

## Фазовые соотношения и форма кривых рентгеновской дифракции от гетероструктур с квантовыми ямами

М. А. Чуев<sup>1)</sup>, Э. М. Пашаев\*, М. В. Ковальчук\*, В. В. Квардаков\*

Физико-технологический институт РАН, Москва, Россия

\* Российский научный центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 июня 2009 г.

Проведен качественный анализ формирования интерференционной картины на кривых дифракционного отражения рентгеновских лучей от гетероструктур с квантовыми ямами. Показано, что помимо хорошо известного эффекта, связанного с дополнительным сдвигом фазы в амплитудах дифракционного рассеяния покрывающего слоя и подложки за счет небольшого смещения атомных слоев в квантовой яме, форма кривой отражения существенным образом зависит от толщины квантовой ямы, отражая специфические фазовые соотношения в интегральной амплитуде отражения. В рамках анализа были получены простые аналитические выражения, которые позволяют не только описать тонкие детали интерференционной картины на кривой отражения, но и приближенно оценить значения наиболее значимых параметров реально выращенной гетероструктуры, которые определяют наиболее адекватную стартовую модель для дальнейшего анализа на основе общих формул динамической дифракции.

PACS: 61.05.cc, 61.05.cp, 78.67.De, 79.60.Jv

Функциональные характеристики многослойных полупроводниковых гетероструктур, содержащих квантовые ямы, нити и точки, во многом зависят от того, насколько точно реальная структура выращенных материалов соответствует заданной по технологии. Это обстоятельство предопределяет необходимость развития методов диагностики реальной структуры, которые не только дают информацию о структурных параметрах исследуемых образцов, но и позволяют оптимизировать технологию роста требуемых гетероструктур. В последние годы одним из наиболее эффективных методов диагностики многослойных наноразмерных гетероструктур зарекомендовала себя двухкристалльная рентгеновская дифрактометрия, которая позволяет определять структурные характеристики тончайших слоев, расположенных не только на поверхности исследуемой структуры, но и в ее глубине, с высоким разрешением по глубине вплоть до отдельных монослоев (см., например, [1–6]). В основе этого метода лежат измерения кривых дифракционного отражения при углах падения рентгеновского излучения, далеких от брэгговского пика, что и определило его название – метод асимптотической брэгговской дифракции [7–10].

Современный метод молекулярно-лучевой эпитаксии позволяет выращивать гетероструктуры с квантовыми ямами, простейшая из которых показана

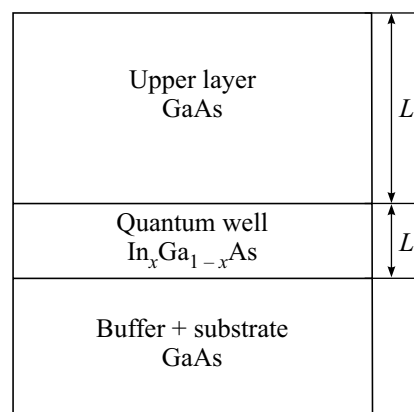


Рис.1. Схема гетероструктуры с квантовой ямой

на рис.1, с довольно резкими границами между слоями, так что амплитуды дифракционного рассеяния от отдельных слоев интерферируют между собой, и на кривых дифракционного отражения (КДО) появляется большое количество явно выраженных осцилляций [1–6]. Основной физический механизм формирования такой интерференционной картины довольно просто объясняется в рамках идеальной трехслойной модели [11]: тонкий слой с квантовой ямой In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As дает слабый вклад в рассеяние, но сдвигает атомные слои верхнего слоя GaAs относительно атомов подложки на некоторую величину  $u = L'\Delta a_{\perp}/a$  ( $a$  – параметр решетки GaAs,  $\Delta a_{\perp}$  – приращение параметра решетки вдоль нормали к поверх-

