

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ ФІЗИКИ НАПІВПРОВІДНИКІВ ім. В.Є. ЛАШКАРЬОВА**

УДК: 539.213; 539.23+621.793.79; 539.26

Слободян Микола Васильович



**ВПЛИВ ТРИВИМІРНОГО ВПОРЯДКУВАННЯ ТА ДЕФОРМАЦІЙ
НА ДИФРАКЦІЮ Х-ПРОМЕНІВ
В РЕАЛЬНИХ БАГАТОШАРОВИХ СТРУКТУРАХ**

01.04.07 – фізика твердого тіла

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Київ – 2009

Дисертацією є рукопис
Робота виконана в Інституті фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова Національної Академії Наук України

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, професор
Кладько Василь Петрович,
Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова
НАН України (м. Київ), завідувач відділом

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор
Раранський Микола Дмитрович,
Чернівецький національний університет
ім. Ю. Федьковича, завідувач кафедри фізики твердого
тіла

доктор фізико-математичних наук, професор
Кисловський Євген Миколайович,
Інституту металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН Украї-
ни (м. Київ), завідувач лабораторії

Захист відбудеться 20 лютого 2009 р. о 14¹⁵ годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 26.199.01 при Інституті фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України за адресою: 03028, м. Київ, пр. Науки, 41.

З дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Інституту фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України (м. Київ, пр. Науки, 45), а також на сайті відділу дифракційних досліджень структури напівпровідників:

<http://www.x-ray.net.ua/print/thesis/>.

Автореферат розісланий 19 січня 2009 р.

Вчений секретар

Спеціалізованої вченої ради Д 26.199.01
кандидат фізико-математичних наук



О.Б. Охріменко

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми

В останні роки спостерігається значний інтерес до отримання самоорганізованих наноструктурних елементів (квантових точок (КТ), квантових ниток (КН) та їх варіацій) на основі сполук A^3B^5 на напівпровідникових підкладках епітаксійними методами росту, які є найбільш прийнятною та контрольованою технологією, що застосовується для вирощування нанорозмірних дво-, одно- та нульвимірних гетероструктур [1]. Прототипи новітніх оптоелектронних приладів, в яких використовуються КТ, продемонстрували можливість роботи при нижчих порогових густинах струмів, кращу оптичну ефективність, кращу термостабільність у порівнянні із аналогами, виготовленими з використанням квантових ям [2]. Однак, до теперішнього часу не досягнуто теоретично передбачених значень параметрів приладів на основі наноструктур. Залишається багато невирішених питань, що стосуються механізмів росту, хімічного складу, форми, процесів латерального та вертикального впорядкування самоіндукованих КТ і КН, в тому числі для практично важливих систем Ge/Si та (In,Ga)As/GaAs.

Вертикально-корельоване впорядкування КТ в багатошарових гетероструктурах можна реалізувати за рахунок напружено-деформаційного стану розмежовуючих шарів, спричиненого КТ у попередніх шарах. В той же час латеральне впорядкування КТ (в площині гетеромежі), а тим більше утворення одновимірних ланцюгів або поверхневої впорядкованої 2D-сітки залишається на сьогодні найбільш актуальною задачею.

Післяростовий швидкий температурний відпал (ШТВ) є простим і найкоротшим шляхом модифікації профілю і ширини енергетичної структури зон наноелектронних приладів. Як правило, оптимальна ШТВ обробка КТ та КН може сприяти зсуву піку фотолюмінесценції у голубу область та зменшенню його півширини. Цей ефект ШТВ зумовлений процесами дифузійного переміщення КТ(КН) із матеріалом бар'єрів (розмежовуючих шарів), що в багатошарових структурах проявляється у зміні форми, розмірів, складу та деформацій в наноструктурних елементах [3]. Переважна більшість робіт, які опубліковані в останні роки за даною тематикою присвячені оптичним дослідженням впливу ШТВ, а питання особливостей структурної перебудови в багатошарових структурах з КТ (КН) залишаються відкритими.

Фізичні властивості та подальше застосування приладів визначаються якістю кристалічної структури матеріалів і характером розподілених в їх об'ємі дефектів. Найбільш ефективним, неруйнуючим і експресним способом дослідження кристалічних гетероструктур, включаючи нанорозмірні шари (квантові ями), є метод високороздільної X-дифрактометрії в різних режимах зйомки (аналіз кривих гойдання та вимірювання й аналіз карт розподілу розсіяної інтенсивності в оберненому просторі).

Стрімкий розвиток методів високороздільної X-дифрактометрії і використання нових джерел синхротронного випромінювання супроводжується активним розвитком

ком теорій дифракції X-променів на наноструктурах різного ступеня гетерогенності та впорядкованості. Оскільки найбільш передові технології не дозволяють створювати структури з ідеальною кристалічною ґраткою, аналіз дифракційної картинки вимагає врахування когерентного і дифузного розсіювання. Когерентний канал розсіювання визначається станом „середньої” (напруженої) кристалічної ґратки. Формування ж дифузного поля розсіювання відбувається в результаті взаємодії X-випромінювання з дефектами кристалічної ґратки, які завжди присутні в реальних кристалах.

Безпосередня взаємодія X-випромінювання з речовиною супроводжується формуванням різного роду дифракційних процесів, за які відповідають як когерентна, так і дифузна складові X-променевого поля. Отже, кутовий розподіл коефіцієнта дифракційного відбиття і розподіл інтенсивності на двовимірних картах оберненого простору містять важливу інформацію про структурні характеристики кристалічних наноб’єктів. Тому їх аналіз та інтерпретація також є актуальним завданням даної роботи.

Зв’язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дисертаційна робота відповідає основним напрямкам наукової діяльності Інституту фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України, і виконана у відповідності до тем:

1. „Комплексні структурні та морфологічні дослідження гетероепітаксійних (у тому числі нанорозмірних) систем на основі напівпровідників IV групи та сполук A^3B^5 і A^2B^6 ” (№ державної реєстрації 0103U000380); – (виконавець).
2. Науково-технічна програма “Розробка науково-технічних методів, засобів і автоматизованих систем контролю параметрів напівпровідникових матеріалів, структур і приладів”. Тема „Сертифікація”, проект „Рентгеноспектральна методика і апаратура для контролю хімічного складу в ході технологічного процесу” (№ державної реєстрації 0197U008669); – (виконавець).
3. Цільова комплексна програма фундаментальних досліджень „Наносистеми, наноматеріали та нанотехнології” (№ державної реєстрації 0103U006315); – (виконавець).

