

PACS numbers: 61.10.-i, 68.65.-k

Рентгенодифракционные исследования 2D–3D структурных переходов в наноразмерных многослойных периодических структурах

В. П. Кладько, В. Ф. Мачулин, И. В. Прокопенко, В. В. Стрельчук,
А. И. Гудыменко, А. А. Корчевой

*Институт физики полупроводников им. В. Е. Лашкарева НАН Украины,
просп. Науки, 45,
03028 Киев, Украина*

Методами рентгеновской дифрактометрии исследованы многослойные структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с квантовыми ямами, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Установлена неоднородность состава квантовых ям по толщине, а также по площади. Проанализировано влияние вариаций состава индия в твердом растворе на распределение упругих деформаций в слоях, а также на переход от двухмерного (2D) псевдоморфного роста к трехмерному (3D) — островковому. Изучено влияние этих факторов на спектры кривых дифракционного отражения рентгеновских лучей.

Методами рентгенівської дифрактометрії досліджено багат шарові структури $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ з квантовими ямами, отримані молекулярно-пучковою епітаксією. Виявлено неоднорідність складу квантових ям за товщиною, а також за площею. Проаналізовано вплив варіацій складу індію в твердому розчині на розподіл пружних деформацій в шарах, а також на перехід від двовимірного (2D) псевдоморфного росту до тривимірного (3D) — острівкового. Вивчено вплив цих факторів на спектри кривих дифракційного відбиття рентгенівських променів.

By methods of X-ray diffractometry, we investigate the multilayered structures $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ with the quantum wells received MBE. Heterogeneity of structure of quantum holes on thickness, and also on the area is revealed. Influence of variations of structure of a firm solution on distribution of elastic deformations in layers, and also on transition from two-dimensional (2D) pseudomorphic growth to three-dimensional (3D) islands is analysed. Influence of these factors on spectra of rocking curves of X-rays is investigated.

Ключевые слова: многослойные периодические структуры, квантовые

точки кривые отражения и рентгеновские лучи.

(Получено 9 июля 2003 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Многослойные структуры с напряженными слоями InGaAs/GaAs позволяют повысить эффективность размерного квантования. Ансамбли nanoостровков, сформированные в матрице широкозонного материала, имеют большой практический интерес [1, 2]. Поэтому их применение требует проведения широкомасштабных исследований свойств этих структур с целью оптимизации технологических режимов формирования слоев и границ раздела. В частности, при отработке технологии получения квантовых слоев InGaAs/GaAs необходимо знать основные параметры слоев, такие как молярная доля индия и толщина слоя, а также уровень механических напряжений. Следует также отметить, что спонтанная поперечная модуляция состава в пленках полупроводниковых сплавов III–V приводит к сильным изменениям оптоэлектрических свойств полупроводниковых материалов, которые представляют технический интерес для производства квантово-размерных лазеров и фотодетекторов [3, 4].

Основным методом исследования этих объектов является рентгенодифрактометрия высокого разрешения [5–8]. Этим методом исследованы как технологические параметры (толщина слоев, состав квантовой ямы (точки)), так и структурные — уровень деформации в слоях, степень их структурного совершенства. Одним из интересных факторов является влияние соотношения между толщинами квантовой ямы и барьерного слоя, а также диффузионного размытия интерфейса на спектры дифракции рентгеновских лучей (РЛ).

Цель настоящей работы: 1) определение основных параметров многослойных напряженных квантовых ям InGaAs/GaAs с различным составом твердого раствора (ТР); 2) изучение влияния содержания индия в квантовых ямах (КЯ) на переход от двухмерного к трехмерному росту квантовых слоев с островками (квантовыми точками (КТ)); 3) исследование изменений в спектрах отражения РЛ этими структурами под влиянием вышеперечисленных факторов.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ РАСЧЕТОВ

Многослойную систему, какой является структура с несколькими квантовыми ямами, можно представить как систему однородных субслоев [9]. Расчет кривой дифракционного отражения (КДО) будем проводить по формулам динамической теории рассеяния

РЛ, которая сводится к рекуррентным соотношениям, связывающим амплитуду отражения от N слоев $R_{h,N}$ с амплитудами отражения $R_{h,1}$ и прохождения $R_{0,1}$ от верхнего слоя с амплитудами $(N-1)$ последующих слоев:

$$R_{h,N} = [R_{h,1} + R_{h,N-1}(R_{0,1}R_{0,1} - R_{h,1}R_{h,1})](1 - R_{h,N-1}R_{h,1})^{-1}. \quad (1)$$

Каждый из слоев характеризуется толщиной t_j , параметром кристаллической решетки a_j и степенью аморфизации f_j , которая связана со смещениями атомов из регулярной позиции.