<sup>1)</sup>e-mail: chuev@ftian.ru

ности в напряженной квантовой яме), что приводит к дополнительному сдвигу фазы

$$\Phi = -K_h u \quad (1)$$

в амплитуде рассеяния от подложки относительно верхнего слоя GaAs, которые и интерферирует между собой ( $K_h$  – модуль вектора обратной решетки для заданного отражения  $h$ ). Для слоев GaAs с достаточно высокой степенью совершенства и широкой области углов падения излучения  $\theta$  вдали от брэгговского пика, соответствующего углу Брэгга  $\theta_B$ , было получено довольно простое выражение для коэффициента дифракционного отражения [11]

$$P_{1s}(\Delta\theta) = \left(\frac{\theta_0}{\Delta\theta}\right)^2 \left[ +4 \sin^2 \frac{\Phi}{2} - 4 \sin \frac{\Phi}{2} \sin \left( \Delta q L + \frac{\Phi}{2} \right) \right], \quad (2)$$

где  $\Delta\theta = \theta - \theta_B$ ,  $\Delta q = -(2\pi/\lambda)2 \cos \theta_B \Delta\theta$  – переданный импульс за вычетом вектора обратной решетки,  $\lambda$  – длина волны рентгеновского излучения,  $\theta_0 = C|\chi_h|/2 \sin 2\theta_B$ ,  $C$  – поляризационный множитель (порядка единицы) с учетом свертки с кристалломонокроматором и усреднения по поляризации излучения,  $\chi_h$  – фурье-компонента поляризуемости подложки. Формула (2) как раз и определяет биения интенсивности на КДО с периодом

$$\theta_1 = \lambda/2L \cos \theta_B, \quad (3)$$

заданным толщиной верхнего слоя.

В реальной ситуации границы между слоями гетероструктуры не являются абсолютно резкими, и размытие границ раздела проявляется на КДО в виде отклонения наблюдаемой интерференционной картины от идеальной, описанной в [11], и легко фиксируется с использованием адекватного математического аппарата, который позволяет определить не только параметры основных слоев структуры, задаваемых по технологии роста, но и характеристики границ раздела между ними. Соответствующий формализм для описания экспериментальных КДО в рамках динамической теории дифракции рентгеновских лучей был разработан в [1, 10, 12] и реализован в виде компьютерной программы для анализа КДО от разных кристаллографических плоскостей, так что двухкристальная рентгеновская дифрактометрия фактически стала штатным методом диагностики гетероструктур с произвольным числом слоев.

Однако общая проблема анализа КДО от произвольных гетероструктур связана с неоднозначной интерпретацией экспериментальных данных, которая

обусловлена частичной потерей фазовой информации, поскольку в эксперименте измеряется не амплитуда отражения, а его интенсивность. Если параметры реально выращенной структуры слабо отличаются от технологических параметров, то задача сводится всего лишь к уточнению параметров исходной модели структуры, заданной технологией роста. В другой ситуации на первый план выходит задача определения параметров начальной модели структуры, которая наиболее близко соответствует реально выращенной. Для нахождения такой модели необходимо проанализировать качественные особенности, которые наблюдаются на экспериментальных КДО и отражают изменения фазовых соотношений в амплитуде рассеяния от реально выращенной структуры по сравнению с заданной по технологии [11, 13]. В свою очередь, такой качественный анализ позволяет приближенно оценить значения наиболее значимые параметры структуры, которые и определяют стартовую модель для дальнейшего анализа на основе общих формул [1, 10, 12]. Этот подход прекрасно работает в случае анализа КДО от гетероструктур с достаточно тонкими квантовыми ямами, когда амплитудой рассеяния от них можно пренебречь в качественном анализе, и параметры начальной модели реальной структуры можно оценить на основе простой формулы (2). Однако для более толстых квантовых ям, когда вклад рассеяния от квантовой ямы в интегральный коэффициент отражения становится существенным, формализм, развитый в [11], не работает и требует уточнения. Решению этой задачи и посвящена настоящая работа.

