

## ХАРАКТЕРИСТИКИ ДИСЛОКАЦИОННЫХ СВЕРХРЕШЕТОК В ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ БИКРИСТАЛЛАХ ХАЛЬКОГЕНИДОВ СВИНЦА

*И. Ф. Михайлов, Б. А. Савицкий, А. Ю. Сипатов,  
А. И. Федоренко, Л. П. Шпаковская*

Рассчитаны усредненные значения амплитуд модуляции структурного фактора и межплоскостных расстояний кристаллических решеток халькогенидов свинца регулярными сетками дислокаций несоответствия. Рассмотрены возможности однородной модуляции кристаллических решеток многослойных эпитаксиальных структур «многостажными» сетками дислокаций несоответствия.

Наблюдение дифракционных эффектов на регулярных сетках дислокаций несоответствия [1-4] показало возможность формирования дислокационных сверхрешеток в кристаллах. Как показано в [4], регулярные дислокационные системы могут быть сформированы несколькими способами, например путем эпитаксиального наращивания одного вещества на поверхности другого при несоответствии периодов их решеток более ~3% или путем спекания двух частей одного и того же кристалла, разориентированных относительно друг друга на некоторый угол, и др. Периодические дислокационные системы могут легко обеспечить период сверхрешетки в диапазоне ~2—20 нм, который представляет значительный интерес с позиций технических приложений сверхрешеточных эффектов. Однако вопрос о практическом использовании дислокационных сверхрешеток остается открытым до выяснения их природы и в первую очередь характера возмущений, вносимых регулярными сетками дислокаций в кристаллические решетки веществ. В связи с этим в задачу данной работы входило изучение таких характеристик дислокационных сверхрешеток, как амплитуды модуляции структурного фактора и межплоскостных расстояний сопряженных кристаллических решеток, т. е. характеристик, которые в значительной степени определяют сверхрешеточный потенциал.

Объектами исследования служили бикристаллы халькогенидов свинца, на (001) границах раздела которых были сформированы регулярные сетки краевых дислокаций несоответствия со средним междислокационным расстоянием  $D$ , равным ~5.5 нм (PbS/PbTe), ~8.6 нм (PbSe/PbTe) и ~14 нм (PbS/PbSe). Механизм формирования и характеристики сеток дислокаций несоответствия на (001) и (111) границах раздела бикристаллов халькогенидов свинца хорошо изучены и описаны в работах [5-7].

Эпитаксиальные бикристаллы в ориентации (001) были приготовлены осаждением слоя одного из халькогенидов свинца толщиной 40—50 нм на поверхность (001) KCl и последующего нанесения пленки другого халькогенида толщиной 3—20 нм на поверхность первого халькогенидного слоя при температуре ~600 К в вакууме ~ $10^{-3}$  Па. После отделения от подложки KCl в дистиллированной воде халькогенидные бикристаллы изучались в электронном микроскопе ЭМВ-100 АК и на рентгеновском дифрактометре ДРОН-2 в излучении  $\text{Cu-K}_\alpha$ . Измерение интенсивности

Брэгговских отражений (220) и (440) и сопутствующих им сателлитов производилось с помощью стандартной методики съемок электронограмм с кратными экспозициями и фотометрирования всех рефлексов на линейном участке кривой почернения.

Расчет полей напряжения, создаваемых сетками дислокаций несоответствия у границы раздела многослойных эпитаксиальных пленок, произво-

