

06

## Обнаружение квазипериодических граней $\{11n\}$ , $n = 7-11$ в образцах с Ge/Si квантовыми точками с помощью рентгеновской рефлектометрии скользящего падения

© Л.И. Горай, Н.И. Чхало, Ю.А. Вайнер

Санкт-Петербургский физико-технологический научно-образовательный центр РАН, Санкт-Петербург  
Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург  
Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород  
E-mail: lig@pcgrate.com

Поступило в Редакцию 8 мая 2009 г.

С помощью высокоразрешающей рентгеновской рефлектометрии скользящего падения получены экспериментальные и теоретические данные интенсивности зеркального и диффузного отражения самоорганизующихся структур, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии с однослойными незарожденными и многослойными зарожденными Ge/Si квантовыми точками (КТ). Из положения пиков диффузного рассеяния в прямом пространстве с помощью методики, ранее примененной для исследования In(Ga)As/GaAs КТ, были измерены с точностью  $\pm 0.1^\circ$  углы наклона квазипериодических граней. Обнаруженные в образцах с неупорядоченными Ge/Si КТ грани  $\{11n\}$ ,  $n = 7-11$ , характерные для ямок роста упорядоченных КТ, свидетельствуют об общности моделей образования КТ.

Методы просвечивающей электронной микроскопии, атомно-силовой микроскопии (АСМ) и ближнепольной сканирующей оптической микроскопии широко используются для анализа наноразмерных объектов, но для детальных структурных исследований систем, содержащих квантовые точки (КТ), они имеют определенные недостатки. Интегральным неразрушающим инструментом исследования наноразмерных многослойных структур, в том числе с атомным уровнем шероховатости границ раздела и взаимодиффузии, является рентгеновское излучение. Методы рентгеновской дифрактометрии и рефлектометрии, основанные

на анализе распределения интенсивности зеркальной и диффузной составляющих рентгеновского рассеяния в прямом и обратном пространствах, являются наиболее информативными для анализа гетероструктур, содержащих КТ.

Благодаря независимости от кристаллической структуры образцов и имеющихся в них напряжений методы рентгеновской рефлектометрии являются важнейшими для исследования морфологии границ нанобъектов [1]. С помощью высокоразрешающей рентгеновской рефлектометрии скользящего падения (ВСП) недавно был проведен анализ рентгеновского рассеяния на образцах с мультиплицированными ансамблями КТ, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) в системе In(Ga)As/GaAs [2]. Установлено, что положение экспериментально обнаруженных пиков интенсивности диффузного рассеяния полностью определяется углом наклона  $\alpha$  пирамидальных граней КТ (условие блеска дифракционных решеток), что ранее было предсказано теоретически [3]. Общий подход для определения угла  $\alpha$ , который в среднем может отличаться от соответствующего кристаллографического угла, связан с численным решением обратной задачи рассеяния со строгими граничными условиями и условиями излучения, что является весьма ресурсоемким в коротковолновом диапазоне спектра, даже для двумерных моделей [4]. Поэтому в рентгеновском диапазоне для решения задачи рассеяния используются различные приближения, такие как борновское приближение и борновское приближение деформированной волны, заметно упрощающие решение, но не всегда дающие верные результаты [5]. Проведенное сравнение с результатами моделирования рассеяния на основе строгого метода рассеяния показывает, что простое геометрическое условие  $2\alpha = \theta_{inc} - \theta_{diff}$  или  $2\alpha = 180^\circ - (\theta_{inc} + \theta_{diff})$  позволяет точно определять  $\alpha$  по положению пика интенсивности с углом падения  $\theta_{inc}$  и углом дифракции  $\theta_{diff}$ , форма которого зависит от многих параметров [6]. Таким образом, решение трудоемкой обратной задачи рассеяния по определению  $\alpha$  сводится к применению элементарной формулы. Кроме того, по положению и амплитуде брэгговских пиков определяются величины шероховатости/взаимодиффузии интерфейсов и высота КТ.