В качестве примера рассмотрим две гетероструктуры – А и Б с технологическими параметрами  $L = 40$  и  $160$  нм,  $L' = 6$  и  $30$  нм,  $x = 0.2$  и  $0.15$ , соответственно (см. рис.1). На рис. 2 показаны экспериментальные КДО от плоскостей (004), измеренные в двухкристальной бездисперсионной схеме с кристалло-монокроматором Ge (004) на характеристическом  $\text{Cu } K_{\alpha 1}$  излучении рентгеновской трубки [5, 6]. На обеих кривых наблюдается большое количество осцилляций в широком угловом интервале углов падения  $\theta$  в окрестности точного угла Брэгга  $\theta_B$ . При этом форма КДО от образца А качественно определяется суперпозицией интерференционных биений интенсивности отражения в соответствии с формулой (2) и широкого “брэгговского” пика от квантовой ямы (с увеличенным по отношению к подложке параметром решетки) слева от основного брэгговского пика, тогда как интерференционная картина на КДО от образца Б носит более сложный характер, что в первую очередь связано с наличием ярко выражен-

ных биений интенсивности дифракционного отражения от самой квантовой ямы конечной толщины:

$$P_{qw}(\Delta\theta) = \left( \theta_0 \tilde{f}_{qw} \frac{L' \sin x}{\lambda x} \right)^2, \quad (4)$$

где  $\tilde{f}_{qw} = f_{qw} |\chi_h| / |\chi_h^{(x)}|$ ,  $f_{qw}$  – статический фактор Дебая–Валлера, характеризующий степень кристаллического совершенства квантовой ямы [10],  $\chi_h^{(x)}$  – фурье-компонента поляризуемости квантовой ямы,  $\lambda = \lambda / (4\pi \cos \theta_B)$ ,  $x = (\Delta\theta_B - \Delta\theta) L' / 2\lambda$ ,

$$\Delta\theta_B = -\tan \theta_B \Delta a_{\perp} / a \quad (5)$$

описывает изменение угла Брэгга для квантовой ямы относительно подложки. Формула (4) определяет затухающие биения интенсивности на КДО с максимумом при  $\Delta\theta = \Delta\theta_B$  и периодом

$$\theta_{qw} = \lambda / 2L' \cos \theta_B, \quad (6)$$

который определяется толщиной квантовой ямы.

Отмеченные особенности наиболее четко проявляются на кривых приведенной интенсивности отражения, которая задается следующим выражением [10, 11]:

$$\tilde{I}(\Delta\theta) = \frac{I_0 P(\Delta\theta) - I_b}{I_0} \left( \frac{\Delta\theta}{\theta_0} \right)^2, \quad (7)$$

где  $I_0$  – интенсивность падающего излучения, а  $I_b$  – вклад диффузного фона, который оценивается независимо путем анализа КДО, измеренной в трехкристальной схеме [10]. На рис.3 представлены приведенные интенсивности отражения от двух образцов, рассчитанные по формуле (7), в которой первый член в числителе соответствует экспериментальной КДО. На этих кривых в четкой форме наблюдается описанная выше интерференционная картина, которая в первом приближении описывается формулами (2) и (4), с помощью которых можно оценить параметры  $\theta_1 \approx 0.11^\circ$  и  $0.027^\circ$ ,  $\theta_{qw} \approx 0.69^\circ$  и  $0.19^\circ$ , а также  $\Delta\theta_B \approx 0.95^\circ$  и  $0.78^\circ$  для образцов А и Б, соответственно. В свою очередь, по этим параметрам и формулам (3) и (5) можно приближенно оценить значения толщины слоев  $L \approx 47$  и  $190$  нм,  $L' \approx 6.7$  и  $26$  нм, а также  $\Delta a_{\perp} / 2.5\%$  и  $2.1\%$ , соответственно. Отметим, что поскольку в тонких слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  искажения носят тетрагональный характер, соответствующие значения концентрации In в квантовой яме можно связать с относительным изменением параметра решетки (и наоборот) в рамках модели Вегарда [14]:

$$\frac{\Delta a_{\perp}}{a} = \frac{x(a_{\text{InGaAs}} - a_{\text{GaAs}})}{a_{\text{GaAs}}} \frac{1 + \nu_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}}{1 - \nu_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}}, \quad (8)$$