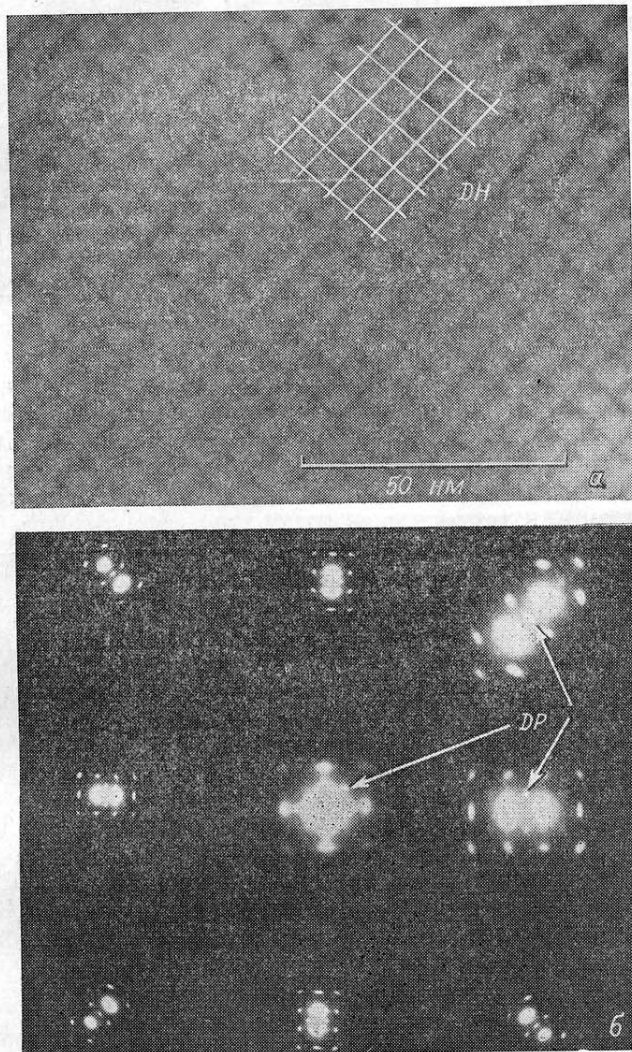


Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение (а) и электронограмма (б) бикристалла PbTe/PbS.

DN — сетка дислокаций несоответствия, DR — дислокационные рефлексы.

дился на ЭВМ ЕС-1033 по методике [8-9] с учетом анизотропии и индивидуальных упругих модулей сопряженных кристаллов.

Типичное изображение и электронограмма эпитаксиального бикристалла двух халькогенидов свинца в ориентации (001) представлены на рис. 1, а, б. Сверхрешетка из чисто краевых дислокаций несоответствия с векторами Бюргера типа  $a/2 [110]$  и  $a/2 [\bar{1}\bar{1}0]$  (рис. 1, а) проявляется на дифракционной картине бикристалла в виде рефлексов — сателлитов (DR) на рис. 1, б, сопутствующих всем основным отражениям ( $hkl$ ) пленки и подложки и нулевому пучку (000) электронов. Сущность дислокацион-

ной сверхрешетки заключается в периодическом поле напряжений, которое регулярная сетка или ряд дислокаций создают в прилегающих к границе раздела слоях толщиной  $\sim D$  сопряженных кристаллов [9]. Дифракционная картина эпитаксиальных бикристаллов халькогенидов свинца свидетельствует о том, что периодическое поле дислокационных напряже-

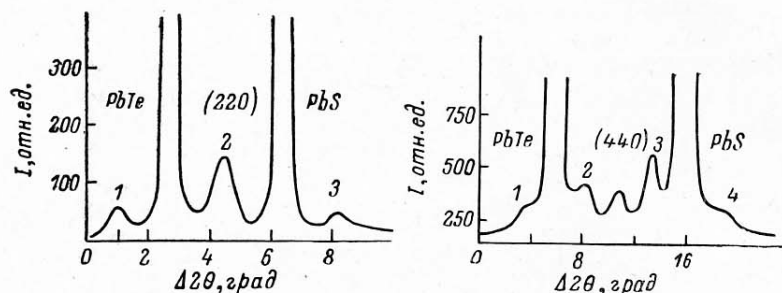


Рис. 2. Дифрактограммы бикристалла PbTe/PbSe в отражении (220) и (440).  
1-4 — рефлексы-спутники.

ний модулирует как период, так и электронную плотность пленки и подложки. Закон модуляции решеток дислокационной сеткой близок к синусоидальному, который представляется одной гармоникой. На это указывает малое число спутничных рефлексов. Фактически отчетливо наблюдается только первый порядок спутников, как показано на электроно-

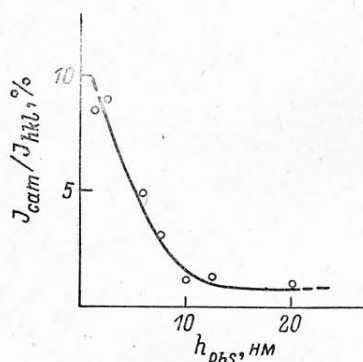


Рис. 3. Зависимость относительной интенсивности  $I_{\text{сат}}/I_{hkl}$  от толщины  $h$  эпитаксиального слоя PbS в бикристалле PbS/PbTe.  
 $I_{\text{сат}}$  — интенсивность спутника,  $I_{hkl}$  — интенсивность рефлекса (220) PbS.

