

Исследование анизотропии пространственного распределения квантовых точек In(Ga)As в многослойных гетероструктурах In(Ga)As/GaAs методами рентгеновской дифрактометрии и просвечивающей электронной микроскопии

© Н.Н. Фалеев*[¶], Ю.Г. Мусихин, А.А. Суворова, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш,
В.М. Устинов, М. Tabuchi[†], Y. Takeda[†]

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Present address — Electrical Engineering Department, Texas Tech University,
Lubbock, Texas, 79409, USA

[†] Department of Materials Science and Engineering, Nagoya University,
464-8603 Nagoya, Japan

(Получена 19 декабря 2000 г. Принята к печати 20 декабря 2000 г.)

Методы высокоразрешающей рентгеновской и синхротронной дифрактометрии и просвечивающей электронной микроскопии применены для исследования многослойных структур In(Ga)As–GaAs с массивом вертикально совмещенных квантовых точек In(Ga)As в матрице GaAs, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Показано, что в кристаллически совершенных структурах дополнительное (вертикальное и латеральное) пространственное упорядочение квантовых точек, вызывающее изгиб кристаллографических плоскостей и квазипериодическое распределение упругой деформации, существенно анизотропно по отношению к кристаллографическим направлениям типа [110]. Анизотропия формирующейся системы квантовых точек объясняется тем, что пространственное упорядочение квантовых точек и изгиб кристаллографических плоскостей являются начальными стадиями процесса релаксации упругих напряжений, вносимых в структуру квантовыми точками. Показано, что анизотропный рельеф кристаллографических плоскостей (гофрированная ростовая поверхность) обусловлен формированием системы пространственно упорядоченных квантовых квази-проволок, однородно заполненных квантовыми точками. В многослойной кристаллически совершенной гетероструктуре анизотропный рельеф кристаллографических плоскостей наследуется вышележащими слоями, постепенно уменьшаясь по амплитуде по мере удаления от источника упругих напряжений, в данном случае сверхструктуры, содержащей квантовые точки In(Ga)As.

1. Введение

Гетероструктуры с квантовыми точками (КТ) являются очень интересными объектами для различных исследований [1–7] вследствие особенностей их электрофизических и оптических свойств, которые открывают перспективу создания на основе этих структур новых приборов, например, лазерных диодов с уникальными параметрами [7,8]. Наряду с этим КТ являются новыми и мало изученными структурными объектами, исследование которых представляет значительный интерес для понимания механизма эпитаксиального роста, процесса их формирования, для изучения особенностей механизма релаксации упругих напряжений и генерации структурных дефектов. Особый интерес представляют исследования структур, содержащих квантовые точки, высококоразрешающими методами рентгеновской и синхротронной дифрактометрии и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) [9–18]. Возможности этих дифракционных методов взаимно дополняют друг друга при изучении упорядоченных наноразмерных объектов, в частности при исследовании их пространственного упорядочения: возможности ПЭМ ограничены величиной

исследуемого объема [18], тогда как пространственного разрешения рентгеновских методов недостаточно для детальных исследований объектов такого размера.

Ранее методами CTR (Crystal Truncation Rods) и высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии [13–16] было показано наличие в многослойных периодических структурах с КТ InAs дополнительного дальнего порядка в латеральном упорядочении КТ, вызывающего в слоях с КТ изгиб кристаллографических плоскостей и обусловленное им квазипериодическое распределение упругой деформации. Было показано, что изгиб плоскостей и степень латерального упорядочения КТ возрастают с увеличением общего числа пар слоев InAs–GaAs в периодической части структуры, а параметр, характеризующий периодичность латерального упорядочения КТ, соответствует среднему расстоянию между ними.

Известно, что формирование на ростовой поверхности массива трехмерных квантовых точек заметно влияет на процесс эпитаксиального роста, существенно изменяет в сравнении с планарными слоями характер распределения упругих напряжений. В периодических структурах, содержащих КТ, это приводит к появлению дополнительного вертикального [2,7,17,19] и латерального [13–16,19] упорядочения КТ и заметному изгибу кристаллографических плоскостей [16]. Можно предположить, что

[¶] E-mail: nfaleev@ttacs.ttu.edu,
Fax: 1 (806) 742 8061.

пространственное упорядочение КТ и изгиб кристаллографических плоскостей являются различными стадиями процесса релаксации упругих напряжений, внесенных в структуру квантовыми точками. На начальной стадии процесса, которую можно назвать адаптационной, релаксация осуществляется путем оптимизации пространственного расположения квантовых точек [20,21], и лишь после этого начинается процесс пластической релаксации упругих напряжений с образованием структурных дефектов [22,23]. Нечто подобное наблюдается в планарных гетероструктурах, в которых процесс релаксации упругих напряжений также проходит несколько стадий, начинаясь с нарушений планарности ростовой поверхности [24,25].

Если предположение о релаксационном механизме пространственного упорядочения квантовых точек верно [19–21], то наблюдаемые структурные изменения должны быть анизотропными относительно кристаллографических направлений $[110]$ и $[1\bar{1}0]$, подобно тому, как это имеет место в планарных гетероструктурах [25,26]. При этом анизотропия пространственного упорядочения рассеивающих объектов должна влиять на условия дифракции рентгеновского и синхротронного излучения, проявляться на микрофотографиях ПЭМ. Поэтому изучение механизма релаксации упругих напряжений и пространственного упорядочения рассеивающих объектов типа КТ, исследование особенностей их рентгенодифракционного отображения представляет значительный интерес, помогает установить взаимосвязь между структурой рассеивающих объектов и их отображением.

2. Экспериментальные методы

Образцы для исследований были выращены на точно ориентированных подложках n^+ -GaAs (001) методом молекулярно-пучковой эпитаксии в установке Riber-32P с твердотельным источником мышьяка. Для уменьшения сегрегации и переиспарения In температура подложки при формировании многослойной структуры с КТ и осаждении слоя GaAs толщиной 10 нм, закрывающего массив КТ, была понижена до 480°C. Температура роста остальной части структуры составляла 620°C для образца 1, 600°C для образца 2.