где  $\nu_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}$  – коэффициент Пуассона, который в свою очередь линейно зависит от концентрации  $x$ .

Приведенные выше оценки фактически представляют собой набор параметров начальной модели структуры, которая наиболее близко соответствует реально выращенной. Это позволяет провести дальнейший анализ экспериментальных КДО по общим формулам в рамках подхода, описанного в [1, 10, 12], и стандартного метода наименьших квадратов для нахождения оптимальных значений параметров с учетом погрешности измерений интенсивности отражения в каждой точке (при заданном угле  $\theta$ ) КДО. Не вдаваясь в детали, которые требуют более подробного изложения и выходят за рамки настоящей статьи, здесь лишь отметим, что в нашем конкретном случае такая процедура привела к положительному

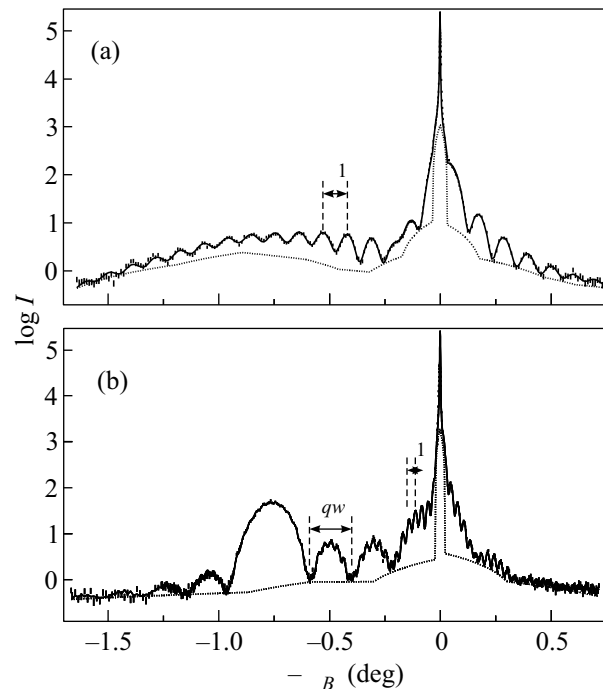


Рис.2. Экспериментальные КДО (вертикальные штрихи) от двух гетероструктур  $\text{GaAs}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  и теоретические кривые (сплошные линии), рассчитанные в результирующих моделях ( $\chi^2 = 1.21$  и  $1.15$  для образцов А и Б, соответственно). Штриховые линии – вклад диффузного фона

результату, то есть к адекватному описанию экспериментальной КДО в результирующей модели (рис.2) с оптимальными значениями параметров только для образца А (см. таблицу), тогда как для образца Б результирующая модель и соответствующая расчетная кривая не давала детального (даже качественно-

**Структурные параметры исследованных образцов в результирующих моделях, полученных из анализа КДО**  
(параметры квантовой ямы и гетерограниц выделены жирным шрифтом, в скобках приведены среднеквадратичные ошибки параметров)