Для проведения численного анализа и сопоставления его с экспериментом удобно использовать модель дефектов кулоновского типа. Тогда выражение для статического фактора Дебая-Валлера, согласно [10], можно представить как

$$E_{1,2} = \exp(-4\pi r_{1,2}^3 c_{1,2} / 3), \quad (2)$$

где $r_{1,2}$ и $c_{1,2}$ — соответственно радиусы и концентрации дефектов в слоях периода решетки.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Все образцы были выращены на полуизолирующем арсениде галлия (100) на установке MBE (Riber 32). Давление в камере составляло $1 \cdot 10^{-5}$ Торр. Амортизирующий буферный слой арсенида галлия толщиной 0,5 мкм выращивали при температуре подложки 580°C. Затем температуру подложки уменьшали до 500°C для выращивания многослойных сверхрешеточных структур 8·(14ML (In, Ga)As/40ML GaAs). Пять серий образцов выращены с содержанием индия 0,2; 0,25; 0,28; 0,3 и 0,35 соответственно. Поверхностная структура в течение процесса выращивания контролировалась методом RHEED. Измерения КДО для симметричных 400, 200^{2*} и асимметричных 311 рефлексов проводили на двухкристальном спектрометре (кристалл-монокроматор GaAs(100), CuK α -излучение, 400 отражение). Образец сканировался вблизи точного положения Брэгга в диапазоне около 3° в так называемом $\omega/2\theta$ -режиме. Толщина слоев многослойной структуры определялась по осцилляциям отражательной способности при дифракции на отражение [5]. Измерения проводили в дискретном угловом режиме с шагом 2". При данных параметрах накопления числа импульсов соотношение сигнал-шум достигало величины 10^{-5} . Для анализа экспериментальных данных проводили сопоставление эксперименталь-

* Анализ результатов для квазизапрещенного рефлекса 200 будет посвящена отдельная работа.

ных и рассчитанных КДО путем фитирования с использованием так называемой методики χ^2 , которая позволяет находить средние значения параметров, а также их среднеквадратичные отклонения [9].

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Используя приведенные выше соотношения, авторы провели расчеты спектров КДО для данных структур. В качестве стартовых условий для подгонки теоретических спектров КДО к экспериментальным использовались технологические параметры структур. Окончательной подгонки до значения параметра $\chi = 1,43$ добивались путем введения в расчеты дополнительных слоев с различным содержанием индия.

Экспериментальные КДО, а также результаты подгонки теоретических кривых для симметричного отражения 004 от некоторых образцов с различным содержанием индия в твердом растворе представлены на рис. 1. Наблюдаемые на них особенности можно качественно просто объяснить. Видно, что кроме пика подложки и основного максимума, вызванного средней решеткой структуры (нулевого сателлита), на хвостах КДО наблюдается сложная интерференционная структура, представляющая собой взаимодействие волн с одинаковыми периодами колебаний [11]. Осцилляции с малым периодом $\Delta\theta$ отвечают за толщину всей структуры и за наличие на поверхности структуры пленки (защитного слоя) толщиной $t = (\lambda \sin \theta_0) / \Delta\theta \sin 2\theta$. Более длиннопериодные осцилляции имеют ярко выраженный максимум, свидетельствующий о формировании в приповерхностной области образцов периодической структуры монокристаллических слоев, отличающихся от подложки на величину среднего параметра решетки $\Delta a = -a_0 \cot \theta \Delta\theta$. Анализ КДО (как симметричных 400, так и асимметричных 311) показал, что все структуры в той или иной степени являются псевдоморфными. С учетом этого обстоятельства была проведена оценка содержания индия в квантовых ямах. Эти оценки приведены в табл. 1.