В структуре 1 массив вертикально совмещенных КТ формировался на буферном слое GaAs толщиной ~ 1.1 – 1.2 мкм в результате 10-кратного осаждения слоев КТ InAs, разделенных слоями GaAs толщиной ~ 5.0 нм. Сверху периодическая структура InAs–GaAs была зарощена слоем GaAs толщиной ~ 0.45 мкм. В структуре 2 массив вертикально совмещенных квантовых точек формировался на буферном слое GaAs толщиной ~ 0.5 мкм, короткопериодной (с периодом ~ 4.0 нм) сверхрешетке AlAs–GaAs (10 пар слоев) и слое GaAs толщиной 100 нм в результате 15-кратного осаждения слоев КТ $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$, разделенных слоями GaAs толщиной ~ 4.0 – 4.5 нм. Сверху периодическая

структура InGaAs–GaAs была зарощена слоем GaAs толщиной 40 нм, сверхрешеткой AlAs–GaAs, аналогичной предыдущей, и слоем GaAs толщиной 10 нм. Эффективная толщина слоев InAs в обеих структурах составляла ~ 0.55 – 0.60 нм. Суммарная толщина сверхрешеток InGaAs–GaAs составляла для структур с 10 и 15 парами слоев КТ InAs и InGaAs ~ 55.0 и ~ 80.0 нм соответственно. Структуры были выбраны для дальнейших исследований, потому что при таких толщинах в них четко проявляется вертикальное латеральное упорядочение КТ и обусловленный им изгиб кристаллографических плоскостей (квазипериодическое распределение упругой деформации) [13,16], тогда как плотность протяженных дефектов и соответственно величина вносимых ими структурных искажений незначительны.

Основные результаты в работе получены методами CTR и просвечивающей электронной микроскопии. Измерения по методу CTR проводились на двухкристальном дифрактометре станции VL6A фотонной фабрики (PF) в Цукуба (Tsukuba, Japan) с использованием синхротронного излучения от накопительного кольца с энергией позитронов 2.5 ГэВ (ток в кольце — 380–250 мА). Монохроматизация и коллимация синхротронного излучения осуществлялись с помощью изогнутого кварцевого зеркала и кристалла Si(111) треугольной формы, изогнутого для формирования квазипараллельного пучка монохроматизованного излучения. Малые размеры источника и высокая когерентность излучения позволяют без заметных искажений получать картины пространственного распределения интенсивности дифрагированного излучения в больших угловых диапазонах. CTR-картины снимались вблизи отражения GaAs (004) на длине волны синхротронного излучения 1.6 Å. Для регистрации двумерных дифракционных картин использовались специальные светочувствительные пластины (imaging plate, IP), информация с которых считывалась оптическим путем [27]. После считывания информации с IP полученные картины дополнительно обрабатывались для удаления некогерентного фона.

Электронно-микроскопические исследования были выполнены на электронном микроскопе Philips EM420 с ускоряющим напряжением 120 кВ. Образцы для исследования методом ПЭМ были приготовлены в геометриях поперечного сечения вдоль двух взаимно перпендикулярных направлений: $[110]$ и $[1\bar{1}0]$. Отметим, что обозначение кристаллографических направлений $[110]$ и $[1\bar{1}0]$ (здесь и далее) выбрано произвольно без учета полярности кристаллографических плоскостей. Для подготовки образцов использовалась стандартная процедура, включающая ионное распыление на последнем этапе. Ионное распыление проводилось на установке Gatan DouMill 600 при скользящих углах падения пучка ионов Ar^+ с энергией 4 кэВ. Исследования проводились в режиме светлого и темного поля с действующими дифракционными векторами $g = 002$ и $g = 220$.

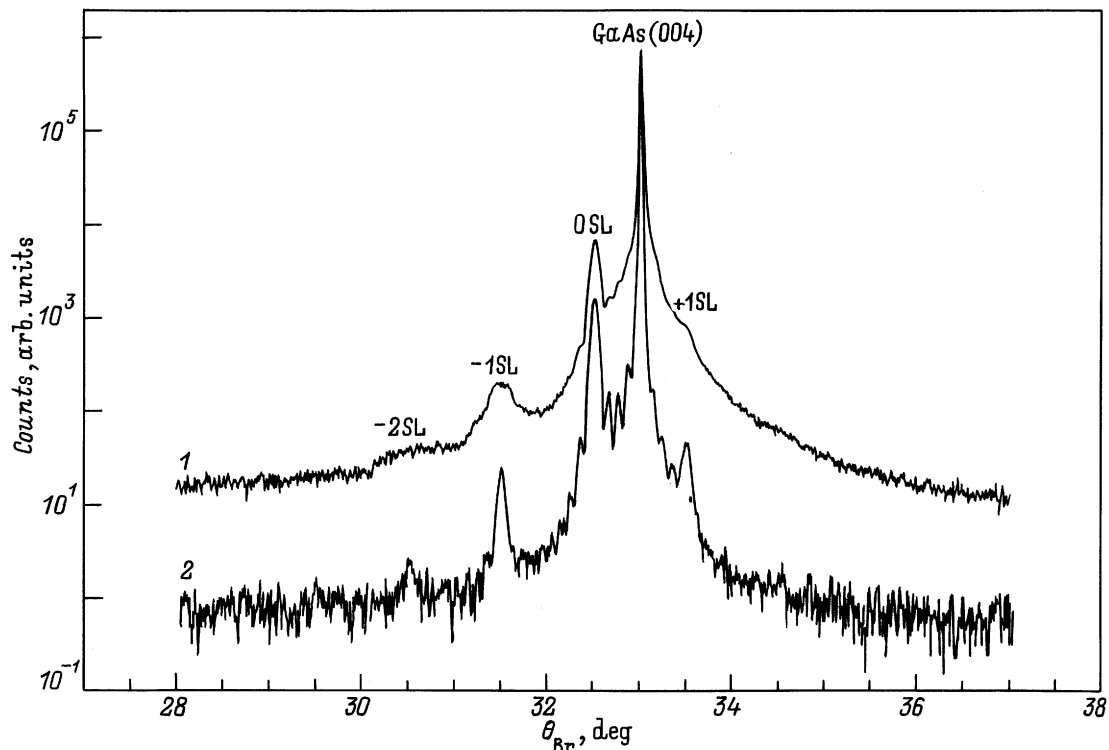


Рис. 1. Экспериментальные полная (1) и когерентная (2) двухкристальные дифракционные кривые для структуры, содержащей 10 пар слоев InAs–GaAs. Отражение (004) GaAs, излучение $\text{CuK}\alpha_1$.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Результаты рентгенодифракционных исследований

Предварительные оценки степени кристаллического структурного совершенства образцов были получены на основании данных двухкристальных рентгенодифракционных измерений. Дифракционные кривые, снятые вблизи отражения GaAs (004), показали, что исследуемые образцы обладают высоким кристаллическим совершенством, а геометрические параметры слоев, в том числе периодических структур In(Ga)As–GaAs, близки к заданным технологическим параметрам.

