

# Software de análisis de patrones de RHEED para medición in situ de velocidad de crecimiento y relajación de películas delgadas crecidas por Epitaxia de Haces Moleculares

Gerardo Mendizabal-Ruiz, y Esteban Martínez-Guerrero

*Departamento de Electrónica Sistemas e Informática, Instituto Tecnológico y de Estudios Superiores de Occidente  
Tlaquepaque, Jalisco, CP 45090 MEXICO*

(Recibido: 24 de mayo de 2006; Aceptado: 1 de junio de 2006)

El monitoreo de la intensidad del spot reflejado en una secuencia de patrones de RHEED es una de las técnicas más importantes para el control del de películas delgadas y hetero-estructuras sofisticadas crecidas por MBE. La curva de oscilaciones en la intensidad RHEED es usada para medir *in-situ*, exacta y rápidamente la velocidad de crecimiento de la película así como establecer la composición de una aleación ternaria. Por otro lado, la medición de variaciones de la constante de red durante un crecimiento hetero-epitaxial, permite determinar el tipo de relajación, lo cual es importante para el control de la calidad estructural de hetero-estructuras. En muchas aplicaciones, la disponibilidad de tal información cuantitativa es de mucha utilidad para un análisis más exhaustivo de la física de crecimiento y realizar acciones sobre los parámetros de control externos tales como temperatura y sincronización de mecanismos de apertura y cierre de celdas de efusión para un determinado propósito. En este trabajo, presentamos un programa multifuncional de análisis de patrones de difracción de electrones de alta energía en incidencia rasante (RHEED) en ambas modalidades: análisis en tiempo real y post-crecimiento de películas epitaxiales crecidas por epitaxia de haces moleculares (MBE). El propósito principal del programa es la determinación de la curva de oscilaciones de RHEED, sin embargo, también puede determinar el porcentaje de variación de constante de red; realizar un trazo tridimensional del patrón RHEED a través del cual se puede inferir el grado de mosaicidad de la película crecida e identificar la orientación cristalográfica de planos de bajo índice. El programa es capaz de desplegar y guardar resultados en forma gráfica o como datos numéricos. Hemos aplicado nuestro software al estudio de películas epitaxiales de GaAs e InGaAs crecidas por MBE y los resultados reportados abajo indican un gran potencial de esta herramienta para la caracterización de películas delgadas.

*Palabras clave:* Software; RHEED; Películas delgadas; Caracterización; MBE.

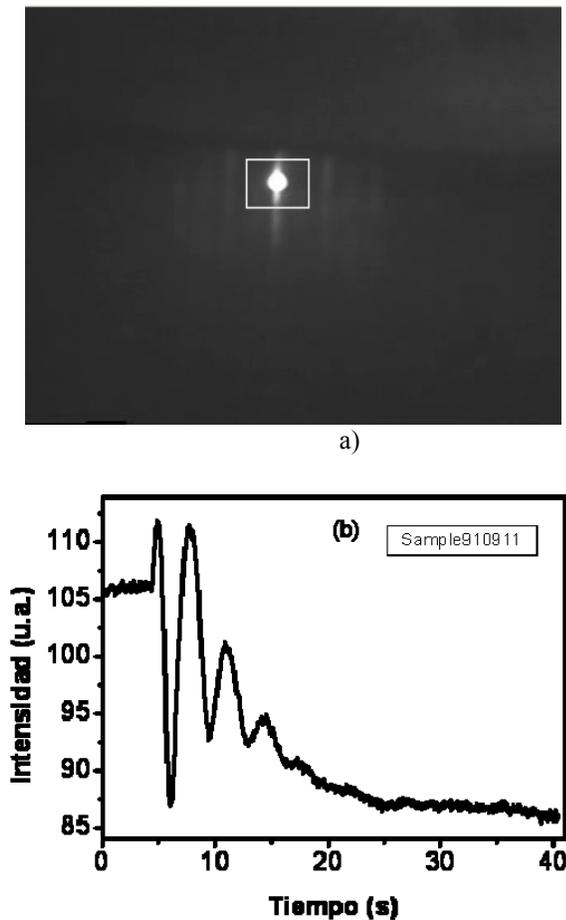
Monitoring the intensity of reflected spot in a RHEED pattern sequence is one of the most important methods used to control the growth of thin layers and sophisticated heterostructures in MBE. RHEED intensity oscillations can be used as accurate, quick and direct measure of the growth rates and fix the composition alloy as well. Measurements of lattice constant variation during the growth of heteroepitaxial system allow determine the relaxation type which is important to control the growth of high quality heterostructures. In several applications the availability of such quantitative information is useful to realize further analysis and achieve feedback between growth dynamic and external parameters, such as the cells temperatures and the shutters synchronization. In this work we present a multipurpose program, enable to analyse RHEED patterns in both modalities, real-time and off-line data analysis of thin films grown by MBE. Its main purpose is to track RHEED intensity changes and measure the rate of oscillation but it also can measure lattice constant variations. It also has image analysis capabilities such as identify low index crystal orientation, surface plotting and profile analysis, image storage and archiving data. We have applied our software to study epitaxial layers of GaAs, and InGaAs grown by MBE and the results reported below allow us gain insight into the thin film growth process proving that our developed software is a powerful tool for the characterization of such semiconductor films.