Мета і завдання дослідження.

Викладені вище тенденції у розвитку технології нанорозмірних структур та коло актуальних фундаментальних і прикладних завдань, які на сьогодні вимагають вирішення, визначили предмет та мету наших досліджень.

Метою дисертаційної роботи є подальший розвиток методик дифракційного аналізу складних структур для визначення фізичних механізмів відповідальних за процеси релаксації деформацій, динаміку зміни просторового впорядкування масивів квантових точок в багаточарових наноструктурах і встановлення оптимальних

режимів росту і термообробок, які забезпечують отримання найбільш однорідного впорядкування квантових точок заданого розміру, форми та складу.

Для досягнення поставленої мети, вирішувалися наступні **наукові завдання**:

- розробка експериментальних методик дослідження параметрів просторової ґратки квантових точок з карт розподілу інтенсивності дифрагованих X-променів в оберненому просторі та проведення комплексу досліджень структурних та фізичних властивостей багат шарових структур (БШС);
- розробка і створення методів моделювання карт оберненого простору для латерально періодичних нанооб'єктів, а також підходів до розрахунку спектрів;
- дослідження механізму початкової стадії переходу від пошарового росту плівки до утворення тривимірних (3D) острівців, зокрема, залежності 2D-3D переходу від різних факторів, що впливають на процес самоорганізованого формування InGaAs острівців (температури росту, швидкості осадження, компонентного складу, орієнтації підкладки). Встановлення ролі поверхневої сегрегації індію в структурних та композиційних змінах і спонтанній латеральній модуляції складу;
- дослідження впливу зовнішніх чинників (температура росту, температура відпалу, молекулярний потік арсену) на деформаційний стан багат шарової системи та просторове впорядкування КТ;
- встановлення взаємозв'язку між макродеформацією багат шарових структур (кривизною системи) та мікродеформаційними параметрами і геометричними характеристиками та його впливу на дифракційну картину.

Об'єкт дослідження – структури з одиничними квантовими ямами та багат шарові структури InGaAs/GaAs, вирощені методом молекулярно-променевої епітаксії на напівізолюючих підкладках GaAs (001) при різних температурах підкладки, молекулярних потоках миш'яку, вмісті індію.

Предмет дослідження – фізичні особливості дифракції X-променів в складних багат шарових структурах з планарним (впорядкованим та розупорядкованим) розподілом нанооб'єктів, механізми структурної релаксації деформацій та фізичні процеси формування тривимірних впорядкованих масивів квантових точок при змінах технологічних параметрів епітаксійного росту та післяростових температурних обробок.

Методи дослідження – комплекс експериментальних та аналітичних методів, який включає в себе високороздільну X-променеву дифрактометрію (ВРХД), картографування оберненого простору навколо вузлів оберненої ґратки, обчислювальні методи та комп'ютерне моделювання.

Наукова новизна одержаних результатів.

В результаті дослідження *вперше* отримані та узагальнені наступні наукові результати:

- встановлено і пояснено механізм початкової стадії переходу від пошарового росту плівки до утворення тривимірних (3D) острівців, який визначається процесами поступового самоорганізованого формування InGaAs острівців на латеральних областях з модульованим складом індію, вилаштованих вздовж кристалографічного напрямку [1-10].
- встановлено і дано пояснення ефекту розщеплення когерентних сателітів і нахилу латеральних сателітів на дифракційних картинах від БШС з КТ, яке полягає в прямому і похилому (вздовж кристалографічного напрямку [110]) наслідкуванні КТ при рості структур та зміною співвідношення складу в різних областях структур;
- запропоновано методику реконструкції просторової ґратки квантових точок з експериментальних карт розподілу інтенсивності в оберненому просторі, яка полягає в аналізі поведінки дифракційних максимумів при азимутальній зміні площини дифракції для симетричних рефлексів;
- експериментально встановлено і пояснено природу зміни періоду багат шарової структури після ШТВ, яка обумовлена впливом макрокривизни на зсуви положень піків сателітної структури когерентної НГ. В результаті проведених досліджень була встановлена область температурної стабільності структурних характеристик БШС.

Практичне значення одержаних результатів. Проведені комплексні Х-променеві дослідження динаміки формування наноструктурних елементів, трансформації їх планарного та вертикального впорядкування при зміні топології структур і швидкому температурному відпалі дозволили *вперше* визначити основні фізичні механізми та їх конкурентний вклад, як у формування надґраткових (НГ) напівпровідникових наноструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(100)$ з квантовими точками з наперед заданими розмірами і розташуванням, так і їх післяростового коригування.

На основі отриманих результатів встановлено оптимальні технологічні параметри вирощування зазначених наноструктур, які є перспективними для створення на їх основі новітніх оптоелектронних приладів з покращеними параметрами. Результати досліджень можуть бути використані при відпрацюванні вітчизняних технологій виробництва елементної бази наноелектроніки, зокрема при створенні ефективних напівпровідникових лазерів на базі сполук A^3B^5 .

Особистий внесок здобувача. У всіх опублікованих працях [1-20], особистий внесок дисертанта полягає у проведенні високороздільних експериментальних вимірювань, розрахунку параметрів багат шарових структур, таких як товщини шарів (період надгратки), механічних напруг. Здобувач також приймав участь у моделюванні дифракційних спектрів [2,3,6,14,19,20], розробці програмного забезпечення [7,15] та розрахунках карт оберненого простору для латеральних структур в роботах [1,4,5,7-14,16-19]. Окрім обробки отриманих результатів, в усіх роботах дисертант приймав активну участь у аналізі та інтерпретації результатів досліджень, написанні статей.

Апробація результатів дисертації. Основні результати досліджень, що викладені у дисертаційній роботі, доповідались та обговорювались на наукових конференціях: International meeting on Clusters and nanostructured materials (CNM'2006) (Uzhgorod-'Karpaty', Ukraine). – 9-12 October, 2006; 3-ій Міжнародний науковий семінар "Современные методы анализа дифракционных данных (топография, дифрактометрия, электронная микроскопия)" (Росія, В. Новгород 23-26.05.06); The Sixth International Conference on Low Dimensional Structures and Devices (The Archipelago of San Andres, Colombia). – 15-20 April, 2007; XI International conference Physics and Technology of Thin Films and Nanosystems (Ivano-Frankivsk, Ukraine). – 7-12 May, 2007; Semiconducting & Insulating Materials Conference, SIMC XIV, University of Arkansas (Fayetteville, AR, USA). – May 15-20, 2007; Конференції „Нанорозмірні системи. Будова-властивості-технології” (Київ, Україна). – 21-23 листопада, 2007; 8th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (ХТОР-2006) (Baden-Baden/Karlsruhe, Germany, 19-22. 09. 2006), 9th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (ХТОР-2008) (Linz, Austria, 15-19. 09. 2008).

