

УДК 548.73

БОРИСОВА С. С., МИХАЙЛОВ И. Ф., СИПАТОВ А. Ю.,
ШПАКОВСКАЯ Л. П.АСИММЕТРИЯ САТЕЛЛИТОВ БРЭГГОВСКИХ ОТРАЖЕНИЙ
И ХАРАКТЕРИСТИКИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЭЛЕКТРОННОЙ
ПЛОТНОСТИ В ОДНОМЕРНЫХ СВЕРХРЕШЕТКАХ

На примере многослойных периодических структур на основе халькогенидов свинца и европия показано, что асимметрия интенсивности сателлитов брэгговских отражений является общей характеристикой рассеяния рентгеновского излучения одномерными сверхрешетками. Выявлен сдвиг фаз модуляции электронной плотности и периода решетки в системе EuS/PbS и занижение потенциального рельефа сверхрешетки по отношению к амплитуде модуляции ее периода.

Одномерные сверхрешетки — система с макроскопически модулированным потенциалом — для реализации ряда свойств должны иметь период (H) меньше длины свободного пробега электронов (≈ 10 нм). Структуру таких объектов изучают по картинам дифракции рентгеновских лучей. Особенностью таких картин является значительное различие интенсивности «левых» и «правых» сателлитов брэгговских отражений, причем асимметрия возрастает с уменьшением H . Этот эффект отмечался практически для любых сочетаний материалов как металлов, так и полупроводников [1–4]. Однако до сих пор предпринимались лишь отдельные попытки его интерпретации [1, 2]. В [1] качественно объяснен этот эффект сочетанием модуляции периода решетки и структурной амплитуды, когда эти величины изменяются в противофазе, например, в системе Cu—Al. Вместе с тем из теоретических представлений [1] следует, что при уменьшении периода H сверхрешетки вклад модуляции $\delta d/d$ периода кристаллической решетки в интенсивность сателлитов падает $\sim H^2$, в то время как вклад модуляции электронной плотности $\delta F/F$ остается неизменным. Поскольку асимметрия сателлитов определяется соотношением этих величин, то она должна меняться с изменением H . Имеется принципиальная возможность разделения вкладов модуляции периода решетки и электронной плотности и анализа этих характеристик по мере уменьшения толщины слоев вплоть до нескольких межплоскостных расстояний.

Цель работы — сопоставление характеристик модуляции электронной плотности и межплоскостного расстояния в сверхтонких слоях по асимметрии сателлитов брэгговских отражений многослойных полупроводниковых систем.

В качестве объектов исследования выбраны многослойные структуры на основе халькогенидов свинца и европия, имеющие одинаковую кристаллическую структуру, но разные величины несоответствия межплоскостных расстояний сопрягаемых слоев f_0 и несоответствия структурных факторов α_0 (таблица). Причем в системе EuS/PbS межплоскостное расстояние и структурный фактор изменяются в противофазе: период больше там, где меньше электронов, и наоборот.

Номинальные параметры многослойных систем халькогенидов свинца и европия

Система	Несоответствие межплоскостных расстояний, $(f_0 = \Delta d / \langle d \rangle)$, %	Несоответствие структурных факторов, $(\alpha = \Delta F / 2 \langle F \rangle)$, %
EuS/PbS	0,57	10,7
PbSe/PbS	3,15	8,4
PbSe/PbTe	5,2	7,2

Образцы многослойных систем EuS/PbS, PbSe/PbTe и PbSe/PbS с периодами сверхрешетки $H=1-15$ нм и числом слоев от 20 до 200, полученные вакуумным осаждением на подложки KCl, исследовались на дифрактометре ДРОН-2 по схеме $\theta-2\theta$ -сканирования в медном излучении с применением вторичного монохроматора (кристалла графита).

Согласно [4], для многослойных кристаллов с кубической решеткой изменение периода решетки и структурной амплитуды можно представить в виде

$$d_n = \langle d \rangle + \sum_k [\alpha_k \cos(2\pi dnk/H) + \delta_k \sin(2\pi dnk/H)], \quad (1)$$

$$F_n = F \left(1 + \sum_k [\alpha_k \cos(2\pi dnk/H) + \beta_k \sin(2\pi dnk/H)] \right). \quad (2)$$

Положение n -ой плоскости (hkl) определяется

$$y_n = \sum_{p=1}^n d_p = n\langle d \rangle + \sum_k \sum_{p=1}^n (\alpha_k \cos(2\pi dnk/H) + \delta_k \sin(2\pi dnk/H)), \quad (3)$$

где $\delta_k, \alpha_k, \beta_k$ — k -ые амплитуды изменения в направлении y_1 , межплоскостного расстояния и структурной амплитуды.