На рис. 1 показаны две зависимости интенсивности дифрагированного излучения от угла дифракции (θ_{Br}) в режиме $(\omega-2\theta)$ -сканирования для образца 1. Кривая 1 снята с открытым детектором и по сути является суперпозицией когерентной и диффузной компонент дифрагированного излучения. При съемке кривой 2 излучение на детектор попадало через узкую щель, что существенно уменьшило вклад диффузной составляющей. Обусловленные этим отличия хорошо видны при сравнении дифракционных кривых (чтобы избежать наложений и неточностей, кривые сдвинуты по вертикали друг относительно друга). Четко проявились пики сверхструктуры InAs–GaAs -2SL , -1SL , $+1\text{SL}$ и толщинные осцилляции, период которых соответствует суммарной толщине

сверхструктуры. Вблизи отражения GaAs (004) на дифракционной кривой, снятой с более высоким угловым разрешением, четко проявляются интерференционные осцилляции, период которых определяется толщиной верхнего слоя GaAs (~ 0.45 мкм). В совокупности все это указывает на высокое кристаллическое совершенство структуры, планарность границ и очень низкую плотность протяженных структурных дефектов, образовавшихся во время эпитаксиального роста.

Следует обратить внимание на некоторые особенности кривой 1, содержащей диффузную компоненту дифрагированного излучения. Необычная форма сверхструктурных пиков -2SL и -1SL не соответствует диффузному рассеянию на протяженных дефектах, плотность которых по данным других измерений в структуре незначительна. По всей видимости, такая форма пиков обусловлена диффузным рассеянием рентгеновского излучения на структурных искажениях, обусловленных изгибом кристаллографических плоскостей [16].

Для подтверждения этого предположения, а также доказательства наличия азимутальной анизотропии в распределении упругих напряжений исследования были продолжены методом CTR. Вблизи отражения GaAs (004) были сняты картины углового распределения дифрагированного излучения интенсивности. Картины снимались при трех различных азимутальных положениях исследуемых образцов, при которых направление падающего излучения совпадало с кристаллографическими напра-

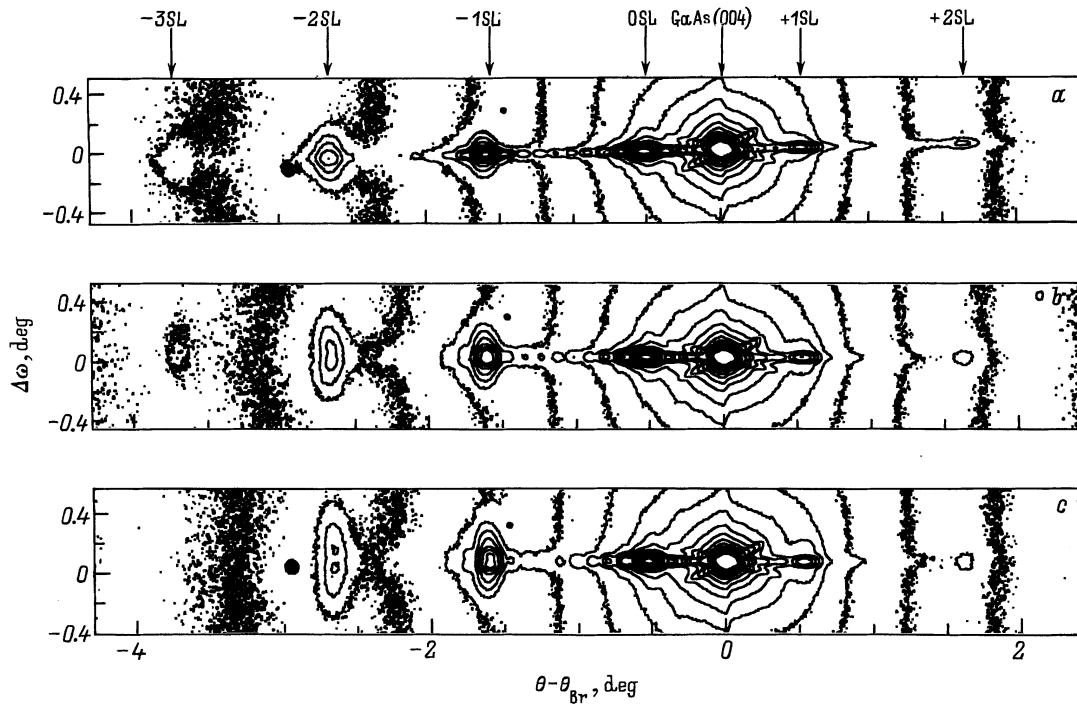


Рис. 2. Картины пространственного распределения дифрагированного излучения, полученные методом CTR вблизи отражения (004) GaAs для структуры 1 (10 пар слоев) для азимутальных направлений [110] (a), [100] (b) и [110] (c). Длина волны синхротронного излучения 0.16 нм.

влениями $[1\bar{1}0]$, [100] или [110]. Полученные картины для образца 1 показаны на рис. 2.

Общим для всех картин является наличие четких сверхструктурных пятен от $-2SL$ до $+2SL$, положение которых определяется величиной средней деформации и периодом сверхструктуры InAs–GaAs. Для направления $[1\bar{1}0]$ (рис. 2, a) в центральной части картины сверхструктурные пятна от $-1SL$ до $+1SL$ вытянуты вдоль направления $\Delta\theta_{Br} = \theta - \theta_{Br}$ (или q_z), что характерно для кристаллически совершенных рассеивающих объектов. По-видимому, так же распределена интенсивность и в пятне $+2SL$, но недостаточная интенсивность дифрагированного излучения не позволяет говорить об этом более определенно. Кроме этого, вокруг каждого из сверхструктурных пятен хорошо видны дополнительные контуры диффузно рассеянного излучения, уширенные в латеральном направлении q_x , или $[1\bar{1}0]$. При этом уширение пятен заметно возрастает при переходе от $+1SL$ к $-1SL$. Распределение интенсивности вокруг пятна $-2SL$ имеет вид искаженных эллипсов, вытянутых в латеральном направлении. Между сверхструктурными пятнами $-1SL$ и $+1SL$ четко видны дополнительные интерференционные пятна, соответствующие толщинным осцилляциям от сверхструктуры InAs–GaAs в целом.

Картина пространственного распределения дифрагированного излучения существенно меняется для направлений [100] (рис. 2, b) и [110] (рис. 2, c). Только вблизи нулевого сверхструктурного пятна характер пространственного распределения дифрагированного излучения

остается практически без изменения. Другие пятна, особенно $-1SL$ и $-2SL$, существенно уширились в направлении q_x и стали похожи на эллипсы, а вершина сверхструктурного пятна $-2SL$ на рис. 2, c стала двуглавой.