Публікації. За матеріалами дисертації опубліковано 20 наукових праць, з яких 8 статей та 12 тез доповідей на конференціях. Список публікацій наведено в кінці автореферату.

Структура дисертації. Дисертаційна робота складається із вступу, літературного огляду з теми дослідження (розділ 1), трьох оригінальних розділів, які присвячені основним результатам роботи, висновків та списку цитованої літератури з 171 найменування. Дисертація викладена на 140 сторінках тексту, і містить 47 рисунків та 7 таблиць.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми дисертаційної роботи, її зв'язок з науковими програмами та темами, сформульовані мета та основні завдання роботи, її наукову новизну, практичне значення отриманих результатів, наведено дані про особистий внесок дисертанта, а також відомості про апробацію роботи та публікації.

У **першому розділі** представлено аналітичний огляд праць, за темою дисертаційної роботи. Розглянуто основні методи аналізу структурних параметрів багат шарових структур з карт розподілу інтенсивності в оберненому просторі, а також основні принципи та методи високороздільної X-дифрактометрії. Проведено також науковий огляд та аналіз робіт по дослідженнях впорядкування і деформаційного стану багат шарових періодичних структур.

На основі приведених даних, сформульовано переваги вибору методик дослідження багат шарових структур, мета та основні задачі досліджень.

Другий розділ присвячений опису та обґрунтуванню експериментальних методів досліджень. Наведено комплекс методів характеристики структур: X-променевої дифракційні методи - ВРХД (визначення складу, параметра ґратки, деформацій), картографування оберненого простору (структура епішарів, характеристика інтерфейсів структур, параметрів КТ, ступеня релаксації структур).

Дослідження X-променевого розсіяння від малих об'єктів накладає строгі умови на проведення експерименту. В рамках даної роботи усі дослідження проводились ангулярно-дисперсійними методами, тобто шляхом перебору напрямків падаючого та розсіяного променів та реєстрації розсіяної інтенсивності. Окреслено основні вимоги до експерименту та проаналізовано можливості різних оптичних схем дифракції. Проведено аналіз існуючих і описано оригінальні методи розрахунку дифракційних спектрів і КОП для латерально-періодичних структур.

Описано розроблену програму XVis для демонстрації побудови оберненого простору, зв'язку між реальним і оберненим простором через дифракційні явища, різних методів сканування оберненого простору, областей доступності оберненого простору для компланарної та некомпланарної схем дифракції для обох трансмісійної та відбивної геометрії, N-променевих дифракційних явищ. Вперше на реальних двошарових структурах продемонстровано всі ці моменти.

Третій розділ присвячено дослідженню структурних особливостей нанорозмірних БШС, отриманих при різних умовах росту.

Проаналізовано експериментальні криві дифракційного відбиття (КДВ) від $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ надґраток з різним вмістом індію (0.20-0.35). Показано, що багат шарові структури мають гарну кристалічну якість, а границя розділу між бар'єрними шарами GaAs та КЯ з концентрацією індію 0.20-0.25 є чіткою та когерентною. Встановлено, що підвищення концентрації індію в твердому розчині призводить до виникнення латеральних модуляцій складу з подальшим зародженням на них тривимірних

утворень у вигляді острівців. При цьому формування латеральних модуляцій складу відбувається в строго визначених кристалографічних напрямках $[1-10]$, що викликано анізотропією в розподілі пружних постійних та поверхневих зв'язків для напрямків $[110]$ та $[1-10]$ в структурі цинкової обманки. Ці модуляції складу і задають латеральне впорядкування утворених острівців у визначених напрямках, в нашому випадку вздовж $[110]$, з періодичністю латеральних модуляцій. В напрямку $[1-10]$ це впорядкування при малих концентраціях індію незначне, про що свідчать мапи розподілу дифузної інтенсивності в оберненому просторі.

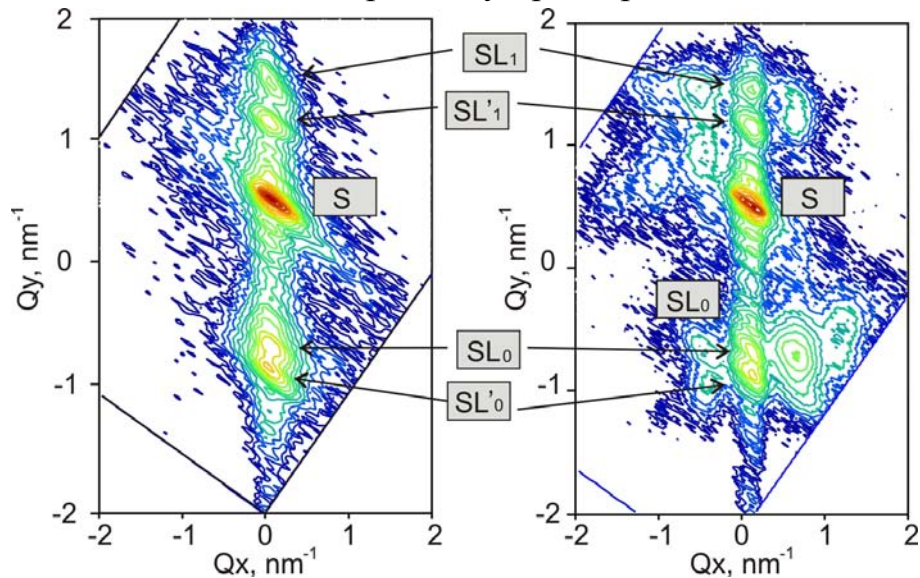


Рис. 1 Експериментальні 224 КОП для 17-періодної НГ з впорядкованою системою КТ, виміряні для двох взаємно перпендикулярних площин дифракції: а) (110) ; б) $(1-10)$.