В результате процедуры подгонки для рефлекса 400 были получены толщины слоев в периоде сверхрешетки (СР), распределение примеси в пределах КЯ, а также изменение параметра решетки в направлении роста структуры. Эти результаты обобщены в табл. 1 и 2. В предпоследней колонке табл. 2 приведены значения усредненного параметра деформации по периоду СР вдоль направления роста для всех структур, который рассчитывается по формуле

$$\langle \varepsilon \rangle = \frac{\varepsilon_1 t_1 + \varepsilon_2 t_2}{t_1 + t_2}. \quad (3)$$

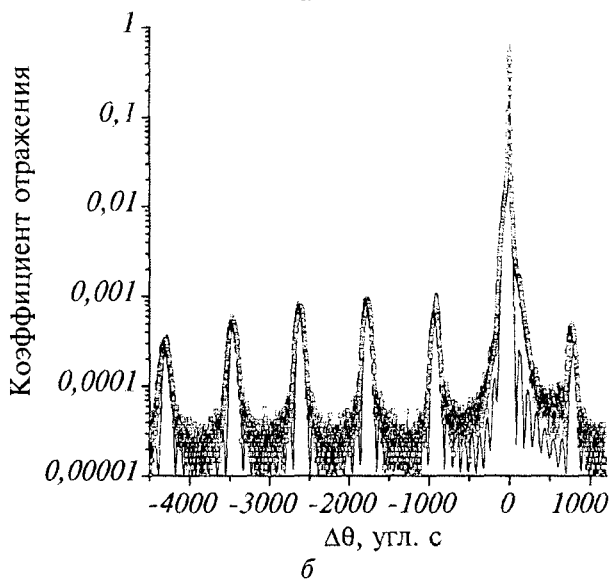
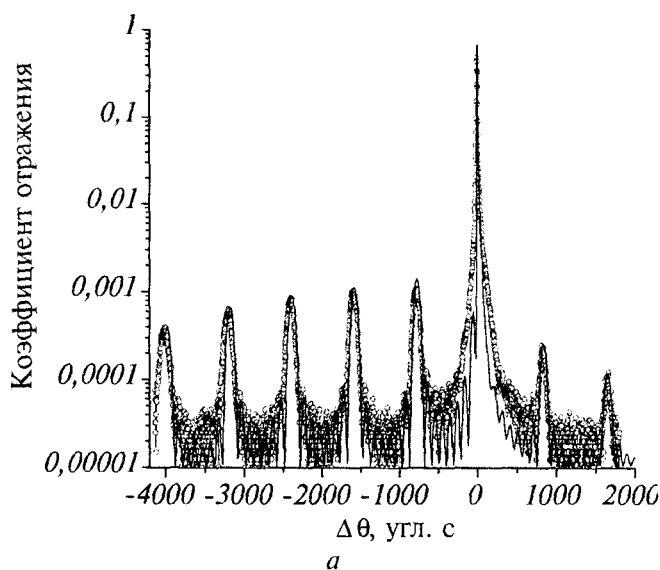


Рис. 1. Рассчитанные (сплошная линия) и экспериментальные (точки) КДО для рефлекса 004 в структурах с содержанием индия: а — $x = 0,25$; б — $x = 0,28$.

В последней колонке этой же таблицы приведены средние значения деформаций в периоде СР, полученные из углового положения нулевого сателлита 004 отражения. Как видно из этого сравнения, результаты, полученные разными подходами, хорошо

ТАБЛИЦА 1. Состав и параметры квантовых ям $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по данным рентгеновской дифрактометрии.

Номер структуры	Состав	Толщина КЯ, нм	Толщина слоя GaAs, нм	Период СР, нм
1	0,2	4,5	15,9	20,38
2	0,25	5,5	17,91	23,41
3	0,28	5,0	17,31	22,31
4	0,2	0,7	16,94	21,69
	0,3	4,0		
5	1	0,7	17,88	22,98
	0,17	4,4		

коррелируют между собой. Однако сравнение этих значений с данными для релаксированной структуры, имеющей аналогичный состав, показывает, что все образцы находятся в деформированном состоянии.

Если учесть повышенную подвижность индия, то можно предположить наличие некоторого размытия КЯ. Изменения состава КЯ происходят при внутренней диффузии некоторого количества индия из двух граничных слоев КЯ в барьерный слой GaAs, а атомы Ga диффундируют в КЯ. Структура квантовых ям такова, что верхние и нижние ее слои оказываются размытыми и с меньшим содержанием индия, чем более глубокие по отношению к интерфейсу части квантовой ямы. Возможные профили размытия КЯ для образцов 4 и 5 представлены на рис. 2.

На рис. 3 приведены зависимости КДО (рассчитанные и экспе-

ТАБЛИЦА 2. Деформационные параметры квантовых ям $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по данным рентгеновской дифрактометрии (симметричный рефлекс 400).

