

01

Диффузное рассеяние рентгеновских лучей на кристаллических структурах с квантовыми точками пирамидальной формы

© В.И. Пунегов, Д.В. Сивков

Коми Научный Центр УрО РАН,
Сыктывкар, Россия
e-mail: vpunegov@dm.komisc.ru

(Поступило в Редакцию 9 октября 2014 г.)

Исследовано диффузное рассеяние от кристаллических структур с квантовыми точками (КТ) в форме правильной усеченной пирамиды с квадратным основанием. Расчеты упругих деформаций вокруг квантовых точек выполнены с использованием метода функции Грина. Проведено численное моделирование полей атомных смещений КТ и углового распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве в зависимости от концентрации КТ. Показано влияние сечения пирамидальной КТ плоскостью дифракции на диффузное рассеяние рентгеновских лучей.

Полупроводниковые структуры с квантовыми точками (КТ) широко применяются в приборах электроники, фотоники и оптоэлектроники [1], при этом возникающие квантовые эффекты существенно зависят от размеров, формы и пространственного расположения КТ в эпитаксиальных системах. Среди характеристик наноструктурированных материалов особая роль отводится форме КТ и упругим деформациям, возникающим из-за несоответствия параметров решеток КТ и материала матрицы. Известно, что ростовой механизм Странски-Крастанова (Stranski-Krastanow growth mode) ведет к формированию самоорганизованных КТ, форма которых сильно зависит от ростовой температуры, соотношения компонентных потоков и скорости роста. При определенных условиях формируются КТ в форме правильной пирамиды или правильной усеченной пирамиды с квадратным основанием (см. обзор [2] и приведенную в нем литературу). Для вычисления упругих полей деформаций от пирамидальных КТ применялись разные подходы, основанные на численных методах конечных элементов [3], а также с использованием формализма функций Грина [4,5] и аналитических решений [6,7].

Метод высокоразрешающей рентгеновской дифракции позволяет получать информацию о структурных характеристиках эпитаксиальных систем с КТ [8–10]. В этом случае квантовые точки играют роль структурных дефектов [11] и ответственны за возникновение диффузного рассеяния, угловое распределение которого зависит от формы, размеров и упругих деформаций квантовых точек. Отметим, что ранее теоретически и экспериментально исследовано диффузное рассеяние от пирамидальных SiGe-островков на подложке кремния с учетом внутренних упругих деформаций [12]. Размеры этих островков значительно превышали размеры квантовых точек, упругие поля деформаций внутри объема островков рассчитывались методом конечных элементов.

В отличие от [12] в настоящей работе мы исследуем диффузное рассеяние от скрытых КТ с учетом упругих

полей деформаций в кристаллической матрице вокруг КТ, что ранее не рассматривалось. Решения для атомных смещений вокруг пирамидальной КТ получены с использованием метода функции Грина [4].

Рассмотрим диффузное рассеяние в кристаллическом слое со скрытыми КТ пирамидальной формы без учета их пространственной корреляции. Используем подход, недавно рассмотренный нами для цилиндрических, конусообразных и сфероидальных КТ [13]. Однако по сравнению с [13] рассматриваемая задача является более сложной из-за наличия наклонных граней и острых ребер между гранями.

Угловое распределение интенсивности рассеяния зависит от величины вектора \mathbf{q} , задающего отклонение вектора дифракции от узла обратной решетки. Выражение для интенсивности имеет вид

$$I_h^d(\mathbf{q}) = K_D |D(\mathbf{q})|^2 / V_{QD}, \quad (1)$$

где K_D — постоянный коэффициент, зависящий от концентрации КТ и рассеивающей способности кристалла, V_{QD} — объем КТ. Амплитуда диффузного рассеяния в (1) представима в виде суммы двух слагаемых