Цікавим є факт спостереження розщеплення системи когерентних сателітів на КДВ від багат шарової періодичної структури. Застосування високороздільної X-променевої дифрактометрії для зйомки двовимірних карт розподілу розсіяної інтенсивності в оберненому просторі не тільки підтвердило висунуте припущення про існування в зразку двох областей з різними значеннями періоду НГ, але й вказало на те, що в одній з них система КТ є вертикально нахилоною на кут $30.0^\circ \pm 2.5^\circ$ (рис.1) відносно нормалі до поверхні (напрямку росту $[001]$).

Виходячи з отриманих даних (латеральні та вертикальні значення періодів НГ, величина нахилу системи сателітів для різних азимутальних напрямків площини дифракції) вдалося побудувати просторову ґратку з КТ у вузлах. В нашому випадку вона є примітивною триклинною (або сильно спотвореною тетрагональною) з кутами ($\alpha = 87^\circ$, $\beta = 85^\circ$, $\gamma = 83^\circ$). Схематично ця комірка зображена на рис.2. Це вказує на можливість отримання гарної просторово впорядкованої структури КТ прямими методами їх самоорганізації.

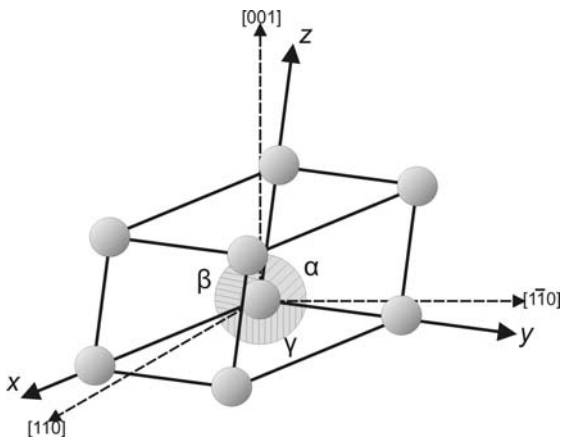


Рис.2. Схематичне зображення тривимірного кристала КТ.

структурах, що в свою чергу дає додаткові інструменти для управління тривимірним самонаправленим впорядкуванням наноструктурних елементів і відповідно, до покращення структурних, електронних та оптичних властивостей наноструктур на основі потрійних сполук InGaAs. Основні параметри, отримані методами ВРХД для вказаних структур, приведені в таблиці.

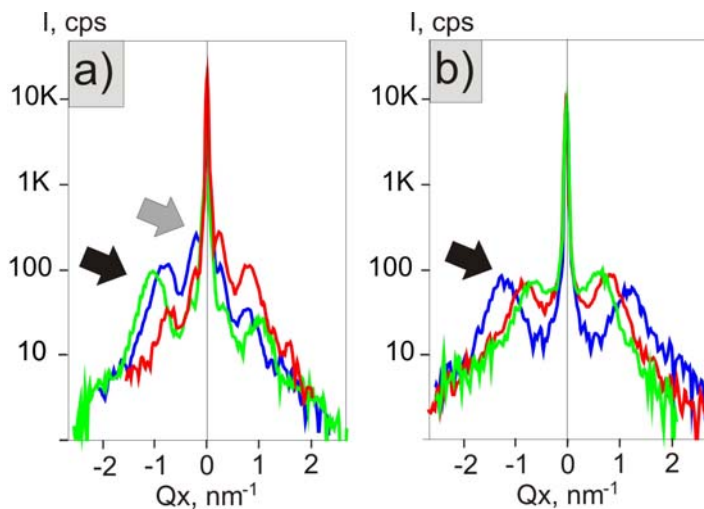


Рис. 3. ω -скани, зняті поблизу нульового сателіта для різних азимутальних напрямків площини дифракції. Зразки вирощено в різних молекулярних потоках миш'яку: а) As_2 ; б) As_4 .

Проведені комплексні X-променеві дифракційні дослідження, підтверджені також оптичними вимірюваннями та дифракцією високоенергетичних електронів, дозволили виявити особливості самонаправленого впорядкування структур із КТ при застосуванні в технологічному процесі росту потоків миш'яку різного молекулярного складу. Відмінності в фізичних механізмах вбудовування адатомів із потоків As_2 та As_4 визначають суттєві відмінності в процесах поверхневої дифузії та формуванні полів пружних деформацій в епітаксійних

На усіх симетричних 004 мапах для зразка з вмістом індію $x = 0.5$, вирощеного в молекулярному потоці As_2 , незалежно від азимутального напрямку площини дифракції існує певна особливість. Поблизу когерентного сателіту від вертикально усередненої НГ окрім латеральних сателітів, що відповідають за впорядкування КТ в шарах, спостерігається також інша пара побічних максимумів, відстань між якими є постійною (перерізи цих мап представлено на рис.3). Аналіз літературних даних вказує на

Таблиця Анізотропія деформацій в шарах GaAs та InGaAs і параметри елементарної комірки КТ (* значення деформацій в кристалографічних напрямках $[110]$ і $[1-10]$)

Потік	Деформація $\varepsilon_z \times 10^{-3}$		Середні значення вертикального періоду БШС d , нм		Параметри елементарної комірки КТ					
	GaAs*	InGaAs*	номінал	Експер.	a , нм	b , нм	c , нм	α , град	β , град.	γ , град.
As_4	1.71/1.48	19.2/17.5	18.6	18.5	84 ± 3	56 ± 3	18.5 ± 0.2	87 ± 2	85 ± 2	83 ± 2
As_2	1.41/1.16	18.4/17.0	18.6	18.8	100 ± 3	66 ± 3	18.8 ± 0.2	82 ± 2	79 ± 2	87 ± 2

наявність у НГ корельованої системи дислокацій невідповідності, які з'являються внаслідок великої невідповідності між шарами $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ та GaAs матрицею. Їх кореляція зумовлюється кінетичними (дія скінченної кількості джерел дислокацій) та енергетичними (перерозподіл дислокацій з метою мінімізації пружної енергії) факторами. Такий дифузний розподіл розсіяної інтенсивності X-променів від дислокацій невідповідності характерний для їх малої густини $\rho d \ll 1$, де ρ – густина дислокацій, d – товщина шару з дислокаціями. Збільшення густини дислокацій призводить до зникнення бокових максимумів та уширення основного піку.

