Н. Фалеев, В.В. Чалдышев, А.Е. Куницын, В.В. Преображенский, М.А. Пулято, Б.Р. Семягин, В.В. Третьяков. ФТП, **32**, 24 (1998).
- [19] D. Suzuki, H. Yamaguchi, Y. Horikoshi. Jpn. J. Appl. Phys., **37**, 758 (1998).
- [20] S. Takagi. J. Phys. Soc. Jpn., **26**, 1239 (1969).
- [21] P.F. Fewster, C.J. Curling. J. Appl. Phys., **62**, 4154 (1987).
- [22] V. Holy, A.A. Darhuber, G. Bauer, P.D. Wang, Y.P. Song, C.M. Sotomayor Torres, M.C. Holland. Phys. Rev. B, **52**, 8348 (1995).
- [23] J. Tersoff, C. Teichert, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., **76**, 1675 (1996).
- [24] S. Rouvimov, Z. Liliental-Weber, W. Swider, J. Washburn, E.R. Weber, A. Sasaki, A. Wakahara, Y. Furukawa, T. Abe, S. Noda. J. Electron. Mater., **27**, 427 (1998).
- [25] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **52**, 11 969 (1995).
- [26] A.A. Darhuber, V. Holy, J. Stangl, G. Bauer, A. Krost, F. Heinrichsdorff, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, A.O. Kosogov, P. Werner. Appl. Phys. Lett., **70**, 955 (1997).
- [27] K.M. Pavlov, V.I. Punegov. Acta Cryst. A, **54**, 214 (1998).

Редактор Т.А. Полянская

## X-ray diffraction studies of multilayer InAs–GaAs heterostructures with quantum dots of InAs.

N.N. Faleev, K.M. Pavlov\*, V.I. Punegov\*, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhrin, V.M. Ustinov, M. Tabuchi<sup>+</sup>, Y. Takeda<sup>+</sup>

A.F. Ioffe Physicotechnical Institute,  
Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petesburg, Russia.

\*Syktyvkar State University,  
167001 Syktyvkar, Russia.

<sup>+</sup>Department of Materials Science & Engineering  
Nagoya University, Nagoya,  
464–8603, Japan

**Abstract** Multilayer periodical InAs–GaAs heterostructures containing arrays of self-assembled vertically coupled quantum dots (QDs) of InAs in matrix of GaAs, grown by MBE, have been studied by methods of Crystal Truncation Rods and High Resolution X-ray Diffraction. It is shown that the existence of such scattering objects as vertically coupled QDs in structures investigated significantly changes the x-ray diffraction conditions and hence the spatial distribution of diffracted radiation. This effect has been explained by an appearance of additional lateral ordering of scattering objects. The waviness of crystalline lattice planes and the quasi-periodical deformation a relief due to the QDs must be taken into account, too. A novel qualitative model of InAs–GaAs periodical structure, consisting of coherently assembled crystalline perfect InAs and GaAs clusters is considered.