$$D(\mathbf{q}) = D_{SW}(\mathbf{q}) + D_D(\mathbf{q}). \quad (2)$$

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 (2) может быть записан как

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

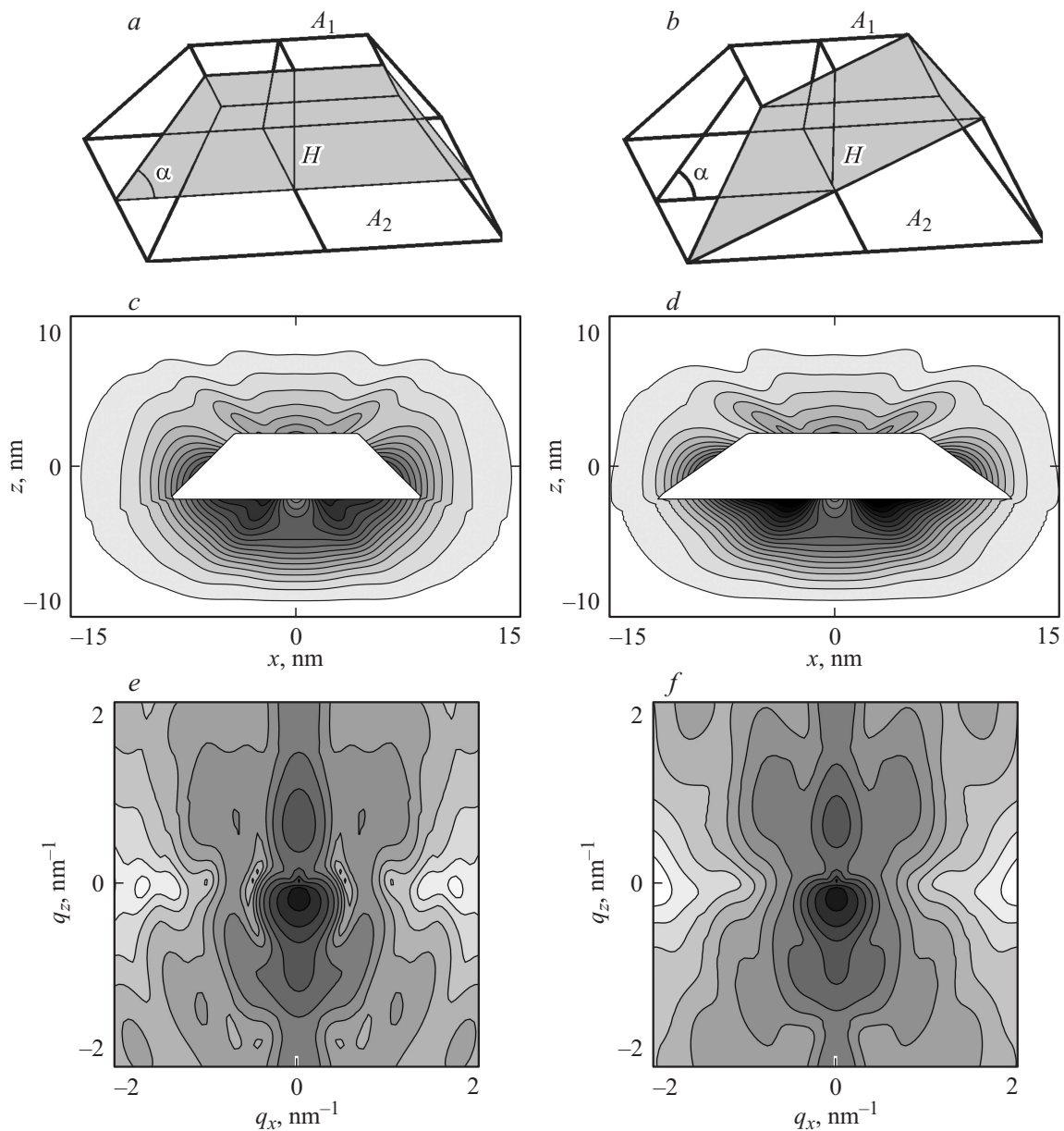


Рис. 1. Двумерные карты упругих деформаций (*a, c*) и углового распределения диффузного рассеяния (*b, d*) от структуры InAs/GaAs с некоррелированными квантовыми точками InAs в форме усеченной пирамиды для деформаций несоответствия $\epsilon_0^{(1)} = 0.016$ (*a, b*) и $\epsilon_0^{(2)} = 0.003$ (*c, d*). Расстояние между соседними КТ в вертикальном направлении 20 nm, в латеральном направлении 30 nm.