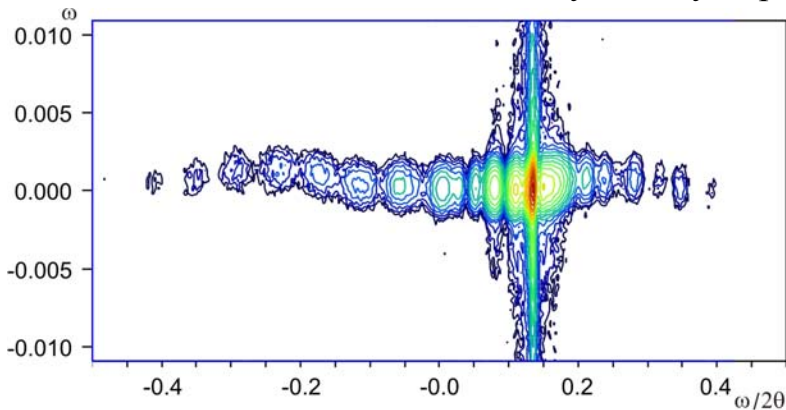


Рис. 4. КОП від БШ структури з InGaAs КЯ

Дано пояснення відомому дифракційному ефекту „wiggles” („змія”), коливному характеру розподілу розсіяної інтенсивності вздовж нормалі до поверхні багатшарової структури (рис. 4). Аналіз карт оберненого простору призводить до наступної моделі деформацій і розорієнтацій в ній.

Відомо, що під час епітаксійного осадження InGaAs-GaAs шарів, процес формування латеральних модуляцій складу істотно змінює характер розподілу пружних деформацій в порівнянні з плоскими шарами. При цьому реалізується анізотропний характер розподілу деформацій відносно кристалографічних напрямків типу $\langle 110 \rangle$, що обумовлює анізотропію структурних параметрів (наприклад, пониження структурної симетрії), яка спостерігається в планарних гетероструктурах. За наявності напруг композиція сплаву варіюватиметься уздовж напрямку хвилястості, тому що, великі атоми переважно збираються, коли ґратки розширені, а менші – коли стиснуті.

Симетрія періодичних структур плоских доменів (модуляцій складу) визначається як симетрією тензора поверхневих натягів, так і симетрією об'ємних пружних модулів підкладки. Головні осі тензорів поверхневих натягів GaAs і InAs – $[1\bar{1}0]$ і $[110]$, а об'ємні пружні властивості матеріалів визначаються напрямками осей найлегшого стиску $[100]$ і $[010]$. Таким чином, є перехід від орієнтації пружних доменів при субмоношаровому покритті в напрямку $[1\bar{1}0]$, до орієнтації за напрямками $[100]$ і $[010]$ при покритті 1.0–1.5 МШ.

Цей перехід можна інтерпретувати як наслідок зростання внеску розузгодження параметрів ґраток в полі пружних деформацій у порівнянні з внеском, обумовленим стрибком тензора поверхневих натягів на границі двох фаз, такий ріст пов'язаний із збільшенням об'єму осадженого InAs . Тобто, відбувається плавне закручення кристалографічних площин ґратки від напрямку $[1\bar{1}0]$ до напрямку $[100]$ в більш близьких до поверхні квантової ями областях, викликане наявністю областей

з різним хімічним складом. Числові розрахунки підтвердили, що область ями не вносить вкладу в асиметричну дифракцію, а визначається в основному прикриваючим шаром.

Четвертий розділ присвячено дослідженню зовнішніх впливів на структурні характеристики нанорозмірних багат шарових структур.

Для досягнення оптимальних умов росту напівпровідникових гетероструктур InGaAs/GaAs з КТ необхідно встановити механізми взаємодії між пружною релаксацією деформацій та ступенем впорядкування утворених острівців. Це потребує інформації про цілий ряд структурних та деформаційних характеристик, зокрема, товщини шарів та період, значення деформації ґратки в шарах та на границях.

Тому, виникло питання встановлення зв'язку між середньою деформацією в шарах структури та її кривизною, а також впливу цієї кривизни на періодичність НГ, визначену з X-променевих вимірювань.

Важливим було встановлення причин зміни періоду НГ з температурою відпау, а також моделювання впливу зміни кривизни та рівня деформацій в періоді НГ на віддаль між когерентними сателітами, на основі отриманих експериментальних даних.

Лінійна залежність середнього параметру надґратки від величини зсуву брегівського максимуму в двошаровому наближенні задається співвідношенням:

$$\Delta a_c / a_c \cong -ctg\theta_B \Delta\theta, \quad (1)$$

де a_c – середній параметр надґратки, $\Delta\theta$ – величина зсуву нульового сателіту відносно дифракційного максимуму від підкладки.

Величину деформації можна визначити через радіус кривизни кристалу:

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{t_0^2}{6t_1} \frac{1 + 6(t_1/t_0)}{R} \frac{1 + \nu}{1 - \nu}, \quad (2)$$

де t_0 – товщина підкладки, t_1 – товщина надґратки, R – вимірний радіус кривизни, ν – коефіцієнт Пуассона.

Таким чином, величина періоду надґраткової системи, виміряна за допомогою X-променевих методів, залежить від радіусу згину зразка (рис.5). Тому при визначенні періоду багат шарової структури з експериментальних КДВ необхідно врахувати поправку на цю кривизну.

Очевидно, що невідповідність технологічно заданих значень періодів НГ та отриманих експериментально, безпосередньо після вирощування, для деяких випадків пояснюється саме цим ефектом. Зміна радіуса кривизни багат шарової структури в процесі термовідпалів корелює з рівнем макродеформації, отриманим різними методами.

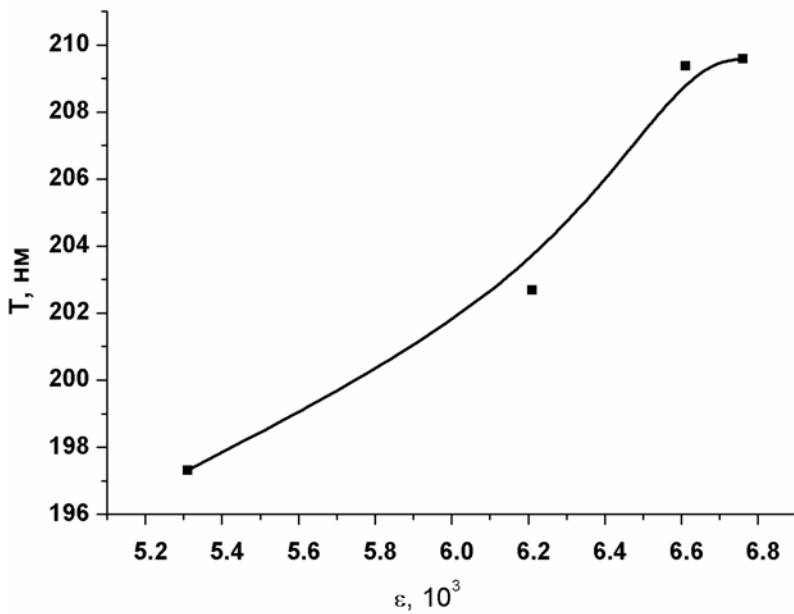


Рис. 5. Залежність величини періоду НГ від деформацій, викликаних кривизною.