Сопоставляя и анализируя полученные данные, прежде всего отметим, что наблюдаемое на картинах распределение дифрагированного излучения с дополнительным анизотропным уширением сверхструктурных дифракционных пятен в латеральном направлении не типично для рассеивающих объектов с протяженными структурными дефектами (типа дислокаций несоответствия) и уж тем более не типично для совершенных планарных структур. Очевидно, что наблюдаемое уширение дифракционных пятен обусловлено анизотропным относительно кристаллографических направлений семейства [110] квазипериодическим распределением упругой деформации в периодической структуре InAs–GaAs [16], которое появилось вследствие релаксации упругих напряжений, внесенных КТ.

Преимущественным направлением изгиба кристаллографических плоскостей является направление [110]. Двуглавая (в направлении q_x) форма сверхструктурного пятна $-2SL$ (рис. 2, c) свидетельствует о формировании в этом направлении дополнительного дальнего порядка в латеральном изгибе плоскостей [16]. Угловое расстояние между вершинами 400 угл. с соответствует латеральному размеру в 70.0 нм, что совпадает с расстоянием между КТ в направлении [110]. В перпендикулярном направлении $[1\bar{1}0]$ изгиб плоскостей, если судить по незначитель-

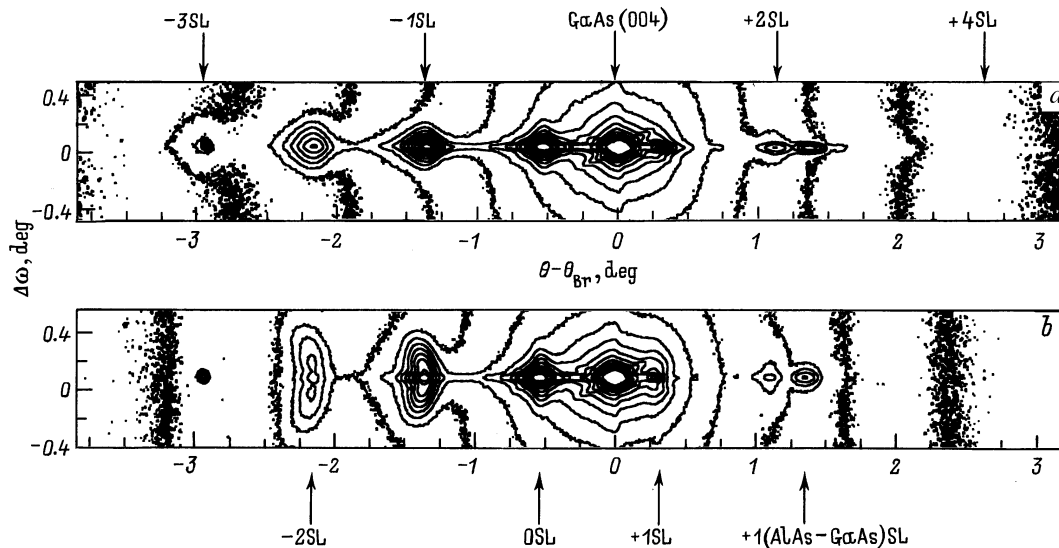


Рис. 3. Картины пространственного распределения дифрагированного излучения, полученные методом CTR вблизи отражения (004) GaAs для структуры 2 (15 пар слоев) для азимутальных направлений $[1\bar{1}0]$ (a) и $[110]$ (b). Длина волны синхротронного излучения 0.16 нм.

ному латеральному уширению пятна $-2SL$, тоже есть (рис. 2, a), но он заметно меньше и не имеет признаков, свидетельствующих о дополнительном латеральном упорядочении. Можно предположить, что в данном направлении квазипериодическая упругая деформация, обусловленная начальной стадией процесса релаксации упругих напряжений, появляется только в верхней части сверхструктуры InAs–GaAs.

Второе существенное отличие, наблюдаемое при изменении азимутального направления съемки — изменение полной угловой протяженности дифракционных картин и угловой протяженности картины интерференционных толщинных осцилляций. В направлении $[1\bar{1}0]$ (рис. 2, a) на CTR-картине четко видны сверхструктурные пятна $+2SL$ и $-3SL$. Между сверхструктурными пятнами $-1SL$ и $+1SL$, т.е. в той части дифракционной картины, в которой изгиб кристаллографических плоскостей, по видимому, оказывает наименьшее влияние на характер дифракционного рассеяния, видны четкие пятна интерференционных осцилляций, период которых соответствует суммарной толщине сверхструктуры InAs–GaAs.

Для направления $[110]$ (рис. 2, c) полная протяженность дифракционной картины заметно меньше: пятно $-3SL$ отсутствует, а сверхструктурное пятно $+2SL$ сильно размыто. Пятна толщинных осцилляций от сверхструктуры InAs–GaAs четко видны между сверхструктурными пятнами $0SL$ и $+1SL$, тогда как слева от пятна $0SL$ протяженность интерференционной картины существенно меньше. Сопоставление этих данных позволяет однозначно утверждать, что изгиб кристаллографических плоскостей и привнесенная им квазипериодическая упругая деформация (в более общем случае — непланарность границ) существенно влияют на

пространственное разрешение рентгенодифракционных методов. Чем больше амплитуда квазипериодически распределенной упругой деформации (непланарность границ), тем меньше пространственное разрешение метода (рис. 2, c, направление $[110]$), и наоборот (рис. 2, a, направление $[1\bar{1}0]$). Это проявляется как на уровне периода сверхструктуры — в изменении общей протяженности интерференционной картины, так и на уровне полной толщины периодической структуры — в изменении протяженности интерференционной картины суммарных толщинных осцилляций. Чем выше шероховатость каждой из границ, тем больше неоднородность суммарной толщины сверхструктуры.

Это дает основание утверждать, что пространственное разрешение высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии ΔT определяется, как правило, не аппаратными ограничениями метода, а прежде всего качеством, кристаллографическим совершенством исследуемых гетероструктур. Для того чтобы в эксперименте избежать потери полезной информации, измеряемый угловой диапазон $\Delta\theta_{\text{exp}}$ должен быть существенно больше углового диапазона $\Delta\theta_{\text{Br}} \approx L_{\text{ext}}/\Delta T_{\text{exp}}$, определяемого кристаллическим совершенством исследуемого образца (где L_{ext} — экстинкция толщина для идеального кристалла, а ΔT_{exp} — пространственное разрешение, определяемое кристаллическим совершенством структуры, т.е. размыванием границ).