*Keywords:* Software; RHEED; Thin films; Characterization; MBE.

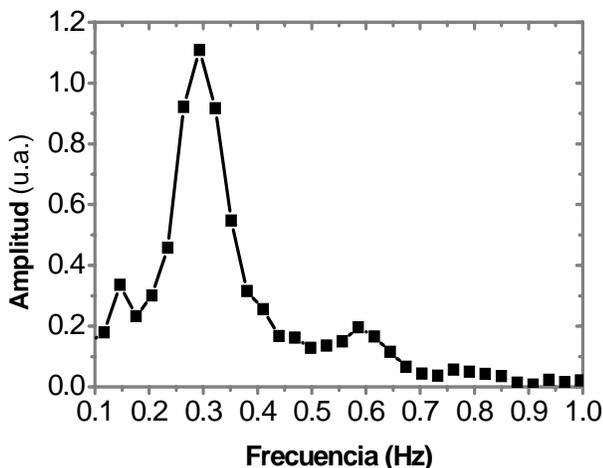
## 1. Introducción

RHEED (por sus siglas Reflection High Energy Electron Diffraction) es comúnmente usado para monitorear *in-situ* el crecimiento de películas delgadas por la técnica de epitaxia de haces moleculares o MBE (por sus siglas Molecular Beam Epitaxy). Así por ejemplo mediante una inspección directa de un patrón de RHEED es posible inferir cualitativamente la morfología de la superficie, es decir, si la superficie es lisa o rugosa o si el material es cristalino, policristalino o amorfo, determinar la temperatura real del substrato durante el crecimiento de películas de GaAs [1] y calibrar los flujos moleculares de las celdas de efusión [2]. Por otro lado, mediante un análisis cuantitativo de una secuencia de patrones de

RHEED se puede obtener información sobre la cinética del crecimiento; por ejemplo determinar la velocidad de crecimiento de la película, la composición de aleaciones ternarias, la relajación de esfuerzos en estructuras multicapa [3]. Más recientemente, mediante mediciones de RHEED también se ha podido identificar la inclusión de dominios de fase parásita en el caso de materiales nitruros del grupo III lo que ha permitido el control in situ de la pureza de fase [4]. Todo esto ha permitido tener un mayor control tanto sobre la calidad de películas crecidas como sobre los procesos de fabricación de heteroestructuras complejas tales como nanoestructuras y superredes. RHEED se ha convertido en una herramienta indispensable para el control y optimización del proceso de crecimiento de películas delgadas. Por esta razón, la mayoría de los



**Figura 1.** a) Patrón RHEED de una película de GaAs depositada sobre sustrato de GaAs indicando el área de extracción de datos de oscilaciones de intensidad, b) oscilaciones de intensidad RHEED extraídas del patrón de difracción por el programa PIR.



**Figura 2.** Espectro de la transformada rápida de Fourier (FFT) obtenido por el programa PIR sobre la curva de oscilaciones de RHEED de la Fig.1(b): La velocidad de crecimiento corresponde a la frecuencia central del espectro la cual en este caso es de 0.30 mc/s

sistemas de crecimiento por MBE tienen incorporado accesorios para generar y capturar patrones de RHEED así como el correspondiente software para analizarlos. Sin embargo, la mayoría del software comercial disponible para el análisis de patrones de RHEED extrae los datos de interés y se apoya en otro software de análisis de datos para finalmente arrojar la información requerida. Esta manera de procesar la información por un lado limita la rapidez de obtener información relevante sobre la cinética del crecimiento y por otro lado, no permite la automatización del crecimiento de heteroestructuras complejas por ejemplo de múltiples pozos cuánticos, puntos cuánticos y superredes. El programa que hemos desarrollado integra diversas herramientas de extracción y análisis de datos, procesamiento por separado y procesamiento simultáneo en ambas modalidades post-procesamiento y procesamiento en tiempo real, que permiten obtener información de los patrones de RHEED de manera rápida y directa.