Номер образца	Деформация в слоях		$\Delta a/a$ в релаксированном периоде СР	$\langle \epsilon \rangle$ в периоде СР, форм. (3)	$\langle \epsilon \rangle$ в периоде СР, определенная по положению О сателлита
	ϵ_1 , InGaAs	ϵ_2 , GaAs			
1	0,023	0,000185	0,0032	0,00529	0,00501
2	0,025	0,000185	0,00419	0,00599	0,00586
3	0,0285	0,000851	0,0045	0,00705	0,00696
4	0,03 0,029	0,00185	0,00444	0,00779	0,00754
5	0,045 0,0322	0,00075	0,00453	0,00834	0,00799

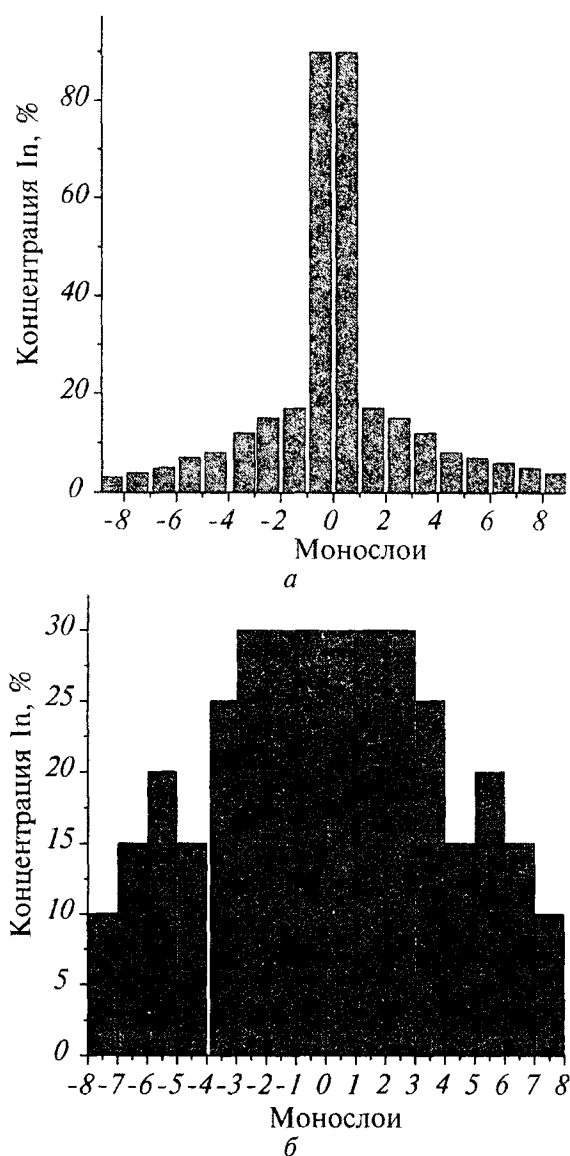


Рис. 2. Профили распределения индия в монослоях КЯ для образцов 5 (а) и 4 (б).

риментальные) от состава твердого раствора (ТР) для рефлекса 311 в геометрии падающего скользящего пучка. Их анализ свидетельствует о возможных релаксационных и диффузионных (индий) процессах в образцах 3–5. Данные о структурах, полученные в процессе подгонки для рефлексов 311, приведены в табл. 3.

ТАБЛИЦА 3. Значения параметров деформации слоев в плоскости интерфейса, полученные в резко-асимметричной геометрии съемки КДО (рефлекс 311).

Номер образца	Деформация в Cap layer GaAs	Деформация, параллельная интерфейсу	Положение нулевого спутника, угл. с
1	0,00035	0,00047	-806
2	0,00023	0,00026	-952
3	0,00031	0,00091	-1092
4	0,00501	0,00067	-1206
5	0,00083	0,00060	-1285

Уширение пиков спутников для 400 и 311 рефлексов может быть вызвано перераспределением индия внутри слоя.

Полученные значения деформации для направления, параллельного гетерогранице, в образцах 3–5 свидетельствуют о значительной релаксации решетки, т.е. о частичном срыве псевдоморфного роста. Это позволяет сделать некоторые заключения о том, что здесь появляется трехмерный рост островковых структур.

Особенность модуляции таких структур состоит в том, что период поддерживается решеткой смачивающих слоев, а высота островков флуктуирует. Сами островки могут быть неупорядоченными в плоскости, на профиле симметричного отражения это не скажется [12, 13]. В условиях малой плотности островков, когда смачивающий слой остается плоским, рассеивающую плотность ρ можно представить как решетку смачивающих слоев ρ_1 , из которой убрали области островков ρ_2 , а затем эти места заполнили материалом островков с другим периодом решетки ρ_3 . В идеальной решетке модулированы и дифракционные пики от островка и от усредненной решетки слоев. Сбоя высоты островков не гасят модуляцию, поскольку идеальный сверхпериод поддерживается решеткой смачивающих слоев. Небольшие сбои сверхпериода подавляют модуляцию пика островка, но не решетки слоев, так как слои в этой модели составляют кристаллическую решетку, а для островков прослойка ближе к аморфной структуре.