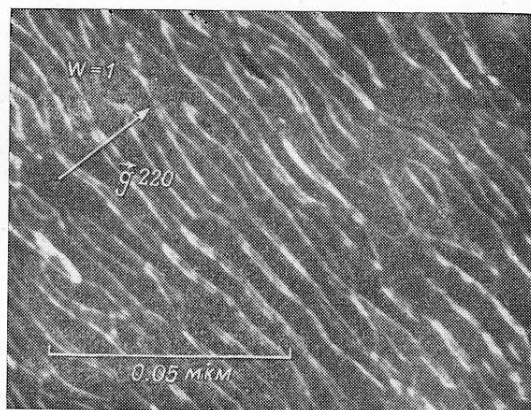


Рис. 4. Электронно-микроскопическое изображение диполей в трехслойной системе PbS/PbSe/PbS.  
Толщина пленки PbSe  $h_b \sim 40$  Å.

грамме (рис. 1, б) и рентгенодифрактограммах (рис. 2) бикристалла PbTe/PbSe.

Обусловленные регулярной дислокационной сеткой напряжения и другие деформации быстро затухают при удалении от границы раздела эпитаксиального бикристалла [8]. Поэтому амплитуда модуляции сопряженных решеток имеет существенное значение только в прилегающих к сетке дислокаций слоях пленки и подложки толщиной  $\leq 0.5 D$ . Об этом свидетельствует зависимость отношения интенсивностей спутничных и основных рефлексов пленки от ее толщины (рис. 3).

Относительная интенсивность спутничных рефлексов может быть

Значения интенсивности спутников  $I_{\text{сат}}/I_{hkl}$ , амплитуд модуляции структурного фактора  $\Delta F/F$  и межплоскостных расстояний  $\Delta d/d$  для бикристалла PbTe/PbSe

| №№ образца | $I_{\text{сат}}/I_{hkl}$ , % (220) |     |      | $I_{\text{сат}}/I_{hkl}$ , % (440) |     |      |      | PbTe         |                           | PbSe         |                           |       |
|------------|------------------------------------|-----|------|------------------------------------|-----|------|------|--------------|---------------------------|--------------|---------------------------|-------|
|            | № рефлекса                         |     |      |                                    |     |      |      | $\Delta F/F$ | $(\Delta d/d) \cdot 10^3$ | $\Delta F/F$ | $(\Delta d/d) \cdot 10^3$ |       |
|            | 1                                  | 2   | 3    | 1                                  | 2   | 3    | 4    |              |                           |              |                           |       |
| 1          | Эксперимент                        | 1.3 | 7.8  | 1.0                                | 3.5 | 13.0 | 13.0 | 2.9          | $0.215 \pm \pm 0.060$     | -2.28        | $0.205 \pm \pm 0.060$     | 2.28  |
|            | Теория                             | 2.9 | 13   | 2.5                                | 1.7 | 9.0  | 9.0  | 1.2          |                           |              |                           |       |
| 2          | Эксперимент                        | 2.2 | 17   | 3.5                                | 2.2 | 15.0 | 17.0 | 2.9          | $0.24 \pm \pm 0.02$       | -3.49        | $0.265 \pm \pm 0.025$     | 2.685 |
|            | Теория                             | 3.0 | 19.6 | 4.3                                | 1.2 | 13.7 | 14.3 | 2.3          |                           |              |                           |       |
| 3          | Эксперимент                        | 2.5 | 19   | 3.5                                | 1.3 | 8.0  | 10.5 | 1.6          | $0.21 \pm \pm 0.02$       | -3.215       | $0.235 \pm \pm 0.010$     | 2.615 |
|            | Теория                             | 2.3 | 16   | 3.3                                | 0.8 | 10.8 | 11.9 | 1.6          |                           |              |                           |       |