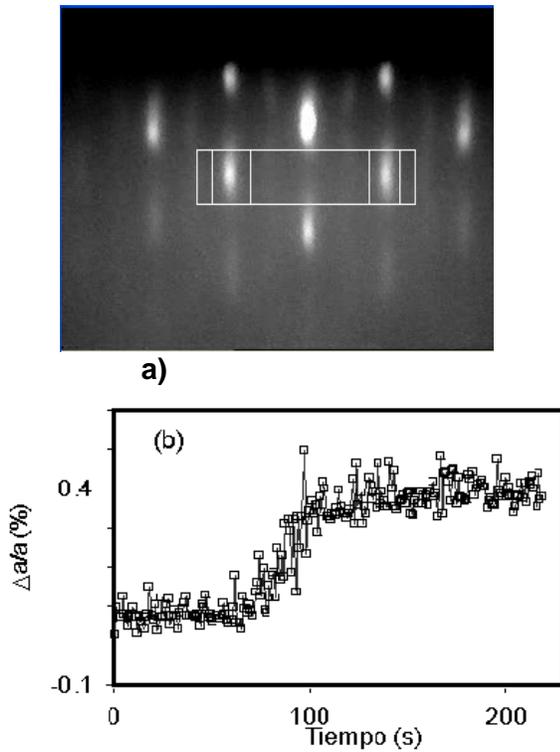
## 2. Programa de procesamiento de imágenes de RHEED (PIR)

La extracción de información de interés de un patrón de difracción se realiza en señales en formato digital; esto implica los siguientes pasos (1) capturar la imagen proyectada en la pantalla fluorescente del sistema MBE, mediante una video-cámara, (2) digitalizar y grabar la señal en el disco duro de una PC y (3) transformar las imágenes digitales de colores RGB de 24 bits entregadas por la video-cámara a imágenes en escala de grises de 8 bits. Para realizar el procesamiento, hemos implementado un programa de extracción de datos en lenguaje C++ el cual hemos llamado PIR (por sus siglas Procesamiento de imágenes de RHEED). Este programa está compuesto por una serie de algoritmos de discriminación de elementos, para aislar únicamente los datos de interés, en este caso, oscilaciones de intensidad de la señal de RHEED de la barra de orden 0, variaciones de la separación de las barras de orden 1 en el patrón de RHEED, y perfiles de intensidad. PIR es capaz de analizar videos RHEED grabados o digitalizados en tiempo real en formato AVI (por sus siglas Audio Video Interleaved).

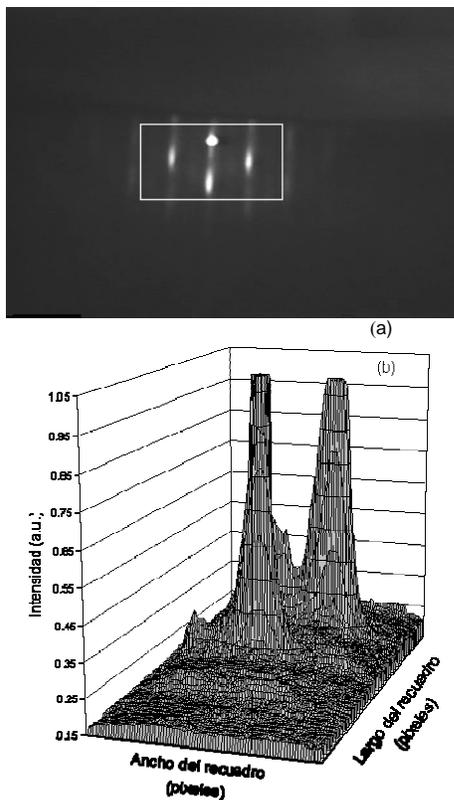
## 3. Resultados y discusión

### (a) Oscilaciones de intensidad RHEED

Para obtener las oscilaciones de intensidad de RHEED, primero se posiciona el sustrato (o el haz de electrones) para obtener un patrón RHEED en una dirección cristalográfica de bajo índice como la (110), aunque también pueden medirse sobre una dirección (100) solo hay que tener en cuenta la relación que guarda la distancia entre planos difractores para una y otra dirección. En seguida, se selecciona el área de interés sobre el patrón de difracción, ésta consiste en un recuadro sobre la barra de difracción de orden 0 o barra central que contiene el spot de reflexión



**Figura 3.** (a) patrón de difracción de una película de InGaAs sobre un sustrato de GaAs indicando el área de extracción de datos de variaciones de constante de red, (b) porcentaje de variación de constante de red extraído por PIR del video RHEED.