Аналитическое решение для рассеяния Стокса–Вильсона для КТ в форме усеченной пирамиды имеет вид

$$\begin{aligned}
 D_{SW}(\mathbf{q}) = 2\pi \frac{H}{q_x q_y} & \left[\text{sinc}(H_{q_1}) \exp(-i(R_1 - H_{q_1})) \right. \\
 & + \text{sinc}(H_{q_2}) \exp(i(R_1 - H_{q_2})) \\
 & - \text{sinc}(H_{q_3}) \exp(i(R_2 - H_{q_3})) \\
 & \left. - \text{sinc}(H_{q_4}) \exp(-i(R_2 - H_{q_4})) \right], \quad (3)
 \end{aligned}$$

где $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$; угловые параметры q_1, q_2, q_3, q_4 задаются выражениями $q_1 = ((q_x - q_y) \text{ctg } \alpha + q_z)/2$, $q_2 = ((q_x - q_y) \text{ctg } \alpha + q_z)/2$, $q_3 = ((q_x - q_y) \text{ctg } \alpha + q_z)/2$, $q_4 = ((q_x - q_y) \text{ctg } \alpha + q_z)/2$, H — высота пирамиды. Присутствующие в (3) коэффициенты R_1 и R_2 имеют вид $R_{1,2} = (q_x A_1 \mp q_y A_2)/2$, где $A_{1,2}$ — длины сторон верхнего и нижнего оснований пирамиды.

Численный расчет диффузного рассеяния от кристалла со скрытыми КТ с учетом упругих атомных смещений удобно проводить в обобщенной сферической системе координат, в итоге получаем следующее выражение для