рассчитана с помощью теории рассеяния рентгеновских и электронных волн модулированными кристаллами [10, 11] при условии, что известны данные о характере модуляции решетки: период и амплитуды изменения межплоскостных расстояний  $\Delta d/d$  и структурного фактора  $\Delta F/F$ , закон модуляции. В данной работе амплитуды модуляции  $\Delta d/d$  и  $\Delta F/F$  халькогенидов дислокационных сверхрешетками были оценены, используя экспериментальные значения интенсивности спутников и периода  $D$  дислокационной сетки, а также следующие предположения. Бикристалл представлен как два независимо рассеивающих кристалла, на поверхности сопряжения которых нанесена периодическая «штриховка» из дислокаций. Спутники обусловлены рассеянием в слое, прилегающем в каждом кристалле к дислокационной сетке и имеющем толщину, равную расстоянию  $D$  между дислокациями. Этот слой однороден по нормали к границе раздела бикристалла, а вдоль нее межплоскостное расстояние и электронная плотность описывается периодической функцией с периодом  $D$ . При съемках «на просвет», когда дифракционный вектор лежит в плоскости межфазной границы и параллелен одному из рядов дислокаций квадратной дислокационной сетки, удобно воспользоваться решением задачи для интенсивности спутников при рассеянии волн решеткой с одномерной периодической неоднородностью [11]. При этом интенсивность спутников определяли по отношению к интенсивности соответствующего рефлекса ( $hkl$ ) пленки путем экстраполяции зависимости  $I_{\text{сат}}/I_{hkl}$  (рис. 3) на толщину пленки  $h=D$ . Результаты расчета  $\Delta d/d$  и  $\Delta F/F$  для бикристаллов PbTe/PbSe представлены в таблице.

Оказалось, что основной вклад в формирование спутников дислокационной сверхрешеткой вносит модуляция электронной плотности сопряженных кристаллов, амплитуда которой даже после усреднения ее по слою толщиной  $\sim D$  достигает значительной величины ( $\Delta F \sim 0.2 F$ ). Усредненная модуляция межплоскостных расстояний  $\Delta d/d$  сопряженных кристаллов невелика ( $\sim 2 \cdot 10^{-3}$ ) и находится в противофазе в верхнем и нижнем кристаллах, что соответствует знаку напряжений, создаваемых дислокациями несоответствия в пленке и подложке. Совпадение фаз модуляции  $\Delta F/F$  в пленке и подложке и резкое различие амплитуд модуляции  $\Delta F/F$  и  $\Delta d/d$  указывает на возможность перераспределения элементов, входящих в состав халькогенидов свинца, под действием дислокационных напряжений по крайней мере вблизи ядер дислокаций несоответствия. Отметим, что профиль  $F$  и  $d$  характеризуется одной гармоникой  $k \sin x$ . Поэтому одинаковый знак  $k$  для пленки и подложки свидетельствует о совпадении фаз модуляции.

Проведенный оценочный расчет показал, что регулярная сетка дислокаций несоответствия производит достаточно мощное периодическое возмущение электронной плотности сопряженных кристаллов, чтобы его



можно было использовать для реализации электронных сверхрешеточных эффектов.

Главным недостатком дислокационных сверхрешеток является неоднородность амплитуды модуляции решеточных характеристик в слоях толщиной  $\sim D$ , прилегающих к сетке дислокаций. Казалось бы, что этот недостаток можно исправить при формировании многослойных эпитаксиальных пленок путем последовательного нанесения слоев двух веществ толщиной меньше  $D$ . Тогда при расположении дислокаций несоответствия противоположных знаков друг над другом на соседних границах раздела удалось бы существенно снизить неоднородность модуляции слоев за счет суперпозиции напряжений дислокационных сеток, ограничивающих с двух