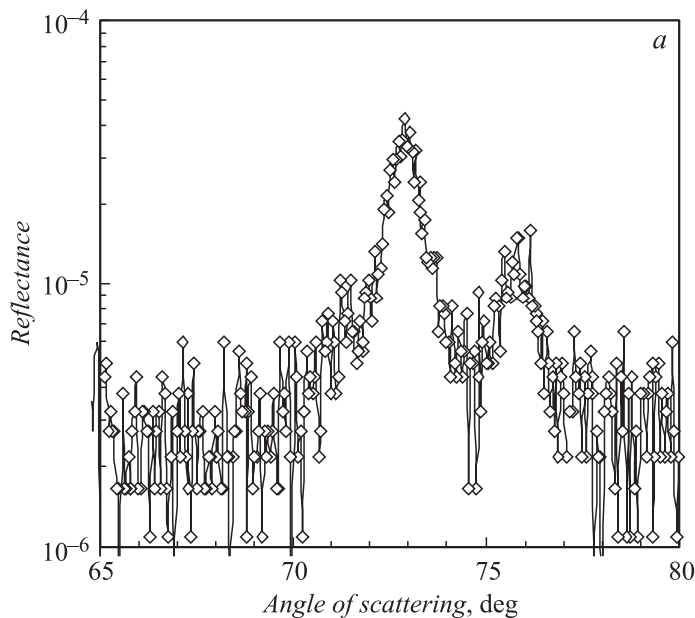
В данной работе по аналогичной методике впервые охарактеризованы МПЭ-структуры с однослойными незарощенными и многослойными зарощенными Ge/Si КТ. Исследуемые образцы с Ge КТ были выращены методами МПЭ на vicинальной поверхности Si (001) на установке

BALZERS UMS 500P [7]. Однослойные образцы № 1 и 2 с Ge КТ без покрывающего слоя были получены путем осаждения Ge при температуре  $700^{\circ}\text{C}$  на предосажденный напряженный SiGe слой с 10%- и 20%-ным содержанием Ge, выращенный на буферном 100-nm слое Si. Многослойный образец № 3 с КТ типа dome и 20 слоями Ge/Si сверхрешетки с периодом 30 nm был выращен при  $650^{\circ}\text{C}$  на 5-nm подслое Si и имел такой же закрывающий слой. Многослойный образец № 4 с rugamid и hut типами КТ и 20 слоями Ge/Si сверхрешетки с периодом 11.7 nm был выращен при  $550^{\circ}\text{C}$  на 50-nm подслое Si с таким же закрывающим слоем.

Исследования морфологии поверхности подложек и выращенных структур были выполнены с помощью АСМ. АСМ использовалась для исследования размеров и поверхностной плотности самоорганизующихся наностроек, а также для определения шероховатости поверхности подложек и буферных слоев Si. АСМ измерения проводились *ex situ* на воздухе, в полуконтактном режиме на микроскопах Solver Pro и Nanoscope III.

Измерения зеркального и диффузного рассеяния методом ВСПР проводились на рефлектометре Philips Expert Pro с четырехкристалльным Ge монохроматором в режимах  $\theta/2\theta$  сканирования при съемке кривых качения,  $\theta$  и  $2\theta$  — при изучении индикатрис диффузного рассеяния. Измерения проводились на длине волны  $\lambda \text{ CuK}_{\alpha 1} = 0.154 \text{ nm}$ . В качестве детектора использовался газоразрядный счетчик с предельно низкими, порядка 0.1 quantum/s собственными шумами, на входе которого устанавливалась регулируемая щель [2]. Расстояние до образца равнялось 320 mm, ширина щели на кристалл-монокроматоре для получения интенсивного сигнала при измерении рассеянного света составляла 100  $\mu\text{m}$ , высота — 1–5 mm, шаг сканирования выбирался в диапазоне  $0.001$ – $0.005^{\circ}$  в зависимости от необходимого разрешения при угловой расходимости пучка  $0.003^{\circ}$ . Щель на детекторе варьировалась в диапазоне от 0.1 до 3 mm.

Для проведения расчетов на основе строгой электромагнитной теории в работе использовался модифицированный метод граничных интегральных уравнений (МИМ) [8,9], оказавшийся весьма точным и достаточно быстро сходящимся в области больших отношений характерного периода  $D$  и высоты  $h$  КТ к длине волны  $\lambda$  ( $\sim 10^3$  и  $\sim 10^2$ ) [3,5]. Ошибка проводимых вычислений, оцениваемая из энергетического баланса, составляла величину  $\sim 10^{-6}$  при использовании 400–1600



**Рис. 1.** Интенсивности диффузного рассеяния образца № 1 при скользящем падении излучения под углом  $0.392^\circ$ : *a* — измерение при разориентации образца на  $-5^\circ$  относительно  $[110]$  или  $[1-10]$ ; *b* — расчет.

точек коллокации на каждой и границ моделируемых структур. Время вычисления кривой интенсивности рассеяния с одним статистическим набором параметров на рабочей станции с двумя процессорами Quad-Core Intel® Xeon® 5355 с тактовой частотой 2.66 GHz, тактовой частотой шины 1333 MHz и 16 Gbyte ОЗУ составляет около 2 min при работе под управлением Windows Vista® Ultimate 64-bit и использованием восьмикратного распараллеливания.