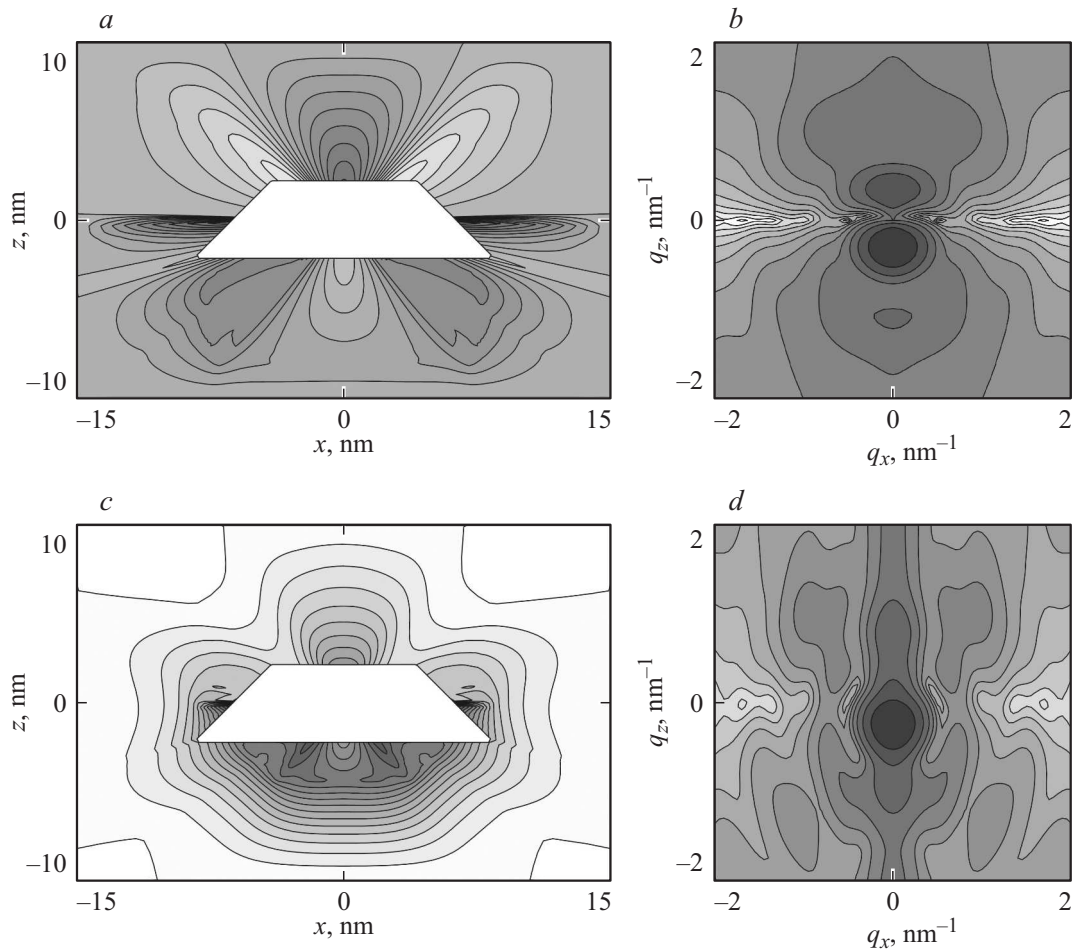


Рис. 2. Двумерные карты упругих деформаций (*a, c*) и углового распределения диффузного рассеяния (*b, d*) от структуры InAs/GaAs с некоррелированными квантовыми точками InAs в форме усеченной пирамиды для деформаций несоответствия $\varepsilon_0^{(1)} = 0.016$ (*a, b*) и $\varepsilon_0^{(2)} = 0.003$ (*c, d*). Расстояние между соседними КТ в вертикальном направлении 20 nm, в латеральном направлении 30 nm.

второго слагаемого суммы (2):

$$D_D(\mathbf{q}) = -i8 \frac{\hbar \mathbf{q}}{q} \int_0^{\pi/4} d\varphi \int_0^{\pi} d\theta \sin \theta \cos \theta \times \int_{r_0(\varphi, \theta)}^{\infty} dr r^2 U_r(\varphi, r, \theta) \exp(iqr \cos \theta),$$

где интегрирование по r ведется от поверхности КТ заданной функцией $r_0(\varphi, \theta)$ по всему объему засвеченного рентгеновским пучком кристалла. Здесь

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

— проекция поля упругих решеточных смещений на выделенное направление.

В рамках вышеизложенного подхода проведено численное моделирование распределения интенсивности

диффузного рассеяния от кристаллической среды GaAs с массивом скрытых InAs КТ в форме усеченной пирамиды. 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 0.38. Размеры КТ в форме пирамиды были выбраны с учетом проведенных ранее вычислений для наноструктур сфероидальной формы (высота $H = 5$ nm и диаметр $2R = 20$ nm) [13]. При условии равенства объемов КТ в форме сфероида и усеченной пирамиды выбраны следующие параметры рассматриваемой модели: высота $H = 4.37$ nm, длина стороны верхнего основания $A_1 = 7.47$ nm, длина стороны нижнего основания $A_2 = 16.2$ nm, угол α между основанием и одной из граней пирамиды составляет 45° . Деформация несоответствия постоянных решетки матрицы GaAs и КТ зависит от композиционного состава InGaAs. В численном моделировании мы использовали два значения

деформаций несоответствия: $\varepsilon_0^{(1)} = 0.016$ и $\varepsilon_0^{(2)} = 0.003$. Из-за большого несоответствия параметров решетки InAs и GaAs распределение деформаций внутри КТ, а также весьма слабое диффузное рассеяние от ее внутренней части в расчетах не учитывались.