сопереносу в інтерфейсних областях між КН і оточуючими їх матеріалом. Це приводить до “виведення” вказаних областей з процесу когерентного розсіяння Х-променів та істотному розширенню інтерференційних максимумів. Ці процеси приводять до появи сильного дифузного фону, який оточує вузли оберненої ґратки GaAs підкладки, який значно більший, ніж для невідпалених зразків. Проаналізована роль дислокацій невідповідності в процесах релаксації шарів структур.

В останніх параграфах цього розділу наведено результати дослідження впливу термічних відпалів на структурні та деформаційні перетворення в БШС, вирощених при різних температурах підкладки. Показана еволюція структурних змін в шарах БШС викликана як ростовою, так і температурою відпалу. Встановлено, що зміна періоду структури при рості температури відпалу пов’язана із зміною “ефективної” товщини 2D шарів внаслідок сильних процесів масопереносу в інтерфейсних областях між КН і оточуючими їх матеріалом.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ

1. Вперше виділено та досліджено особливі умови 2D-3D переходів в багатошарових структурах InGaAs/GaAs та дано пояснення стартовим умовам латерального впорядкування КТ.
2. Експериментально, шляхом Х-променевої дифракційної досліджень, виявлено особливості самонаправленого впорядкування структур з масивами КТ при застосуванні в технологічному процесі росту потоків миш’яку різного молекулярного складу. Відмінності в фізичних механізмах вбудовування адатомів із потоків As_2 та As_4 визначаються процесами поверхневої дифузії та формуванням полів пружних деформацій в епітаксійних структурах.
3. Встановлено і дано пояснення ефекту розщеплення когерентних сателітів і нахилу латеральних сателітів на дифракційних картинах від БШС з КТ, яке полягає в прямому і похилому наслідуванні ланцюгів КТ при рості структур, викликає збоєм в латеральній модуляції складу.
4. Запропоновано модель структурних перетворень БШС під час ШТВ, яка полягає в інтенсифікації процесів масопереносу в інтерфейсних областях.

5. З'ясовано, що величина періоду надграткової системи, виміряна за допомогою X-променеви методів, залежить від радіусу вигину зразка. Тому при визначенні періоду багат шарової структури з експериментальних КДВ необхідно враховувати поправку на цю кривизну. Показано, що невідповідність технологічно заданих значень періодів та отриманих експериментально безпосередньо після вирощування для деяких випадків пояснюється саме цим ефектом. Зміна радіуса кривизни багат шарової структури в процесі термовідпалів корелює з рівнем макродеформації, отриманим різними методами.
6. Встановлено, що із збільшенням температури відпалу змінюється період структури, що пов'язано із зміною "ефективної" товщини 2D шарів внаслідок сильних процесів масопереносу в інтерфейсних областях між КН і оточуючими їх матеріалом (змочуючий шар та GaAs розділюючий шар). Це приводить до "виведення" цих областей з процесу когерентного розсіяння X-променів (зміні періоду структури) та істотному розширенню інтерференційних максимумів. Підтвердженням зробленого висновку служить поява сильного дифузного розсіяння, що оточує вузол оберненої гратки GaAs підкладки, в порівнянні з тим, що спостерігається для вихідних (без відпалу) дротоподібних зразків.
7. Дано пояснення природи коливного характеру інтерференційної картини на картах оберненого простору у напрямі нормалі до (100) поверхні, відоме як "змія" ("wiggles"). Зроблено припущення, що вона викликана дією двох чинників: симетрії власного тензора зовнішньої напруги і симетрії пружного модуля матеріалу підкладки, який приводить до зміни нахилів кристалографічних площин з глибиною як в потенційній ямі, так і в межі бар'єрного шару.
8. Створено програму XVis для демонстрації різних дифракційних явищ, таких як побудова оберненого простору, зв'язок між реальним і оберненим простором через дифракційні явища, різні методи сканування оберненого простору, доступні області оберненого простору для компланарної і некомпланарної схем дифракції для Лауе та Брег-геометрій, N-променеві дифракційні явища, обернений простір для двошарових систем і експериментальні приклади. Всі демонстрації розраховані з використанням реальних структурних параметрів.

Таким чином, проведені комплексні X-променеві та АСМ дослідження динаміки формування наноструктурних елементів, трансформації їх планарного та вертикального впорядкування при зміні топології структур і швидкому температурному відпалі дозволили **вперше** визначити основні фізичні механізми та їх конкурентний внесок, як у формування багат шарових напівпровідникових наноструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(100)$ з квантовими точками та нитками з наперед заданими розмірами і розташуванням, так і їх просторове впорядкування. На основі отриманих результатів

встановлено оптимальні області значень технологічних параметрів вирощування зазначених наноструктур, які є перспективними для створення на їх основі оптоелектронних приладів.

Список цитованої літератури

1. Shchukin V. A. Epitaxy of nanostructures / Shchukin V. A., Ledentsov N. N., Bimberg D. – Berlin : Springer, 2004. – 387 p.
2. Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры / Н. Н. Ледецов, В. М. Устинов, В. А. Щукин [и др.] // Физ. и техн. полупр. – 1998. – Т. 32, № 4. – С. 385–410.
3. Influence of rapid thermal annealing on InAs/InAlAs/InP quantum wires with different InAs deposited thickness / W. Lei, Y.H. Chen, Y.L. Wang [et al.] // Journal of Crystal Growth. – 2005. – V. 284. – P. 20–27.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