Результаты, полученные на образце 2, полностью подтверждают данные, полученные на образце 1. Картины пространственного распределения дифрагированного излучения, полученные на образце 2 (рис. 3), заметно сложнее вследствие наличия в структуре двух дополнительных сверхрешеток AlAs–GaAs. Однако общий

характер распределения интенсивности дифрагированного излучения и характер изменений, обусловленных латеральным упорядочением квантовых точек и азимутальной анизотропией изгиба кристаллографических плоскостей, остается неизменным. Некоторое отличие картин пространственного распределения вблизи сверхструктурного пятна $-2SL$ по сравнению с образцом 1 обусловлено увеличением общего числа пар слоев в периодической структуре $InGaAs-GaAs$ и соответствующим увеличением степени латерального упорядочения квантовых точек.

В совершенной структуре этот процесс протекает одновременно с процессом вертикального упорядочения КТ [16]. При этом, чем больше слоев с КТ, тем выше степень их вертикального и латерального упорядочения и сильнее изгиб кристаллографических плоскостей [13,16]. Параметром, ограничивающим суммарную толщину периодической структуры, содержащей КТ, является критическая толщина структуры, при превышении которой начинается процесс пластической релаксации упругих напряжений с образованием протяженных структурных дефектов. При этом существенное влияние на процессы релаксации оказывают как размеры самих КТ, так и толщины промежуточных слоев $GaAs$ между ними [17].

Наличие в исследуемой структуре дополнительных сверхструктур $AlAs-GaAs$ привело к появлению на картинах пространственного распределения дополнительного пятна сверхрешетки $AlAs-GaAs$, $+1(AlAs-GaAs)SL$, справа от пятна $+2SL$ сверхрешетки $InGaAs-GaAs$. Весьма характерно, что распределение интенсивности вокруг пятна $+1(AlAs-GaAs)SL$ изменяется при изменении азимута съемки так же, как и для пятен сверхструктуры $InGaAs-GaAs$, т.е. при переходе от азимутального направления $[1\bar{1}0]$ к $[110]$ дифракционное пятно заметно удлиняется в латеральном направлении. Это дает основание предположить, что анизотропный изгиб кристаллографических плоскостей имеет место не только в сверхструктуре $InGaAs-GaAs$, но и в вышележащих слоях $GaAs$ (толщиной 40 и 10 нм) и в периодической структуре $AlAs-GaAs$. К сожалению, положение сверхструктурного пятна $-1(AlAs-GaAs)SL$ практически совпадает с положением сверхструктурного пятна $-1SL$, относящегося к $InGaAs-GaAs$, что усложняет картину пространственного распределения интенсивности и не позволяет уточнить некоторые его особенности. Для детального изучения изгиба кристаллографических плоскостей в верхней части структуры необходимо проведение дополнительных исследований с помощью дифракционных методов, обладающих большей селективностью по глубине проникновения преломленного/дифрагированного излучения, например, методами рентгеновской рефлектометрии или рентгеновской дифракции в условиях скользящего падения [28,29].

Так же, как и на предыдущем образце, полная протяженность дифракционных картин и интерференционных

картин толщинных осцилляций изменяется при изменении азимутального направления. Оценки планарности границ (в первую очередь это относится к сверхструктурам $In(Ga)As-GaAs$ и вышележащим слоям), полученные из полной угловой протяженности дифракционных картин, дают следующие значения: в структуре 1 для направления $[1\bar{1}0]$ средняя величина размытия границ составляет 1.0 нм, для направления $[110]$ — 1.25 нм; для структуры 2 — 1.1 и 1.4 нм соответственно. Это составляет, в зависимости от азимутального направления, приблизительно 3.5–5 монослоев. Отклонение от планарности сверхструктуры $InAs-GaAs$ в целом в образце 1 составляет: для направления $[1\bar{1}0]$ — 2.5 нм, для направления $[110]$ — 3.2–3.4 нм; для структуры 2 подобные оценки весьма приблизительно из-за сильного размытия интерференционных осцилляций.

Основываясь на полученных данных, для структуры 2 можно предложить следующую модель изгиба кристаллографических плоскостей и обусловленного им пространственного распределения упругих напряжений. Нижняя часть структуры, начиная от подложки и вплоть до сверхрешетки $InGaAs-GaAs$, выращена в оптимальных условиях, в ней нет привнесенных дополнительных упругих напряжений, поэтому эта часть структуры планарна. Соответственно планарна и нижняя граница сверхструктуры $InGaAs-GaAs$. С каждым последующим слоем, содержащим КТ, упругие напряжения в структуре увеличиваются. На втором слое начинается вертикальное, а затем (на 3–4 слоях) и латеральное упорядочение КТ, т.е. начинается первая адаптационная стадия релаксации упругих напряжений, появляется и увеличивается изгиб кристаллографических плоскостей вокруг КТ, растут связанные с ним квазипериодические упругие напряжения [13,16]. В направлении $[110]$ изгиб кристаллографических плоскостей растет быстрее и постепенно приобретает четкие признаки, свидетельствующие о дальнейшем упорядочении. В направлении $[1\bar{1}0]$ изгиб плоскостей тоже есть (он появляется в верхней части сверхструктуры $InGaAs-GaAs$), но масштаб искажений существенно меньше и нет признаков дополнительного латерального упорядочения КТ. Форма ростовой поверхности в верхней части сверхструктуры $InGaAs-GaAs$ становится анизотропной — гофрированной, подобной черепице. Гребни такой структуры направлены вдоль оси $[1\bar{1}0]$.

Полученные данные позволяют утверждать, что процесс релаксации упругих напряжений в совершенной многослойной структуре с КТ проходит несколько последовательных стадий. Пространственное упорядочение КТ следует рассматривать как начальную адаптационную стадию релаксации упругих напряжений [20,21]. Следующая стадия процесса — изгиб кристаллографических плоскостей, и лишь после этого начинается генерация структурных дефектов. По-видимому, уже на стадии изгиба кристаллографических плоскостей и пространственного искажения ростовой поверхности возникают