Следует отметить, что угловое распределение диффузного рассеяния от кристалла с пирамидальными КТ зависит от ориентации наноструктур относительно плоскости дифракции. На рис. 1 показаны два случая положения плоскости дифракции относительно конфигурации КТ для азимутальных углов 0° (рис. 1, *a*) и 45° (рис. 1, *b*). На этом рисунке представлены поля упругих смещений (рис. 1, *c, d*) для случая малой объемной плотности КТ в кристаллической матрице. Среднее расстояние между соседними КТ составляет 250 nm в вертикальном и латеральном направлениях. Соответствующие карты распределения диффузного рассеяния изображены на рис. 1, *e, f*.

На рис. 2 показаны двумерные карты упругих деформаций и углового распределения диффузного рассеяния для КТ большой объемной плотности, что характерно для сверхрешеток в отсутствие вертикальной и латеральной корреляций наноструктур. Среднее вертикальное расстояние между КТ составляет 20 nm, расстояние между соседними КТ в латеральном направлении 30 nm. Численные расчеты показывают, что поведение упругих деформаций, а следовательно, и углового распределения диффузного рассеяния сильно зависит от деформаций несоответствия параметров решетки КТ и кристаллической матрицы. Для относительно больших деформаций ($\varepsilon_0^{(1)} = 0.016$) существенным становится вклад хуанговского рассеяния, что подтверждается проявлением „нулевой линии“ при $q_z = 0$ на карте диффузного рассеяния (рис. 2, *b*). Для слабых деформаций ($\varepsilon_0^{(2)} = 0.003$) преобладает рассеяние Стокса–Вильсона, обусловленное формой остова КТ. При этом четкость „нулевой линии“ пропадает и наблюдается характерное поведение диффузного рассеяния, непосредственно связанное с углом наклона граней пирамидальной КТ (рис. 2, *d*). Отметим, что похожий характерный наклон контуров равной интенсивности диффузного рассеяния наблюдался в случае кристаллической среды с конусообразными КТ [13].

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

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (проекты № 13-02-00272-а и № 14-02-31778), 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] Aqua J.-N., Berbezier I., Favre L., Frisch T., Ronda A. // Phys. Rep. 2013. Vol. 522. P. 59–189.
- [3] Grundmann M., Stier O., Bimberg D. // Phys. Rev. B. 1995. Vol. 52. P. 11969–11981.
- [4] Andreev A.D., Downes J.R., Faux D.A., O'Reilly E.P. // J. Appl. Phys. 1999. Vol. 86. P. 297–305
- [5] Melezhik E., Korotchenkov O. // J. Appl. Phys. 2009. Vol. 105. P. 023 525 (1–5).
- [6] Pearson G.S., Faux D.A. // J. Appl. Phys. 2000. Vol. 88. P. 730–736.
- [7] Nenashv A.V., Dvurechenskii A.V. // J. Appl. Phys. 2010. Vol. 107. P. 064 322 (1–8).
- [8] Pietsch U., Holy V., Baumbach T. High Resolution X-ray Scattering — from Thin Films to Lateral Nanostructures. NY: Springer-Verlag, 2004. 408 p.
- [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. Vol. 92. P. 437–443.)
- [10] Faleev N. N., Honsberg C., Punegov V.I. // J. Appl. Phys. 2013. Vol. 113. P. 163 506 (1–9).
- [11] Krivoglaz M.A. X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals. Berlin: Springer, 1996. 467 p.
- [12] Holy V., Mundboth K., Mokuta C., Metzger T.H., Stangl J., Bauer G., Boeck T., Schmidbauer M. // Thin Solid Films. 2008. Vol. 516. P. 8022–8028.
- [13] Пунегов В.И., Сивков Д.В. // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39. Вып. 21. С. 60–69. (Punegov V.I., Sivkov D.V. // Tech. Phys. Lett. 2013. Vol. 39. P. 964–968.)