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 деформаицй от КТ использована аналогия между задачами электростатики и теории упругости. Вектор упругих смещений в точке **r** кристаллической среды, вызываемый включением произвольной формы, может быть записан в виде

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

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]

$$\varphi(\mathbf{r}) = \Lambda \int\limits_V \frac{d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}, \qquad (2)$$

который может быть вычислен методом разложения по мультиполям

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

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

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

где $\varphi_n(\mathbf{r}) = \Lambda \frac{P_n(\cos(\gamma))}{r^{n+1}} \Omega_n$, $\Omega_n = \int\limits_V r'^n d\mathbf{r}'$. 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

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

где $\delta\mathbf{u}_n(\mathbf{r}) = \Lambda(n+1)\frac{\mathbf{r}P_n(\cos(\gamma))}{r^{n+3}}\Omega_n$. 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)

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

Здесь R — радиус сферического включения.

Рассмотрим модель КТ в форме эллипсоида вращения (рис. 1). Пусть l — 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

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

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

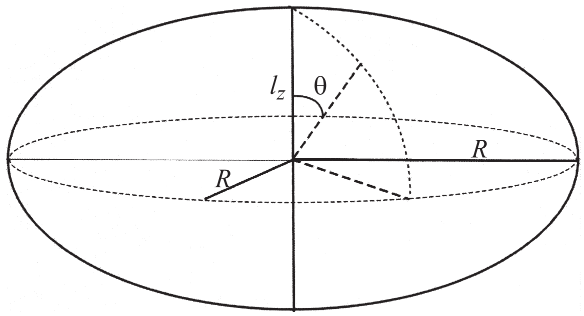

Рис. 1. Модель квантовой точки в форме эллипсоида вращения.

и направлением **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

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

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

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

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

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

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

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:

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

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

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

где

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

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

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

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 расположени КТ.

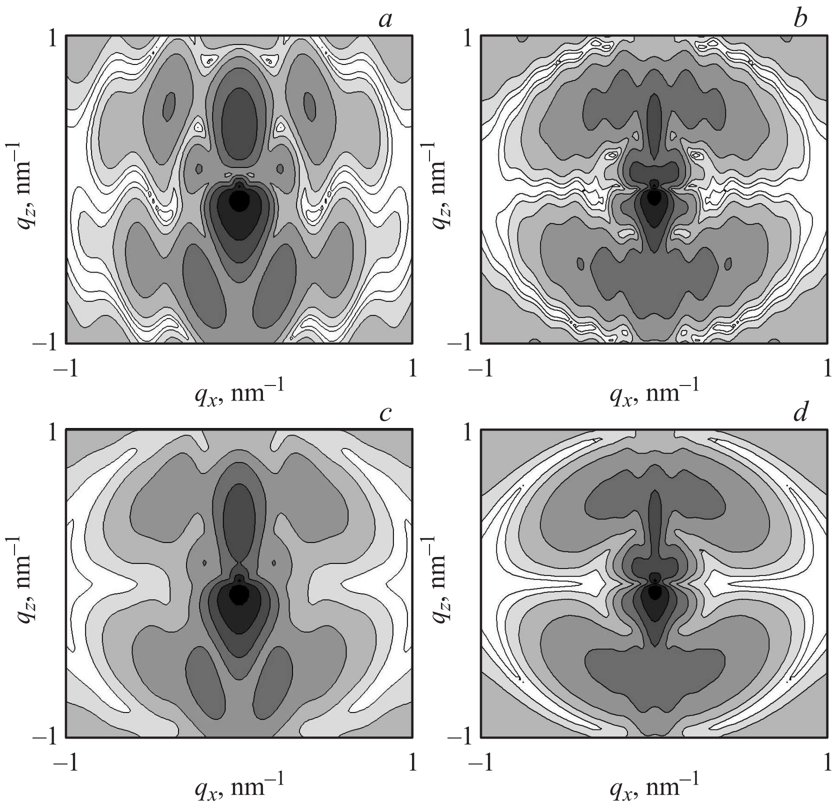

Рис. 2. Карты распределения интенсивности рассеяния от кристаллической системы с КТ эллипсоидальной формы: *a, c* — высота КТ $l_z = 10$ nm, латеральный радиус $R = 20$ nm; *b, d* — высота КТ $l_z = 10$ nm, латеральный радиус $R = 40$ nm. *a, b* — КТ одного размера; *c, d* — КТ разного размера; дисперсия 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 инетнсивности 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 ($R = 40\,\mathrm{nm}$) еще сильнее меняет контуры равной интенсивности диффузного рассеяния (рис. 2, b) по сравнению со сферически симетричными 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 временны́х 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., Schittenhelm P., Holý V., Stangl J., Bauer G., Abstreiter G.* // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. P. 15652–15663.
[7] *Holy 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. V. 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.