- 1*. Investigation of defect structure of InGaAsSb/GaAs quantum wells / L. Borkovska, N. Korsunskaya, V. Kladko [et al.] // Materials science and engineering C. – 2007. – V. 27. – P. 1038–1042.
- 2*. Microstructural aspects of nucleation and growth of (In,Ga)As-GaAs(001) islands with low indium content / V. P. Kladko, V. V. Strelchuk, A. F. Kolomys [et al.] // Journal of Electronic Materials. – 2007. – V. 36, No 12. – P. 1555–1561.
- 3*. Structural anisotropy of InGaAs/GaAs(100) quantum dot chains structures / V. P. Kladko, M.V. Slobodian, V. V. Strelchuk [et al.] // Phys. Stat. Sol. (a) – 2007. – V. 204, No. 8. – P. 2567-2571.
- 4*. Рентгенодифрактометрические исследования деформационного состояния гетероструктур InGaAsSbN/GaAs с квантовыми ямами / В. П. Кладько, Н. В. Слободян, Л. В. Борковская [и др.] // Металлофизика и новейшие технологии. – 2007. – Т. 29, № 10. – С. 1323—1332.
- 5*. Влияние латеральных модуляций состава на зарождение и упорядочение массива квантовых островков в многослойных периодических структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ / В. П. Кладько, В. В. Стрельчук, Н. В. Слободян [и др.] // Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології. – 2007. – Т. 5, вип.3. – С. 729–738.
- 6*. Кладько В. П. Вплив кривизни багатосферних структур на дифракцію Х-променів / В. П. Кладько, М. В. Слободян, В. Ф. Мачулін. // Український фізичний журнал. – 2008. – Т. 53. №2. – С. 167-171.
- 7*. XVis: educational open source program for demonstration of reciprocal space construction and diffraction principles / O. Yefanov, V. Kladko, M. Slobodyan [et al.] // Journal of Applied Crystallography. – 2008. – V. 41. Part 3. – P. 647–652.

- 8*. A new type of structural defects in CdZnSe/ZnSe heterostructures / L. Borkovska, N. Korsunskaya, V. Kladko [et al.] // *Microelectronics Journal*. – 2008. – V. **39**, Issue 3-4. – P. 589–593.
- 9*. Новый подход для анализа анизотропных деформаций в многослойных структурах : Материалы третьего международного научного семинара “Современные методы анализа дифракционных данных (топография, дифрактометрия, электронная микроскопия)” (Великий Новгород, Россия, 22–25 мая 2006 г.) / НовГУ им. Ярослава Мудрого. – 306 с.
- 10*. Исследование латеральных модуляций состава и 2D-3D структурных переходов в многослойных периодических структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ методом высоко-разрешающей рентгеновской дифрактометрии : Материалы третьего международного научного семинара “Современные методы анализа дифракционных данных (топография, дифрактометрия, электронная микроскопия)” (Великий Новгород, Россия, 22–25 мая 2006 г.) / НовГУ им. Ярослава Мудрого. – 306 с.
- 11*. Structural anisotropy and optical properties $\text{InGaAs}/\text{GaAs}(100)$ quantum dot chains structures : Abstracts of 8th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (Baden-Baden/Karlsruhe, Germany, Sept. 19–22 2006). – 212 p.
- 12*. HRXRD investigations of deformation fields $\text{InGaAsSbN}/\text{GaAs}$ heterostructures with quantum well : Abstracts of 8th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (Baden-Baden/Karlsruhe, Germany, Sept. 19–22 2006). – 212 p.
- 13*. HRXRD study of deformation fields and 2D-3D structural transitions in multi-layered periodic structures $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$: Materials of international meeting on Clusters and nanostructured materials CNM'2006 (Uzhgorod-‘Karpaty’, Oct. 9–12 2006) / Ужгородський національний університет. – XLII с + 329 с.
- 14*. Нові підходи в діагностиці нанорозмірних структур : Збірник тез конференції молодих вчених з фізики напівпровідників „Лашкарьовські читання - 2007” (Київ, 25-26 квітня, 2007 р.) / Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова. – К: Відділ оптичних та оптоелектронних реєструючих середовищ Інституту фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України. – 88 с.
- 15*. Високороздільна X-променева діагностика структурної анізотропії багатоядерних $\text{InGaAs}/\text{GaAs}(100)$ структур з ланцюгами квантових точок : Матеріали XI міжнародної конференції „Фізика і технологія тонких плівок та наносистем” (Івано-Франківськ, 7–12 травня 2007) / За заг. ред. заслуженого діяча науки і техніки України, д.х.н., проф. Фреїка Д. М. – Івано-Франківськ: Видавничо-дизайнерський відділ ЦІТ Прикарпатського національного університету імені Василя Стефаника. – 240 с.

- 16*. Thermally induced modification of structural properties in ordered (In,Ga)As/GaAs quantum dots : Abstracts of Semiconducting & Insulating Materials Conference SIMC XIV (Fayetteville, AR, USA, May 15–20 2007) / University of Arkansas. – S1225058.
- 17*. Влияние быстрого термического отжига на структурную перестройку сверхрешеток с массивами квантовых точек : Сборник материалов и программа Первой международной научной школы-семинара «Современные методы анализа дифракционных данных (топография, дифрактометрия, электронная микроскопия)» (Великий Новгород, Россия, 21–25 мая 2007 г.) / НовГУ им. Ярослава Мудрого. – 171 с.
- 18*. Вплив деформацій на тривимірне впорядкування квантових точок в багатосферних структурах : Матеріали конференції „Нанорозмірні системи. Будова-властивості-технології” (Київ, 21–23 лист. 2007 р.) / Ін-т металлофізики ім. Г. В. Курдюмова. – К: ТОВ НВК “Комункомплекс”. – 628 с.
- 19*. Macrodeformation influence on the three-dimensional quantum dots ordering in multilayer structures : Abstracts of 9th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (Linz, Austria, Sept. 15–19 2008) / Johannes Kepler University. – 196 p.
- 20*. Self-organized three-dimensional spatial ordering of quantum dot arrays in InGaAs/GaAs : Abstracts of 9th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging (Linz, Austria, Sept. 15–19 2008) / Johannes Kepler University. – 196 p.

АНОТАЦІЯ

Слободян М.В. Вплив тривимірного впорядкування та деформацій на дифракцію X-променів в реальних багатосферних структурах. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України, Київ, 2009.

Дисертація присвячена дослідженню структури та основних фізичних властивостей БШС InGaAs/GaAs з КТ, в залежності від умов росту та зовнішніх впливів методами високороздільної X-променевої дифрактометрії.

В роботі проведено адаптацію методу картографування оберненого простору навколо вузлів оберненої ґратки для вирішення оберненої задачі визначення складу і пружної деформації в системах з впорядкованим масивом квантових точок.