Углы наклона граней островков (впадин) были определены с высокой точностью ( $\pm 0.1^\circ$ ) из измеренных положений пиков диффузного рассеяния в прямом пространстве, в основном по преимущественным направлениям квазипериодичности  $[110]$  и  $[1-10]$ . Полученные с помощью ВСРП типичные экспериментальные и теоретические кривые интенсивности диффузного рассеяния представлены на рис. 1 и 2 для

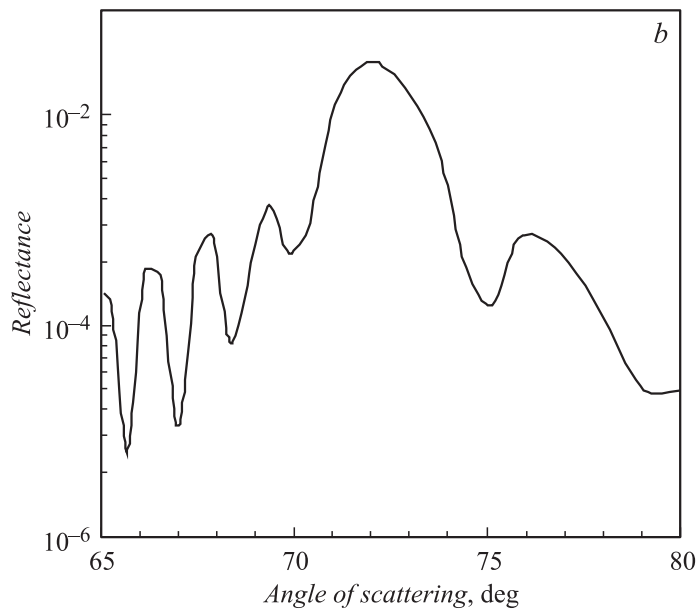
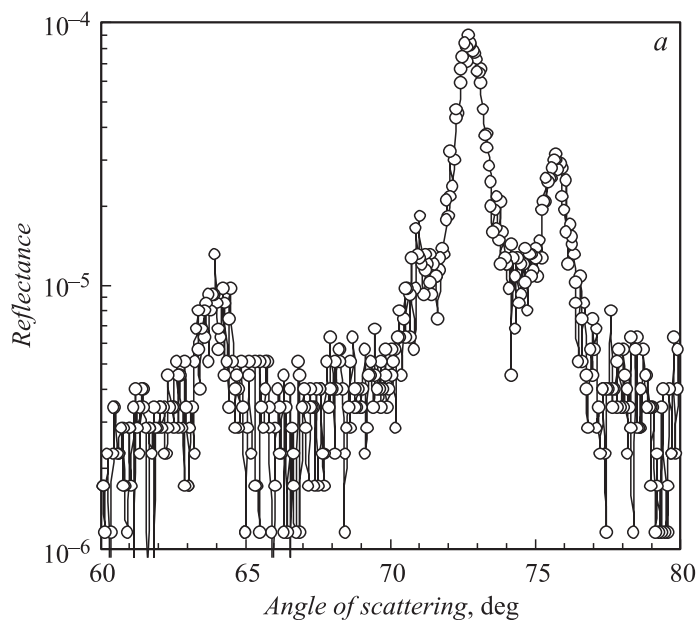


Рис. 1 (продолжение).

структур № 1 и 2. Положение и форма основных пиков, соответствующих отражению от граней  $\{11n\}$ ,  $n = 7-11$ , хорошо согласуются для обоих образцов, в то время как для сравнения их величин необходимо сведение трехмерной задачи рассеяния к двумерной [6].

Обнаруженные в образцах отражения от граней  $\{11n\}$ ,  $n = 7-11$ , свидетельствуют, скорее всего, о наличии ямок роста, имеющих структуру перевернутых пирамид. Наличие подобных граней также возможно в куполообразных КТ [10,11]. Отражения от  $\{119\}$  (кристаллографический угол  $8.9^\circ$ ) мы уверенно наблюдали как в образцах с одним слоем, так и в многослойных образцах с закрывающим слоем, как соответствующих структуре КТ типа rugarid и hut, так и типа dome. С ростом угла скольжения максимумы пиков интенсивности смещаются в сторону больших углов рассеяния, что соответствует теории. Наличие ямок перед основанием некоторых КТ также наблюдалось в исследуемых образцах с помощью АСМ, однако определение их



**Рис. 2.** Интенсивности диффузного рассеяния образца № 2 при скользящем падении излучения под углом  $0.304^\circ$ : *a* — измерение при разориентации образца на  $+5^\circ$  относительно  $[110]$  или  $[1-10]$ ; *b* — расчет.

морфологии требует дальнейшего изучения. Обнаружение характерных для упорядоченных КТ ростовых ямок с гранями  $\{11n\}$ ,  $n = 7-11$  в образцах с неупорядоченными Ge/Si КТ говорит об общности моделей образования КТ.