Экспериментальные КДО 004 для образцов 4 и 5 свидетельствуют о том, что основной объем квантового слоя состоит из двух областей, отличающихся по составу от заданного. Основной слой ($x = 0,17$) и возникает дополнительный слой с большим составом ($x = 0,9$), вероятно, в виде островковых структур. Об образовании трехмерных островковых структур свидетельствует как уширение пиков спутников низких порядков, так и смещение их огибающей в сторону меньших углов. Ярким примером, свидетельствующим в пользу трехмерной структуры для образца с ($x = 0,35$),

является спектр КДО от многослойной системы для рефлекса 400, представленный на рис. 4.

Рис. 4 наглядно демонстрирует подавление спутной периодической структуры, вызванной островками в области больших отрицательных углов (образец 5). Рассчитанные КДО обеспечивают наилучшее согласие с экспериментальными результатами для процентного содержания In в КЯ, представленного на рис. 2. На-

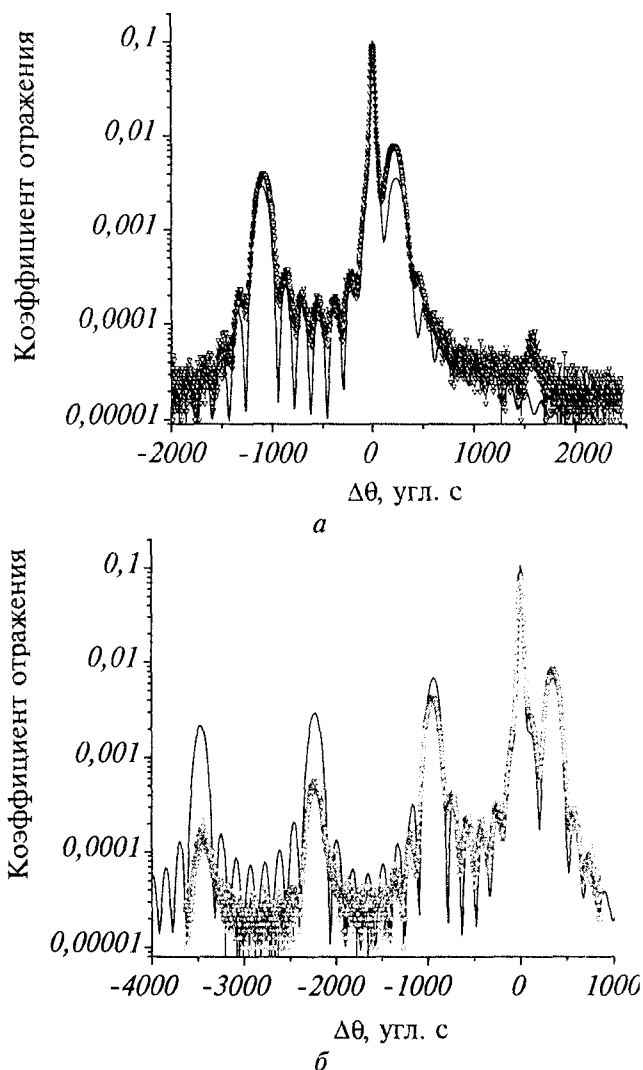


Рис. 3. Рассчитанные (сплошная линия) и экспериментальные (точки) КДО для рефлекса 113 в структурах с содержанием индия: *a* — $x = 0,28$; *б* — $x = 0,25$.