Вперше було встановлено і пояснено природу зміни періоду багатосферної структури після ШТВ, яка обумовлена впливом макрокривизни на зсуви положень піків сателітної структури когерентної НГ. Встановлена природа чутливості КДВ до макрозгину багатосферної системи, яка полягає в зміщенні сателітів із своїх положень в залежності від кута Брегга.

Встановлено і дано пояснення ефекту розщеплення когерентних сателітів і нахилу латеральних сателітів на дифракційних картинах від БШС з КТ, яке полягає в прямому і похилому наслідуванні КТ(КН) при рості структур. Вперше запропонована методика реконструкції просторової ґратки квантових точок з експериментальних карт розподілу інтенсивності в оберненому просторі.

За допомогою Х-променевої дифракційної досліджень виявлені особливості самонаправленого впорядкування структур із КН при застосуванні в технологічному процесі росту потоків миш'яку різного молекулярного складу. Відмінності в фізичних механізмах вбудовування адатомів із потоків As_2 та As_4 визначають суттєві відмінності в процесах поверхневої дифузії та формуванні полів пружних деформацій в епітаксійних структурах.

Досліджено вплив швидкого термічного відпалу на структурну перебудову масивів КТ в багат шарових структурах InGaAs/GaAs. В результаті проведених досліджень була встановлена область температурної стабільності структурних характеристик БШС і побудована модель температурних трансформацій в структурах. Дано пояснення природі 2D-3D структурних переходів.

Ключові слова: багат шарові структури, високороздільна Х-променева дифрактометрія, 2D-3D структурні переходи, квантові точки, швидкий термічний відпал, карти оберненого простору.

АННОТАЦІЯ

Слободян Н.В. Влияние трехмерного упорядочения и деформаций на дифракцию Х-лучей в реальных многослойных структурах. – Рукопись.

Диссертация на соискание научной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика твердого тела. Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарьова НАН Украины, Киев, 2009.

Диссертация посвящена исследованию структуры и основных физических свойств многослойных InGaAs/GaAs структур с квантовыми точками (КТ) и нитями (КН), в зависимости от условий их роста и внешних влияний, методами высокоразрешающей Х-лучевой дифрактометрии.

В диссертации проведена работа по адаптации метода картографирования обратного пространства вокруг узлов обратной решетки для решения обратной задачи – определения состава, упругой деформации и уровня релаксации в системах с упорядоченным массивом квантовых точек.

Впервые было установлено и объяснено природу изменения периода многослойной структуры после быстрого термического отжига, обусловленной влиянием макрокривизны на сдвиги положений пиков сателлитной структуры когерентной сверхрешетки. Установлено природу чувствительности кривых дифракционного отраже-

ния к макроизгибу многослойной системы, которая заключается в угловом смещении сателлитов из своих положений в зависимости от угла Брэгга.

Установлено и дано объяснение эффекту расщепления когерентных сателлитов и наклона латеральных сателлитов на дифракционных картинах от многослойных систем с КТ, которое заключается в прямом и наклонном наследовании КТ (КН) при росте структур. Впервые предложенная методика реконструкции пространственной решетки квантовых точек из экспериментальных карт распределения интенсивности в обратном пространстве.

С помощью X-лучевых дифракционных исследований обнаружены особенности самоорганизованного упорядочения структур с КН при применении в технологическом процессе роста потоков мышьяка разного молекулярного состава. Отличия в физических механизмах встраивания адатомов из потоков As_2 и As_4 , определяют существенные отличия в процессах поверхностной диффузии и формировании полей упругих деформаций в эпитаксиальных структурах.

Исследовано влияние быстрого термического отжига на структурную перестройку массивов КТ в многослойных структурах InGaAs/GaAs. В результате проведенных исследований была установлена область температурной стабильности структурных характеристик многослойных систем и построена модель температурных трансформаций в этих структурах. Также дано объяснение природе 2D-3D структурных переходов, заключающееся в изменении периода структур, которое связано с изменением “эффективной” толщины 2D слоев вследствие сильных процессов массопереноса в интерфейсных областях между КН и окружающим их материалом (смачивающий слой и GaAs разделяющий слой). Это приводит к “выведению” этих областей из процесса когерентного рассеяния X-лучей (изменению периода структуры) и существенному расширению интерференционных максимумов. Подтверждением этому является и возникновение сильного диффузного рассеяния вокруг узлов обратной решетки GaAs подложки, которое намного сильнее наблюдавшегося для исходных (без отжига) образцов многослойной системы.

Ключевые слова: многослойные структуры, высокоразрешающая дифрактометрия, 2D-3D структурные переходы, квантовые точки, быстрый термический отжиг, карты обратного пространства.

ABSTRACT

Slobodian M.V. Influence of three-dimensional ordering and deformations on X-ray diffraction in real multilayered structures. – Manuscript.

Dissertation for the Ph.D. degree by speciality 01.04.07 – solid state physics.

V. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics of National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, 2009.

The thesis is devoted to the research of the structure and basic physical properties of InGaAs/GaAs multilayers with QDs, depending on the growth conditions and external influences, by means of high-resolution X-ray diffractometry.

The method of reciprocal space mapping was adapted to solve the inverse problem of determination of the composition and elastic deformations in the self-ordered QDs systems.

For the first time the nature of SL period change under rapid thermal treatment was observed and explained. The effect was given by macrobent influence on the angular positions of SL coherent satellites. The nature of reflection curves sensitivity to the macrobent of multilayer system was determined, which lies in the displacements of coherent satellites from their Bragg positions.

The effect of coherent satellites splitting and lateral satellites inclination for the superlattices with quantum dots was observed and explained. It lies in the vertical and inclined inheritance of QDs (QWs) during their growth. For the first time the technique of QDs spatial lattice reconstruction from experimental reciprocal space maps was proposed.

X-ray diffraction measurements revealed the peculiarities of self-directional ordering of QWs under the different As molecular fluxes used in technological processes. The difference of adatoms embedding mechanisms for As₂ and As₄ fluxes determines the considerable difference in the processes of surface diffusion and the formation of the elastic deformation fields in epitaxial structures.

The influence of rapid thermal annealing on the structural reconstruction of QDs arrays in multilayer InGaAs/GaAs structures was investigated. The thermal stability interval of multilayers structural characteristics was determined and the model of thermal transformations inside the structure was built. The nature of 2D-3D structural transitions was explained.

Keywords: multilayered structures, high-resolution X-ray diffractometry, 2D-3D structural transitions, quantum dots, rapid thermal annealing, reciprocal space maps.