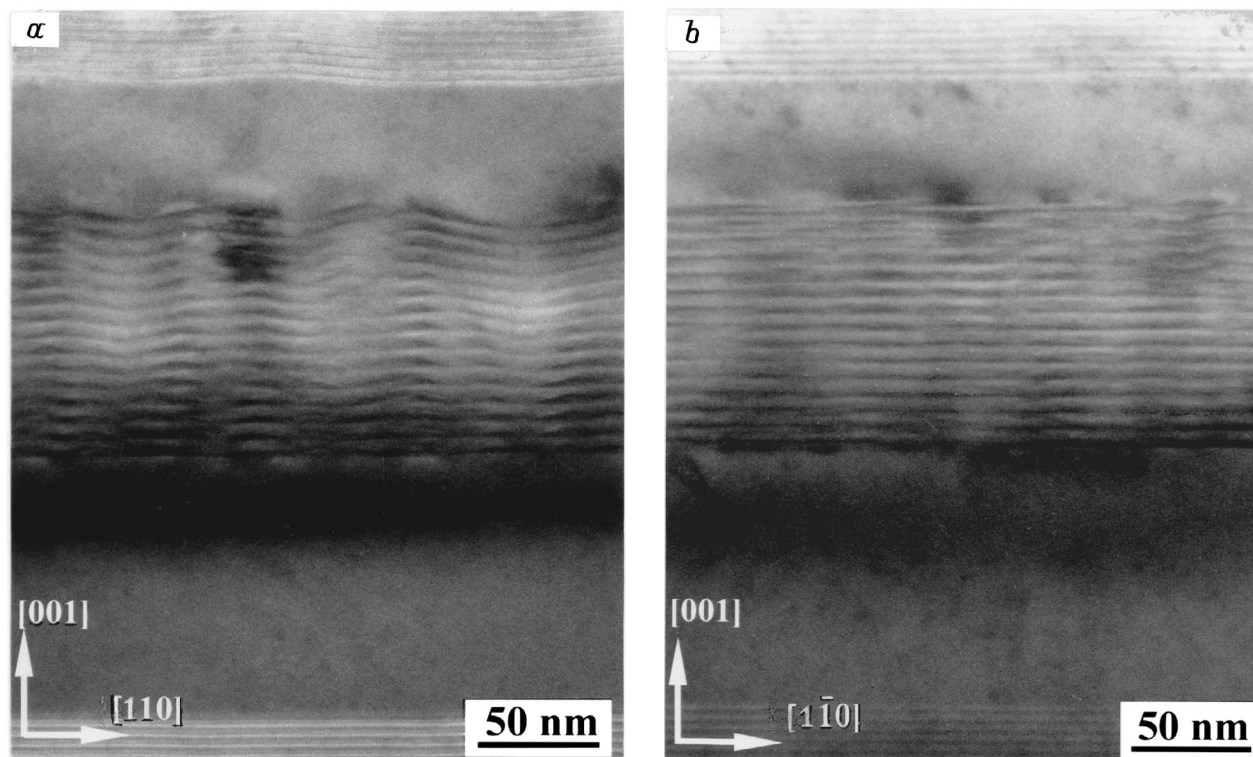


Рис. 4. Электронно-микроскопические изображения структуры 2 в геометрии поперечного сечения для направлений оси зоны $[110]$ (a) и $[1\bar{1}0]$ (b), полученные в режиме светлого поля (002).

условия для генерации точечных дефектов [24,30], которые аккумулируются на границах слоев в кластеры, а затем трансформируются в протяженные дефекты дислокационного типа.

В исследованной структуре релаксационные искажения ростовой поверхности, накопившиеся в сверхструктуре с КТ InGaAs, наследуются вышележащим слоем GaAs (толщиной 45 нм) [31]. Так как величина накопленных упругих напряжений на верхней границе слоя КТ InGaAs не превысила критических значений, они не приводят к генерации протяженных структурных дефектов и появлению дополнительных локальных напряжений, влияющих на условия эпитаксиального роста. Поэтому в структуре сохраняются условия для последующего бездефектного зарастивания напряженной сверхрешетки с КТ. Более того, рост слоя GaAs в оптимальных условиях (это также касается и роста слоев AlAs) может привести к тому, что локальные упругие напряжения в слое начнут постепенно уменьшаться. Соответственно уменьшится и изгиб кристаллографических плоскостей. Так как в данной структуре толщина слоя GaAs невелика, упругие напряжения, уменьшаясь по величине, должны сохраниться вплоть до его верхней границы. Соответственно останется и обусловленный ими изгиб кристаллографических плоскостей, который затем перейдет в изгиб плоскостей в сверхструктуре AlAs–GaAs. При этом величина структурных искажений и характер их распределения еще достаточно велики для

того, чтобы заметить наличие искажений, установить их тип и анизотропию их пространственного распределения (см. рис. 3 и 4).

В структуре 1, в которой число слоев с КТ в 1.5 раза меньше, а толщина верхнего слоя GaAs на порядок больше по сравнению со структурой 2, изгиб кристаллографических плоскостей, “унаследованный” этим слоем, практически не влияет на характер пространственного упорядочения дифрагированного излучения вблизи пятна (004)GaAs (см. рис. 2). По-видимому, при оптимальных условиях эпитаксиального роста такой толщины слоя арсенида галлия достаточно для полной релаксации упругих напряжений, инициированных нижележащей многослойной структурой InAs–GaAs — конечно, при условии, что уровень упругих напряжений на верхней границе сверхструктуры InAs–GaAs и соответственно плотность и размер индуцированных ими структурных дефектов не превышают того критического уровня, начиная с которого они уже заметно влияют на условия эпитаксиального роста и структурное совершенство вышележащих эпитаксиальных слоев [31].

3.2. Результаты электронно-микроскопических исследований

Результаты, полученные методом электронной микроскопии, однозначно подтверждают данные рентгенодифракционных и CTR-исследований. На рис. 4, a, b

представлены два электронно-микроскопических изображения, полученных в геометрии поперечного сечения образца 2 методом светлого поля в отражении (200) для двух азимутальных направлений падающего пучка — $[110]$ и $[1\bar{1}0]$ соответственно. Микрофотография на рис. 4, *a* представляет собой привычное изображение многослойной структуры, содержащей вертикально упорядоченные квантовые точки. Четко прослеживаются определенные особенности структуры: планарная нижняя граница, слои вертикально упорядоченных КТ, изгиб кристаллографических плоскостей. Необычный контраст в изображении промежуточных слоев GaAs, обусловленный нарушениями планарности ростовой поверхности вследствие изгиба кристаллографических плоскостей, четко виден после 6–7 слоев КТ, подтверждая данные рентгенодифракционных исследований [13]. Изображения в геометрии поперечного сечения не позволяют оценить латеральное упорядочение КТ, наблюдаемое на рентгенодифракционных картинах. Тем не менее полученные изображения достаточны для того, чтобы четко проследить, как структурные искажения, обусловленные многослойной структурой с КТ, (изгиб кристаллографических плоскостей) проходят от сверхструктуры InGaAs–GaAs вверх и, несколько уменьшенные, отчетливо проявляются в изображении границ слоев верхней сверхструктуры AlAs–GaAs.