$j$	Образец А ( $\chi^2 = 1.21$ )			Образец Б ( $\chi^2 = 1.15$ )		
	$l_j$ , нм	$\Delta a_{j\perp}$ , %	$x_j$	$l_j$ , нм	$\Delta a_{j\perp}$ , %	$x_j$
1	40.9(5)	0		171.5(3)	0	
<b>3</b>	<b>4.1(4)</b>	<b>0.16(4)</b>	<b>0.012(3)</b>	<b>2.9(2)</b>	<b>0.02(4)</b>	<b>0.002(2)</b>
<b>4</b>	<b>6.5(1)</b>	<b>2.58(4)</b>	<b>0.182(3)</b>	<b>27.7(1)</b>	<b>2.086(1)</b>	<b>0.1480(1)</b>
<b>5</b>	<b>6(1)</b>	<b>0.05(2)</b>	<b>0.004(1)</b>	<b>5.5(2)</b>	<b>0.12(1)</b>	<b>0.009(1)</b>

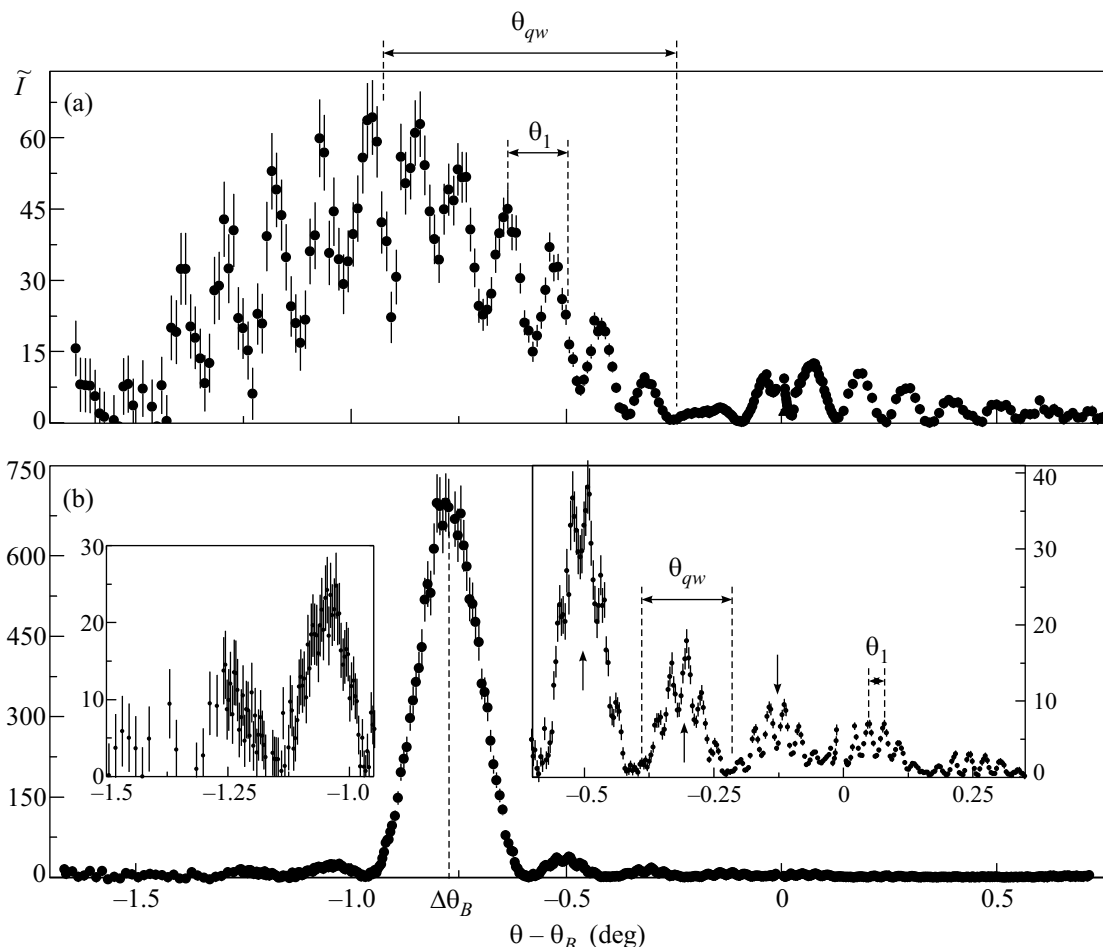


Рис. 3. Приведенные интенсивности дифракционного отражения от двух гетероструктур, рассчитанные из экспериментальных КДО по формуле (7). На вставках показаны “хвосты” приведенной интенсивности для образца Б в увеличенном масштабе

го) описания экспериментальной КДО, хотя и описывала ее в целом с параметром  $\chi^2 = 2.5$ .