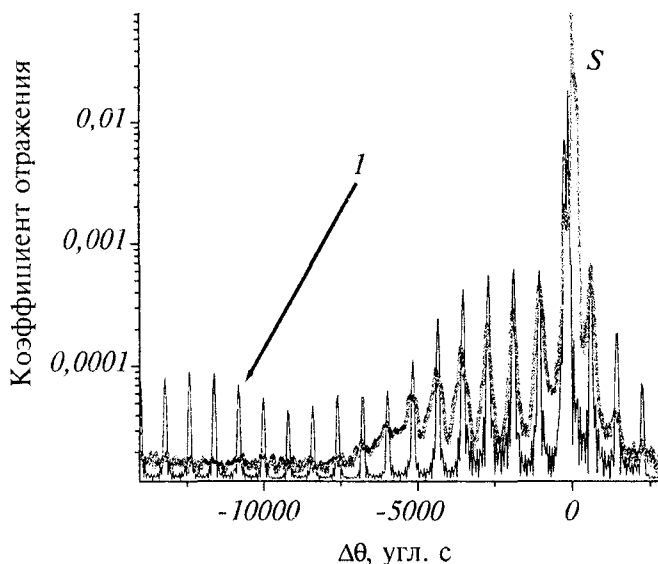


Рис. 4. Рассчитанная (сплошная линия) и экспериментальная (точки) КДО для рефлекса 004 в структуре с содержанием индия $x = 0,35$. Стрелкой с цифрой 1 обозначена область квантовых точек, S — пик от подложки.

конец отметим, что в пользу образования трехмерной островковой структуры свидетельствует и спектр КДО, снятый при сканировании кристалла на удалении от точного положения Брэгга [13]. В этом случае на фоне подавленных когерентных пиков хорошо виден пик, образованный диффузной компонентой от квантовых точек. По его полуширине была проведена оценка размеров КТ вдоль направления интерфейса, которая составила в нашем случае 73,5 нм. Это значение близко по величине к полученным в работе [14] средним размерам квантовых островков.

5. ВЫВОДЫ

Согласие между экспериментальными и теоретически рассчитанными КДО свидетельствует о том, что многослойная структура, созданная на подложке GaAs, имеет хорошее кристаллическое качество, а граница раздела между барьерными слоями GaAs и КЯ $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$ для образцов с содержанием индия 0,2–0,25 — четкая и когерентная. Дальнейшее повышение концентрации индия в твердом растворе приводит к некоторому нарушению псевдоморфного роста и возникновению трехмерных образований в виде островков. При этом произвольное распределение In в системах

такого рода может приводить к увеличению степени локального беспорядка и деформации, что соответственно влияет на подвижность и длину диффузии носителей заряда.

При подгонке теоретических КДО к экспериментальным анализировались наиболее возможные и вероятные ситуации. Для нахождения более полного соответствия между теоретическими и экспериментальными КДО исследования проводились с использованием не только кинематической, но и динамической теории рассеяния рентгеновских лучей. Максимально полного совпадения рассчитанных и экспериментальных КДО можно достичь лишь с учетом инструментальных факторов, что, в принципе, нетрудно, и с включением в теоретическую модель эффектов диффузного рассеяния от микродефектов в слоях и от шероховатостей межслойных границ [15].

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo et al., *IEEE J. Quantum Electron.*, **36**: 556 (2000).
2. H. Li, Q. Zhuang, Z. Wang, and T. Daniels-Race, *Appl. Phys. Lett.*, **87**: 188 (2000).
3. L. Brussaferi, S. Sanguinatti, and E. Grilli, *Appl. Phys. Lett.*, **69**: 3354 (1996).
4. L. Chu, A. Zrenner, G. Bohm, and G. Abstraiter, *Appl. Phys. Lett.*, **76**: 1944 (2000).
5. V. Holy, U. Pietch, and T. Baumbach, *High-Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers* (Berlin: Springer: 1998).
6. Q. D. Zhuang, J. M. Li, Y. P. Zeng et al., *J. Cryst. Growth*, **200**: 375 (1999).
7. I. Kegel, T. H. Metzger, A. Lorke et al., *Phys. Rev. Lett.*, **85**, No. 8: 1694 (2000).
8. A. Krost, J. Blasing, F. Heinrichsdorf, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.*, **75**, No. 19: 2957 (1999).
9. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов и др., *Кристаллография*, **42**, № 3: 514 (1997).
10. В. И. Пунегов, *ФТТ*, **37**, № 4: 1134 (1995).
11. I. K. Shuller, *Phys. Rev. Lett.*, **44**, No. 24: 1597 (1980).
12. Ю. Н. Дроздов, С. А. Гусев, Е. Н. Садова и др., *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, № 2: 67 (2003).
13. В. И. Пунегов, *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, № 2: 21 (2003).
14. K. Zhang, Ch. Heyn, and W. Hansen, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, No. 9: 1295 (2000).
15. В. П. Кладько, Л. И. Даценко, В. Ф. Мачулин, В. Б. Молодкин, *Металлофиз. и новейшие технол.*, **25**, № 5: 547 (2003).