В кинетическом приближении амплитуда отражения как функция координаты в обратном пространстве имеет вид [4]

$$\Phi(h') = \sum_n F_n \exp(2\pi i h' y_n / \langle d \rangle). \quad (4)$$

Подстановка (1) и (3) в (4) дает

$$\begin{aligned} \Phi(h') = & F \exp \left[\frac{2\pi i h'}{2d} \sum_k \left(-\alpha_k + \delta_k \operatorname{ctg} \frac{\pi dk}{H} \right) \right] \times \\ & \times \sum_n \left\{ \left[1 + 2 \sum_k \left(\alpha_k \cos \frac{2\pi dnk}{H} + \beta_k \sin \frac{2\pi dnk}{H} \right) \right] \exp(i2\pi n h') \times \right. \\ & \left. \times \exp i \sum_k \left(a_k \cos \frac{2\pi dnk}{H} + b_k \sin \frac{2\pi dnk}{H} \right) \right\}, \quad (5) \end{aligned}$$

где

$$a_k = \frac{\pi h'}{\langle d \rangle} \left[\alpha_k - \delta_k \operatorname{ctg} \frac{\pi dk}{H} \right], \quad b_k = \frac{\pi h'}{\langle d \rangle} \left[\alpha_k \operatorname{ctg} \frac{\pi dk}{H} + \delta_k \right]. \quad (6)$$

Мы не будем рассматривать в выражении (5) экспоненциальный множитель, независящий от n , поскольку он дает дополнительные осцилляции с большой длиной волны, а интенсивность этих осцилляций не влияет заметно на интенсивность сателлитов вблизи брэгговских отражений.

Относительная интенсивность рефлексов — сателлитов брэгговских отражений — может быть найдена по формулам [4], в которые в качестве аргументов функций Бесселя следует подставить выражения (6). Легко убедиться, что при $\pi d/H \ll 1$ уравнения (6) переходят в соответствующие формулы [4]. Используя матрицу относительной интенсивности сателлитов [4], можно получить выражение для асимметрии первых сателлитов в виде:

$$\begin{aligned} & \frac{S_1^+ - S_1^-}{S_1^+ + S_1^-} = \\ = & 2 \frac{A_{11}(1+B_{21})(A_{11}B_{12} - A_{12}B_{11} - \beta_1) - B_{11}(1+A_{12})(B_{11}B_{12} + A_{11}B_{12} + \alpha_1)}{B_{11}(1+A_{21})^2 + A_{11}^2(1+B_{21})^2 + (B_{11}B_{12} + A_{11}A_{12})^2 + (A_{11}B_{12} - A_{12}B_{11})^2 + \alpha_1^2 + \beta_1^2}, \quad (7) \end{aligned}$$

где $A_{ik} = \frac{I_i(a_k)}{I_0(a_k)}$; $B_{ik} = \frac{I_i(b_k)}{I_0(b_k)}$; S_1^+ и S_1^- — интенсивность первых сател-

литов, расположенных со стороны меньших и больших углов от основного рефлекса. Величина разности ($S_1^+ - S_1^-$) определяется как величиной и соотношением вторых гармоник (степень асимметрии профиля изменения периода решетки), так и произведением первых гармоник в разложении структурной амплитуды (α_i, β_i) на различные комбинации A_{ih} и B_{ih} . При больших значениях периода (H) сверхрешетки A_{ih} и B_{ih} , как правило, значительно превосходят по модулю величины α_i и β_i , независимые от H , поэтому соотношение интенсивности сателлитов определяется в основном асимметрией формы профиля изменения периода решетки. Но при $H \sim 2d$ значения аргументов функций Бесселя, пропорциональные H , становятся много меньше единицы. Следовательно, $A_{11} \approx 1/2 a_1$, $B_{11} \approx 1/2 b_1$, и формула (7) после отбрасывания членов типа a_i и b_i по сравнению с единицей приобретает вид

$$\frac{S_1^+ - S_1^-}{S_1^+ + S_1^-} = \frac{\pi \left[(f_1^b \alpha_1 - f_1^a \beta_1) + (f_1^b \beta_1 + f_1^a \alpha_1) \operatorname{ctg} \frac{\pi d}{H} \right]}{\frac{\pi^2}{4} [(f_1^a)^2 + (f_1^b)^2] \left(1 + \operatorname{ctg}^2 \frac{\pi d}{H} \right) + \alpha_1^2 + \beta_1^2}, \quad (8)$$

где $f_1^a = \kappa_1 / \langle d \rangle$, $f_1^b = \delta_1 / \langle d \rangle$ — относительные амплитуды модуляции межплоскостного расстояния.