Микрофотография, полученная для направления $[110]$ (рис. 4, *b*), существенно отличается от предыдущей. Общее в электронно-микроскопических картинах — планарная нижняя граница сверхструктуры InGaAs–GaAs. Однако изображение слоев с КТ и самих КТ существенно отличается от фотографии со скола $(1\bar{1}0)$ и более похоже на электронно-микрофотографическое изображение эпитаксиальных слоев в структурах, выращенных с заметными отклонениями от планарных условий роста [25,32]. Вертикальное упорядочение КТ с трудом прослеживается лишь в некоторых местах, нет четко выраженного изгиба кристаллографических плоскостей. В верхней части периодической структуры InGaAs–GaAs заметны нарушения планарности слоев, но эти изменения нерегулярны, что более характерно для начальной стадии релаксации упругих напряжений в планарных структурах [25]. Отсутствуют признаки латерального упорядочения КТ, что хорошо коррелирует с СТР-данными (см. рис. 2, *a* и 3, *a*). Нижняя граница верхней сверхструктуры AlAs–GaAs, фрагмент которой виден на рис. 4, *b* сверху, практически планарна.

3.3. Обсуждение результатов

Анализ данных ПЭМ подтверждает правильность выводов, сделанных по результатам рентгенодифракционных и СТР-измерений. Процессы пространственного (вертикального и латерального) упорядочения КТ, приводящие к изгибу кристаллографических плоскостей и квазипериодическому перераспределению упру-

гих напряжений, оказались существенно анизотропными относительно кристаллографических направлений типа $[110]$. Это характерно для начальной стадии процесса релаксации упругих напряжений и обусловлено полярностью кристаллографических плоскостей семейства $\{110\}$ [26,32,33]. В результате “релаксационного упорядочения” в многослойной периодической структуре образуется дополнительная пространственная сверхструктура КТ, которая формируется постепенно по мере накопления в слоях упругих напряжений, привнесенных квантовыми точками. Вследствие полярности кристаллографических плоскостей семейства $\{110\}$ скорость и характер дополнительного пространственного упорядочения КТ (вертикального и латерального) оказались существенно разными для двух взаимно перпендикулярных кристаллографических направлений $[110]$ и $[1\bar{1}0]$.

В результате этого в верхней части сверхструктуры In(Ga)As–GaAs (начиная с 6–7 пар слоев) кристаллографические плоскости становятся гофрированными, приобретают форму черепицы. Гребни и долины этой черепицы направлены вдоль оси $[1\bar{1}0]$. Квантовые точки в основном располагаются в гребнях черепицы, образуя некое подобие квантовых проволок (квантовые квази-проводаки), дискретно заполненных квантовыми точками In(Ga)As. Дискретность заполнения квантовых квази-проводов определяется средними размерами КТ In(Ga)As и расстоянием между ними. Дальнего порядка в расположении КТ в гребнях нет. Поэтому некоторый изгиб кристаллографических плоскостей (110) , заметный в верхней части структуры In(Ga)As–GaAs (см. рис. 4, *b*), не имеет признаков периодичности. Четкие признаки дальнего упорядочения прослеживаются в направлении $[110]$, перпендикулярном гребням (квантовым проволокам). В результате гребни (квази-проводаки) располагаются на приблизительно одинаковом расстоянии друг от друга (~ 70.0 нм).

Особенности рельефа кристаллографических плоскостей наследуются вышележащими слоями, не содержащими КТ. При этом, уменьшаясь по амплитуде, анизотропный изгиб кристаллографических плоскостей сохраняется при удалении от периодической структуры InGaAs–GaAs на расстояние в десятки нанометров.

Нарушения рельефа ростовой поверхности наблюдаются при релаксации упругих напряжений и в планарных гетероструктурах, выращенных с отклонением от оптимальных двумерных ростовых условий [32,33]. Однако в планарных структурах, выращиваемых на точно ориентированных подложках, в отсутствие КТ труднее создать условия для формирования пространственно упорядоченной структуры ростовой поверхности. Даже при наличии КТ процесс формирования гофрированной ростовой поверхности является неустойчивым и легко нарушается с появлением в структуре протяженных дефектов [22].

4. Заключение

Методами рентгеновской и синхротронной дифрактометрии и просвечивающей электронной микроскопии показано, что в совершенных многослойных структурах, содержащих КТ, процесс пространственного упорядочения КТ, сопровождаемый изгибом кристаллографических плоскостей и перераспределением упругих напряжений, существенно анизотропен относительно кристаллографических направлений типа [110], что обусловлено полярностью кристаллографических плоскостей этого типа.

Показано, что анизотропное вертикальное и латеральное упорядочение КТ, сопровождаемое анизотропным изгибом кристаллографических плоскостей, является начальными стадиями процесса релаксации упругих напряжений, привнесенных в структуру квантовыми точками. В результате этого кристаллографические плоскости оказываются гофрированными подобно черепице.

Показано, что кристаллографические плоскости изогнуты в направлении [110], тогда как гребни черепицы направлены вдоль $[1\bar{1}0]$. Начиная с некоторой толщины (с некоторого числа пар слоев в сверхструктуре с КТ), расстояние между гребнями в направлении [110] обнаруживает явные признаки дальнего упорядочения. Заполненные квантовыми точками, гребни образуют некое подобие квантовых проволок. В расположении квантовых точек вдоль гребней четких признаков дальнего упорядочения нет.

Показано, что изгиб кристаллографических плоскостей наследуется вышележащими слоями. При оптимальных двумерных условиях роста изгиб плоскостей постепенно уменьшается по амплитуде по мере удаления от упруго напряженной области. В перпендикулярном направлении $[1\bar{1}0]$ структурные искажения имеют иной характер, а изгиб интерфейсов существенно меньше по величине.

Один из авторов (Н. Фалеев) выражает свою искреннюю признательность В.И. Пунегову за интерес к работе и плодотворные обсуждения.

Работа выполнена частично в рамках научной программы "Monbusho Project "Venture Business Laboratory" в Государственном университете Нагойи (Япония) и частично поддержана грантом Daiko Foundation. Работа также поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований и ИНТАС, программой Министерства науки РФ "Физика твердотельных наноструктур".

Список литературы

[1] Y. Arakawa, H. Sakaki. Appl. Phys. Lett., **40**, 939 (1982).
 [2] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. LeRoux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
 [3] Y. Arakawa, A. Yariv. IEEE J. Quant. Electron., **QE-22**, 1887 (1986).