Было обнаружено и исследовано небольшое (несколько градусов) отклонение средних нормалей к отражающим граням относительно  $[110]$  и  $[1-10]$ , значительно влияющее на изменение интенсивности пикового рассеяния. Экспериментальные ВСПР исследования граней ямок и КТ свидетельствуют: 1) дальний порядок в распределении самоорганизующихся КТ в различных образцах, выращенных на вицинальных (001) подложках с буферным слоем Si практически отсутствует в направлениях  $[100]$  или  $[010]$ ; 2) хорошо выраженной плоскостности соответствующих граней КТ может не быть [1]. С помощью полученных

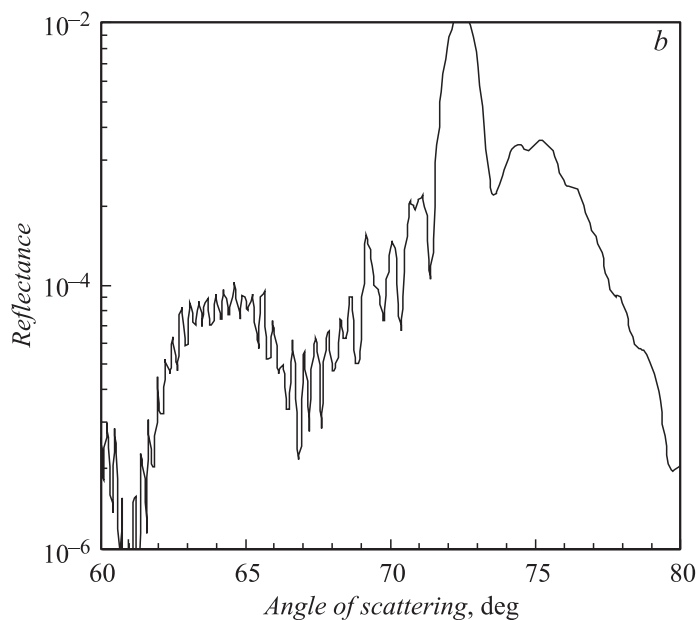


Рис. 2 (продолжение).

данных ВСРР и АСМ модель на основе МИМ была улучшена с учетом генерации правдоподобных профилей границ со случайной шероховатостью.

Таким образом, традиционное использование ВСРР для определения параметров слоев и несовершенства границ расширено в предложенном способе до определения геометрии островков, ямок и КТ, выращиваемых в различных системах эпитаксиальными методами. Для получения высокоинтенсивного диффузного отражения от граней Ge/Si КТ по направлениям характеристики, в том числе [100] или [010], они должны выращиваться на периодических масках. Чтобы форма КТ не становилась линзообразной, следует понижать температуру нанесения закрывающего слоя.

Авторы благодарны А.В. Новикову (ИФМ, РАН) за предоставленные образцы и полезные обсуждения.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 06-02-17331).

## Список литературы

- [1] *Stangl J., Holy V., Bauer G.* // Rev. Mod. Phys. 2004. V. 76. N 3. P. 725–783.
- [2] *Горай Л.И., Чхало Н.И., Цырлин Г.Э.* // ЖТФ. 2009. Т. 79. В. 4. С. 117–124.
- [3] *Goray L.I., Cirilin G.E., Alvers E., Samsonenko Yu.B., Tonkih A.A., Polyakov N.K., Egorov V.A.* // Proc. 15th Int. Symp. Nanostructure: Physics and Technology. Novosibirsk, 2007. P. 118–119.
- [4] *Gross H., Rathsfeld A.* // Waves Random and Complex Media. 2008. V. 18. N 1. P. 129–149.
- [5] *Goray L.I.* // Proc. SPIE. 2009. V. 7390. P. 73900V.
- [6] *Goray L.I.* // Proc. SPIE. 2007. V. 6617. P. 661719.
- [7] *Vostokov Z.F., Drozdov Yu.N., Lobanov D.N., Novikov A.V., Shaleev M.V., Yablonskii A.N., Krasilnik Z.F., Ankudinov A.N., Dunaevskii M.S., Titkov A.N., Lytvyn P., Yukhymchuk V.U., Valakh M.Ya.* // Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and Frontiers /B.A. Joyce et al. eds. Netherlands: Springer, 2005. P. 333–351.
- [8] *Goray L.I.* // J. Appl. Phys. 2006. V. 100. P. 094901.
- [9] *Goray L.I.* // Nucl. Inst. and Meth. A. 2005. V. 536. N 1–2. P. 211–221.
- [10] *Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В., Соколов Л.В., Никуфоров А.И., Якимов А.И., Фойхтлендер Б.* // ФТП. 2000. Т. 34. В. 11. С. 1281–1299.
- [11] *Bauer G., Schaffler F.* // Physica Status Solidi (a). 2006. V. 203. N 14. P. 3496–3505.