На самом деле, этот факт становится неудивительным, если внимательно посмотреть на структуру интерференционных биений приведенной интенсивности отражения для образца Б, показанной на правой вставке рис.3. Там отчетливо видно, что в максимумах “низкочастотных” биений, которые связаны с толщиной квантовой ямы выражением (4) и показаны на вставке стрелками, реализуются пооче-

редно то максимумы, то минимумы “высокочастотных” биений, связанных с толщиной верхнего слоя GaAs выражением (2). Этот факт, очевидно, свидетельствует о существенном вкладе интерференции между амплитудами отражения от всех трех слоев, а не только между амплитудами двух, наиболее толстых, слоев GaAs, которую описывает формула (2), то есть необходимо провести более тщательный качественный анализ формирования КДО с учетом конечной толщины квантовой ямы.

Для решения этой задачи запишем амплитуду дифракционного отражения от трехслойной системы с резкими границами в кинематическом приближении, когда можно пренебречь динамическими эффектами и многократным рассеянием на границах, то есть в области углов вдали от брэгговского пика,  $|\Delta\theta| \gg \theta_0$  [10, 11]:

$$R(\Delta\theta) = \theta_0^2 \left( \frac{1 + \exp(i\Delta q L)}{\Delta\theta} + \bar{f}_{qw} \exp(i\Delta q L) \times \right. \\ \left. \times \frac{1 - \exp(i\Delta q L' + i\Phi)}{\Delta\theta - \Delta\theta_B} + \frac{\exp(i\Delta q(L + L') + i\Phi)}{\Delta\theta} \right). \quad (9)$$

Отметим, что формула (9) снова справедлива в приближении достаточно высокого структурного качества слоев GaAs. Поскольку квадрат модуля амплитуды отражения дает интенсивность дифракционного отражения, из формулы (9) несложно получить довольно простое выражение для приведенной интенсивности отражения (7):

$$\bar{I}(\Delta\theta) = 1 - 4\bar{R}_{qw}(\Delta\theta) \sin \left( \Delta q(L + L'/2) + \frac{\Phi}{2} \right) + \\ + 4\bar{R}_{qw}^2(\Delta\theta), \quad (10)$$

где введена приведенная амплитуда отражения от квантовой ямы

$$\bar{R}_{qw}(\Delta\theta) = \left( 1 + \frac{\bar{f}_{qw} \Delta\epsilon}{\Delta\theta_B - \Delta\theta} \right) \sin \frac{(\Delta\theta_B - \Delta\theta)L'}{2\bar{\lambda}}. \quad (11)$$

Нетрудно увидеть, что при  $L' \ll L$  и  $|\Delta\theta| \ll |\Delta\theta_B|$  выражения (10) и (11) сводятся к выражению в квадратных скобках формулы (2), которая описывает интенсивность отражения без учета рассеяния на квантовой яме. В соответствии с этим, основная особенность формы КДО – “высокочастотные” биения, связанные с толщиной верхнего слоя GaAs, также описывается синусоидальным членом в формуле (10), однако период этой синусоиды по сравнению с выражением (3) скорректирован на толщину квантовой ямы:

$$\theta_1 = \lambda / (2L + L') \cos \theta_B. \quad (12)$$

Что же касается “низкочастотных” биений, связанных с толщиной квантовой ямы, то их период определяется все тем же выражением (6), а амплитуда скорректирована интерференционным членом в круглых скобках формулы (11). Кроме того, выражения (10) и (11) качественно объясняют интерференционный характер чередования максимумов и минимумов “высокочастотных” биений в максимумах

“низкочастотных” биений, показанных стрелками на правой вставке рис. 3.