[4] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu. IEEE J. Quant. Electron., **QE-22**, 1915 (1986).
 [5] *Semiconductors and Semimetals*, v. 40: *Epitaxial Microstructures*, ed. by A.C. Gossard (Academic Press, Boston, 1994).
 [6] *Nanostructures and Quantum Effects*, ed. by H. Sakaki, H. Noge (Springer Verlage, Berlin, 1994).
 [7] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 385 (1998).
 [8] S.V. Zaitsev, N. Yu. Gordeev, Yu.M. Sherniakov, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, N. Kirstaedter, D. Bimberg. *Proc. 9th Int. Conf. Superlattices, Microstructures and Microdevices* (Liege, 1996); А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, С.В. Зайцев, Н.Ю. Гордеев, П.С. Копьев, Д. Бимберг, Ж.И. Алфёров. ФТП, **31**, 483 (1997).
 [9] V. Holy. A.A. Darhuber, G. Bauer, P.D. Wang, Y.P. Song, C.M. Sotomayor Torres, M.C. Holland. Phys. Rev. B, **52**, 8348 (1995).
 [10] A.A. Darhuber, E. Koppensteiner, H. Straub, G. Brunthaler, W. Faschinger, G. Bauer. J. Appl. Phys., **76**, 7816 (1994).
 [11] A.A. Darhuber, V. Holy, J. Stangl, G. Bauer, A. Krost, F. Heinrichsdorff, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, A.O. Kosogov, P. Werner. Appl. Phys. Lett., **70**, 955 (1997).
 [12] A.A. Darhuber, P. Schittenhelm, V. Holy, J. Stangl, G. Bauer, G. Abstreiter. Phys. Rev. B, **55**, 15 652 (1997).
 [13] N. Faleev, K. Pavlov, M. Tabuchi, Y. Takeda. Japan. J. Appl. Phys., **38**, 818 (1999).
 [14] N. Faleev, K. Pavlov, M. Tabuchi, Y. Takeda. Japan. J. Appl. Phys., **38**, Suppl. 38-1, 277 (1999).
 [15] K. Pavlov, N. Faleev, M. Tabuchi, Y. Takeda. Japan. J. Appl. Phys., **38**, Suppl. 38-1, 269 (1999).
 [16] Н.Н. Фалеев, К.М. Павлов, В.И. Пунегов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, С.С. Михрин, В.М. Устинов, М. Табуچی, Y. Takeda. ФТП, **33**, 1359 (1999).
 [17] S. Rouvimov, Z. Liliental-Weber, W. Swider, J. Washburn, E.R. Weber, A. Sasaki, A. Wakahara, Y. Furkawa, T. Abe, S. Noda. J. Electron. Mater., **27**, 427 (1998).
 [18] A.R. Kovsh, A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, V.M. Ustinov, Yu.M. Shernyakov, M.V. Maximov, V.V. Volovik, A.E. Tsatsul'nikov, Yu.G. Musikhin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. J. Cryst. Growth, **201/202**, 1117 (1999).
 [19] J. Tersoff, C. Teichert, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., **76**, 1675 (1996); C. Teichert, M.G. Lagally, L.J. Peticolas, J.C. Bean, J. Tersoff. Phys. Rev. B, **53**, 16 334 (1996).
 [20] I.P. Ipatova, V.G. Malyshev, V.A. Shchukin. J. Appl. Phys., **74**, 7198 (1993).
 [21] V.A. Shchukin, A.I. Borovkov, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev. Phys. Rev. B, **51**, 17 767 (1995).
 [22] E. Carlino, L. Tapfer, H. von Kanel. Appl. Phys. Lett., **69**, 2546 (1996).
 [23] K. Shiramine, Y. Horisaki, D. Suzuki, S. Itoh, Y. Ebiko, S. Muto, Y. Nakata, N. Yokoyama. Japan. J. Appl. Phys., **37**, 5493 (1998).
 [24] В.Г. Груздов, А.О. Косоогов, Н.Н. Фалеев. Письма ЖТФ, **20** (14), 1 (1994).
 [25] A. Ponchet, A. Rocher, A. Ougazzaden, A. Mircea. J. Appl. Phys., **75**, 7881 (1994); A. Ponchet, A. Le Corre, A. Godefroy, S. Salaun, A. Poudoulec. J. Cryst. Growth, **153**, 71 (1995).

- [26] R.L. Headrick, J.-M. Baribeau, Y.E. Strausser. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 96 (1995).
- [27] T. Shimura, J. Harada. *J. Appl. Crystallogr.*, **26**, 151 (1993).
- [28] N. Faleev, L. Grave de Peralta, H. Temkin, V.M. Ustinov. *Abstracts X-TOP 2000* (Warsaw, 2000) S4.3.
- [29] N. Faleev, T. Kawamura, Y. Watanabe, V. Ustinov. *Abstracts X-TOP 2000* (Warsaw, 2000) P2-HG139.
- [30] L. Dong, J. Schnitker, R.W. Smith, D.J. Srolovitz. *J. Appl. Phys.*, **83**, 217 (1998).
- [31] N. Faleev, R. Stabenow, M. Sinitsyn, B. Yavich, A. Haase, A. Grudsky. *Matter. Sci. Forum*, **166–169**, 293 (1994).
- [32] A. Ponchet, A. Rocher, J.-Y. Emery, C. Starck, L. Goldstein. *J. Appl. Phys.*, **77**, 1977 (1995).
- [33] Z.H. Ming, Y.L. Soo, S. Huang, Y.H. Kao, K. Stair, G. Devane, C. Choi-Feng. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 165 (1995).

Редактор Л.В. Шаронова

X-ray and synchrotron diffraction and transmission electron microscopy studies of anisotropy of spatial distribution of In(Ga)As quantum dots in In(Ga)As–GaAs multilayer heterostructures

N.N. Faleev*, Yu.G. Musikhin, A.A. Suvorova, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, M. Tabuchi†, Y. Takeda†

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia

* Present address — Electrical Engineering
Department, Texas Tech University, Lubbock, Texas,
79409, USA

† Department of Materials Science and Engineering,
Nagoya University,
464-8603 Nagoya, Japan

Abstract High resolution x-ray and synchrotron (Crystal Truncation Rods) diffraction methods and transmission electron microscopy have been used for the investigation of multilayer periodical In(Ga)As–GaAs heterostructures containing self-assembled vertically coupled quantum dots (QDs) of In(Ga)As in matrix of GaAs, grown by molecular beam epitaxy. It has been shown that in crystalline perfect structures there is an additional spatial ordering of QDs. This ordering leads to the waviness of crystalline planes and results in a quasi-periodical distribution of the elastic deformation. The ordered system of QDs is essentially anisotropic in regard to crystallographic directions of [110] type. The anisotropy of ordered system of QDs can be explained if we suggest that spatial ordering of QDs and waviness of crystalline planes are the early stages of the process of relaxation of elastic deformation, introduced in the system by QDs.

It has been shown that an anisotropic relief of crystalline planes (the corrugation of the growth surface) is a result of an appearance of the system of spatially ordered quantum quasi-wires that are homogeneously filled by QDs. It is shown that in a multilayer perfect heterostructure the corrugation of crystallographic planes is "inherited" by upper layers free of QDs.