Из формулы (8) видно, что асимметрия сателлитов при $H \sim 2d$ не зависит от высших гармоник и определяется комбинацией коэффициентов при синусе и косинусе выражений $\alpha_1 \cos \varphi + \beta_1 \sin \varphi$ и $f_1^a \cos \varphi + f_1^b \sin \varphi$ для волн модуляции структурного фактора и периода решетки соответственно. Легко показать, что первое слагаемое в числителе (8) обращается в нуль, если фазы этих волн совпадают. Второе слагаемое может обращаться в нуль только при определенном сочетании коэффициентов f_1^a, f_1^b и α_1, β_1 . Следовательно, наличие асимметрии является более общим свойством рассеяния измерения одномерными сверхрешетками, чем ее отсутствие. Вклады первого и второго слагаемого можно разделить и выявить сдвиг фаз двух волн модуляции сверхрешетки.

Поскольку для системы EuS/PbS амплитуда несоответствия межплоскостных расстояний ($f_0/2$) намного меньше амплитуды несоответствия структурных факторов (α_0) (таблица), то в области $H \leq 10$ нм левой частью знаменателя в (8) можно пренебречь, а уравнение (8) представить в виде

$$\frac{S_1^+ - S_1^-}{S_1^+ + S_1^-} = \pi \left(Q + P \operatorname{ctg} \frac{\pi d}{H} \right), \quad (9)$$

где Q характеризует сдвиг фаз волн электронной плотности и несоответствия периодов. Нетрудно заметить, что, согласно (8)

$$\sqrt{Q^2 + P^2} = \frac{f(1+2\nu)}{\alpha}, \quad (10)$$

т. е. параметр $\sqrt{Q^2 + P^2}$ определяет отношение амплитуд несоответствия периодов и структурного фактора с учетом псевдоморфной деформации (ν — коэффициент Пуассона).

Для систем PbSe/PbS и PbSe/PbTe величины f_0 и α_0 оказываются одного порядка (таблица), поэтому в знаменателе формулы (8) нельзя пренебречь левой частью. Но можно показать, что при $H \geq 2^*$ нм асимметрия сателлитов описывается формулой

$$\frac{S_1^+ - S_1^-}{S_1^+ + S_1^-} = \frac{\pi}{1 + \operatorname{ctg}^2 \frac{\pi d}{H}} \left(N + M \operatorname{ctg} \frac{\pi d}{H} \right), \quad (11)$$

где N и M медленно изменяются с H по сравнению с $\operatorname{ctg} \pi d/H$.

Используя формулы (9), (10), (11), можно построить графики $P(H)$, $Q(H)$, $\sqrt{Q^2 + P^2}$ или $M(H)$, $N(H)$ по экспериментальным значениям S_1^+ и S_1^- , полученным из рентгеновских дифрактограмм.

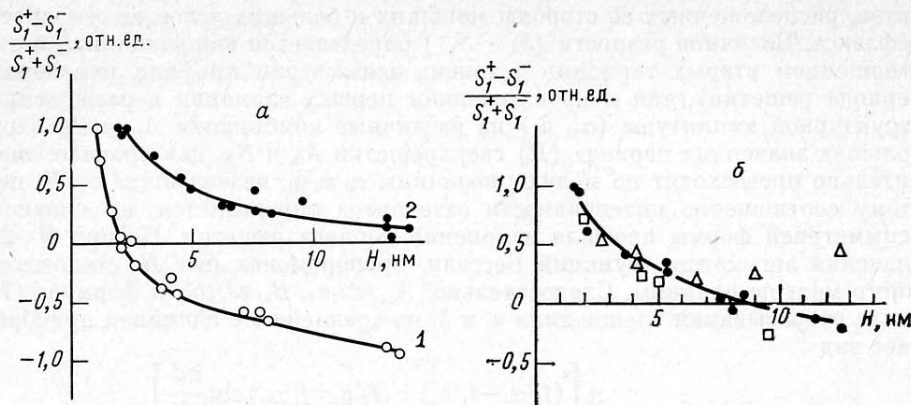


Рис. 1. Изменение асимметрии интенсивности спутников брэгговских отражений с периодом сверхрешетки H для систем EuS/PbS (1) и PbSe/PbS (2) с соотношением толщин слоев 1:1 (а) и для системы PbSe/PbTe с различным соотношением толщин слоев (б)