Помимо качественного описания интерференционной картины на КДО, формулы (10)–(12) позволяют уточнить оценки толщины верхнего слоя GaAs в реальных структурах, исходя из ранее оцененных значений  $\theta_1$ ,  $\theta_{qw}$  и  $\Delta\theta_B$ , наблюдаемых на КДО:  $L \approx 44.4$  и  $177$  нм для образцов А и Б, соответственно. Подставив эти значения в набор параметров начальной модели каждой структуры, мы снова провели дальнейший анализ экспериментальных КДО по общим формулам динамической теории дифракции с учетом свертки кривых отражения от образца и кристалла-монокроматора, угловой расходимости и дисперсии, а также с введением дополнительных субслоев для описания гетерограниц [1, 10, 12]. В процессе подгонки экспериментальных КДО варьировались значения толщины, параметра решетки и статистического фактора Дебая–Валлера для всех основных и дополнительных слоев структуры. Параметры результирующих моделей показаны в таблице, а соответствующие расчетные КДО показаны сплошными линиями на рис.2.

Отметим, что в случае образца А была получена та же самая результирующая модель структуры, что и для предыдущей стартовой модели анализа, параметры которой оценивались по формулам (2) и (4), тогда как для образца Б было получено существенно более адекватное описание экспериментальной КДО в рамках результирующей модели по сравнению с предыдущей, причем как с математической точки зрения с величиной  $\chi^2$ , близкой к единице, так и по описанию мельчайших деталей очень сложной интерференционной картины на КДО. Вместе с тем, результаты численного анализа подтверждают также все качественные и количественные оценки структурных параметров реально выращенных гетероструктур, отмеченные выше.

Представленный выше качественный анализ и аналитические выражения для интенсивности дифракционного отражения могут быть эффективно использованы для диагностики реальной структуры произвольных многослойных гетеросистем с наноразмерными слоями методом рентгеновской дифракции высокого разрешения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 08-02-01462 и # 09-02-12164).

1. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов и др., Кристаллография **42**, 514 (1997).

2. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов, А. А. Ломов, *Кристаллография* **46**, 781 (2001).
3. E. M. Pashaev, S. N. Yakumin, A. A. Zaitsev et al., *Phys. Stat. Sol. (a)* **195**, 204 (2003).
4. М. А. Чуев, А. А. Ломов, Р. М. Имамов, *Кристаллография* **51**, 208 (2006).
5. В. А. Aronzon, M. V. Kovalchuk, E. M. Pashaev et al., *J. Phys.: Condens. Matter.* **20**, 145207 (2008).
6. М. А. Чуев, Б. А. Аронзон, Э. М. Пашаев и др., *Микроэлектроника* **37**, 83 (2008).
7. С. С. Якимов, В. А. Чапланов, А. М. Афанасьев и др., *Письма в ЖЭТФ* **39**, 3 (1984).
8. A. M. Afanas'ev, P. A. Alexandrov, R. M. Imamov et al., *Acta Cryst. A* **41**, 227 (1985).
9. I. K. Robinson, *Phys. Rev. B* **33**, 3830 (1986).
10. А. М. Афанасьев, П. А. Александров, Р. М. Имамов, *Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев*, М.: Наука, 1989.
11. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов и др., *Письма в ЖЭТФ* **74**, 560 (2001).
12. М. А. Чуев, Э. М. Пашаев, В. В. Квардаков, И. А. Субботин, *Кристаллография* **53**, 808 (2008).
13. М. А. Чуев, И. А. Субботин, Э. М. Пашаев и др., *Письма в ЖЭТФ* **85**, 21 (2007).
14. L. Z. Vegard, *Z. Phys.* **5**, 393 (1921).