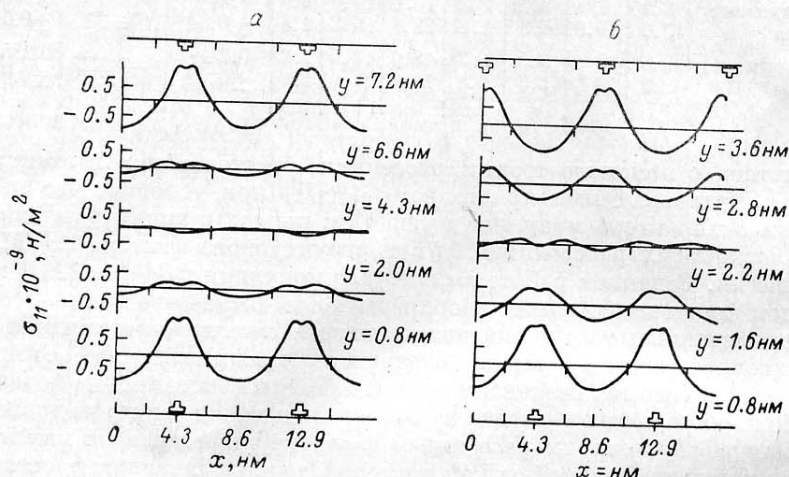


Рис. 5. Распределение дислокационных напряжений по толщине  $h_b$  среднего слоя PbTe в трехслойной композиции PbSe/PbTe/PbSe.

$a - h_b = D, b - h_b = D/2.$

сторон внутренние слои композиции. Однако эксперимент показал (рис. 4), что при толщине внутренних слоев многослойной пленки  $h_b < D$  дислокации несоответствия на соседних границах раздела смещаются друг относительно друга в горизонтальной плоскости на расстояние  $h_b$  вследствие отталкивания дислокаций с противоположными векторами Бюргерса [12]. Избежать эффекта рассогласования дислокационных сверхрешеток на границах раздела многослойной пленки можно только при  $h_b \geq D$ , когда касательные напряжения от дислокаций несоответствия на соседних межфазных поверхностях не перекрываются в середине внутренних слоев композиции. Однако в этом случае не достигается и суперпозиция нормальных напряжений дислокаций несоответствия, расположенных на соседних границах раздела, а следовательно, не устраняется главный недостаток дислокационных сверхрешеток.

Оптимальными вариантами изготовления дислокационных сверхрешеток является многослойная композиция с толщиной слоев  $h_b = D$  и  $h_b = D/2$ , для которой распределение напряжений во внутренних слоях композиции проиллюстрировано на рис. 5 на примере трехслойной пленки PbSe/PbTe/PbSe. Очевидно, что в этих двух вариантах наряду с наилучшими условиями для взаимного согласования в расположении дислокаций несоответствия на соседних границах раздела композиции достигается большое значение относительного объема пленки, замодулированного дислокационными напряжениями со значительной амплитудой (рис. 5).

Таким образом, проведенные в работе исследования и вычисления показали новые возможности для периодической модуляции кристаллических решеток материалов с помощью формирования регулярных дислокационных систем.

### Литература

- [1] K. Yagi, K. Takayanagi, G. Honjo. J. Phys. Soc. Japan, 32, 1445, 1972.
- [2] Л. С. Палатник, А. И. Федоренко, Б. А. Савицкий, Л. П. Шпаковская. ДАН СССР, 236, 87, 1977.
- [3] D. Cherns. Thin Sol. Films, 48, 385, 1978.
- [4] L. S. Palatnik, A. I. Fedorenko. J. Cryst. Growth, 52, 917, 1981.
- [5] K. Yagi, K. Takayanagi, K. Kobayashi, G. Honjo. J. Cryst. Growth, 9, 84, 1971.
- [6] K. Takayanagi, K. Kobayashi, K. Yagi, G. Honjo. Thin Sol. Films, 21, 325, 1974.
- [7] K. Yagi, K. Takayanagi, J. Matsushita, G. Honjo. J. Cryst. Growth, 24/25, 307, 1974.
- [8] Л. А. Пастур, Э. П. Фельдман. ФТТ, 14, 2689, 1972.
- [9] И. Ф. Михайлов, Б. А. Савицкий, А. Ю. Сипатов, А. И. Федоренко, Л. П. Шпаковская. Кристаллография, 26, 792, 1981.
- [10] А. Вильсон. Оптика рентгеновских лучей. М., ИЛ, 1951.
- [11] Л. С. Палатник, А. А. Козьма, И. Ф. Михайлов, В. Н. Маслов. Кристаллография, 23, 570, 1978.
- [12] Дж. Хирт, И. Лоте. Теория дислокаций. М., Атомиздат, 1972.

Харьковский политехнический институт  
им. В. И. Ленина

Поступило в Редакцию  
6 сентября 1982 г.  
В окончательной редакции  
8 декабря 1982 г.