б: ● — 1:1, Δ — 1:2, \square — 2:1

Дифрактограммы многослойных систем EuS/PbS , PbSe/PbS и PbSe/PbTe типичны: пик от средней решетки (S_0) окружен эквидистантными спутниками (S_1^+ , S_1^-) разной интенсивности. Графики $[(S_1^+ - S_1^-) / (S_1^+ + S_1^-)](H)$, приведенные на рис. 1, а, б, показывают рост асимметрии при уменьшении периода сверхрешетки. Для системы PbSe/PbTe

(рис. 1, б) кривые асимметрии при различных соотношениях толщин слоев (1:2; 1:1 и 2:1) в области $H < 5$ нм сливаются. Это означает, что при $H < 5$ нм асимметрия профиля изменения периода решетки не влияет на асимметрию спутников в соответствии с формулой (8), в то время как при $H > 5$ нм следует учитывать высшие гармоники модуляций.

Результаты расчета по формуле (11) показали, что для систем PbSe/PbTe и PbSe/PbS во всем исследуемом интервале H величины $M(H)$ и $N(H)$ можно аппроксимировать горизонтальными прямыми, причем точки $N(H)$ («сдвиг фаз») близки к нулю для обеих систем.

Графики $Q(H)$, $P(H)$ и $\sqrt{Q^2 + P^2}$ для EuS/PbS (рис. 2) в интервале $H > 4$ нм свидетельствуют о постоянстве этих параметров, причем кривая $\sqrt{Q^2 + P^2}$ совпадает с рассчитанной по формуле (10), а $Q(H)$ («сдвиг фазы») близок к нулю. В области $H < 4$ нм наблюдается отклонение графиков от расчетной кривой, что означает отклонение параметров f и α от табличных.

Рис. 2. Величины $P(H)$ (Δ), $Q(H)$ (\blacksquare) и $\sqrt{P^2 + Q^2}$ (\bullet), полученные из экспериментальной кривой рис. 1, а, для системы EuS/PbS с помощью формулы (9). Сплошная кривая — расчет по формуле (10) при табличных значениях f_0 и α_0

В многослойных системах на основе халькогенидов свинца асимметрия спутников определяется только величиной $\alpha_1 f_1^a + \beta_1 f_1^b$, т. е. спецификой функции рассеяния. «Физическая асимметрия» (сдвиг фаз волн модуляции электронной плотности и периода решетки) не выявляется. Это означает, что даже при переходе к «кристаллографически» двумерному слою нет качественных изменений в распределении электронной плотности вдоль нормали к слоям и это распределение отражает изменение периода кристаллической решетки.

В структуре EuS/PbS при толщине t слоя более 1,5 нм «физическая асимметрия» также не выявляется, так что распределение электронной плотности повторяет изменение периода кристаллической решетки. Однако при уменьшении t до пяти межплоскостных расстояний величина Q («сдвиг фаз») становится существенно отличной от нуля и возрастает с уменьшением толщины. Это свидетельствует о качественном изменении объекта. Кроме того, в соответствии с формулой (10) рост величины f/α (рис. 2) означает, что амплитуда изменения периода электронной плотности снижается быстрее, чем амплитуда изменения периода решетки. Такое anomальное сглаживание сверхрешеточного потенциального рельефа может возникать, например, за счет перекрытия волновых функций соседних ям, и его необходимо учитывать при расчетах реальных систем.

Выводы

Асимметрия спутников брэгговских отражений многослойных структур с периодом $H \sim 2d$ является общей характеристикой рассеяния и определяется соотношением фаз и амплитуд модуляции электронной плотности и периода решетки.

Анализ асимметрии спутников в системах на основе халькогенидов свинца позволил установить полное соответствие между фазами и амплитудами модуляции периода решетки и электронной плотности при уменьшении H вплоть до 3–4 межплоскостных расстояний.

В одномерных сверхрешетках, полученных чередованием слоев EuS и PbS, при $H \sim 2d$ наблюдается сдвиг фаз модуляции электронной плотности и межплоскостного расстояния, а сверхрешеточный потенциальный рельеф сильно занижен по отношению к амплитуде модуляции периода решетки.

Литература

1. Вильсон А. Оптика рентгеновских лучей. М.: Изд-во иностр. лит. С. 112.
2. Philofsky E. M., Hilliard J. E. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. № 5. P. 2198.
3. Khan M. R., Chun C. S. L., Felcher G. P. et al. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. № 12. P. 7186.
4. Палагник Л. С., Козьма А. А., Михайлов И. Ф., Маслов В. Н. // Кристаллография. 1978. Т. 23. № 3. С. 570.

Харьковский политехнический институт

Поступила в редакцию
10.VII 1986