**Figura 4.** (a) patrón de difracción de una película de GaAs indicando el área para el trazo 3D del perfil de intensidad, (b) trazo 3D del perfil de intensidad RHEED.

especular (ver Fig. 1a). Luego, se inicia la secuencia de patrones de RHEED o video RHEED. El algoritmo determina la ubicación, la intensidad de brillo de los píxeles en el área que encierra al spot principal y mide la variación de la intensidad de la señal en el lapso de tiempo  $t_m$  que dura el video RHEED. El algoritmo calcula la intensidad promedio espacial del spot de difracción usando la ecuación (1) en el lapso de tiempo  $t = 0$  a  $t = t_m$ .

$$I_m = \frac{1}{n} \sum_{p=1}^n f(p) \tag{1}$$

aquí  $I_m$  es el valor promedio de la intensidad del brillo de todos los píxeles del “spot” en el instante  $t$ ,  $f(p)$  es el valor de intensidad del píxel  $p$  del “spot” y  $n$  es el número de píxeles dentro del área del “spot”.

Nótese que el algoritmo puede extraer las oscilaciones de intensidad siempre que el video RHEED corresponda a un crecimiento epitaxial del tipo *capa por capa*. En este sentido, conviene analizar sólo patrones de difracción compuestos por barras (streaky patterns) y no aquellos compuestos por puntos de difracción (spotty patterns). Nótese también que cualquier barra del patrón RHEED (incluso una barra generada por la reconstrucción superficial) es capaz de proporcionar información sobre la variación de la intensidad, por esta razón a PIR se le agregó la opción de analizar una segunda ventana además de aquella que analiza el spot principal de difracción. La figura 1b muestra la gráfica de oscilaciones de intensidad extraídas del área seleccionada en la figura 1a. Esta ampliamente documentado que un periodo de la curva de oscilaciones de intensidad es proporcional a una monocapa (mc) depositada [6, 7] (donde una monocapa es igual a la mitad del valor de la constante de red  $a_0$  de la película para mono-cristales cúbicos analizados en el plano [110]).

La velocidad de crecimiento  $v$  puede ser calculada como  $v = 1/T$  donde  $T$  es el periodo de la curva de oscilaciones RHEED. Calculando el periodo promedio de la curva mostrada en la Fig. 1b, deducimos una velocidad de crecimiento de GaAs de 0.314 mc/s (o de 0.88 Å/s). Nótese que la precisión del valor de la velocidad de crecimiento calculada de esta manera depende fuertemente de la calidad de la curva de oscilaciones de RHEED obtenida; si la curva es muy ruidosa, el valor determinado de  $T$  será impreciso y así también lo será la velocidad de crecimiento.

*(b) Determinación de la velocidad de crecimiento en forma automática*

Una forma rápida y directa de obtener la velocidad de crecimiento es aplicando una transformada rápida de Fourier (FFT) a la curva de oscilaciones de RHEED.

La transformada rápida de Fourier se obtiene aplicando la ecuación (2) [5]:

$$X(k) = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} x(n) W_N^{kn} \quad ; 0 \leq k \leq (N-1) \quad (2)$$

donde  $X(k)$  es la transformada de Fourier de los datos de entrada en la  $k$ -ésima posición,  $N$  es el número de puntos del arreglo que contiene los valores de intensidad y tiempo de las oscilaciones de RHEED,  $x(n)$  es el valor del arreglo en la  $n$ -ésima posición y  $W_N^{kn}$  es la señal periódica que en este caso es la señal de oscilaciones de RHEED.

La Fig. 2 muestra la curva del espectro FFT aplicada a la curva de oscilaciones de RHEED de la Fig. 1b. La frecuencia dominante (o pico principal) obtenida del espectro FFT corresponde a la velocidad de crecimiento, que en este caso resulta ser de 0.30 mc/s. Nótese que al aplicar la FFT, se minimiza el error generado por el ruido de la señal y en consecuencia el valor de la velocidad de crecimiento determinado es más preciso.

(c) *Determinación de variaciones de la constante de red en un crecimiento heteroepitaxial*

La distancia entre las barras del patrón de difracción es inversamente proporcional a la distancia entre los planos atómicos difractores, por tanto, se puede medir la constante de red de la película (y las variaciones de este parámetro que se presentan durante un crecimiento heteroepitaxial) simplemente midiendo la separación entre las barras de orden 1 del patrón RHEED. Para realizar esto, se selecciona un recuadro abarcando las barras de difracción de orden cero y orden 1. Dentro de la región seleccionada se seleccionan dos nuevos recuadros de menor tamaño y paralelos uno sobre la barra (-10) y otro sobre la barra (10), (ver Fig. 3a). El algoritmo localiza y extrae las coordenadas del punto de mayor intensidad de las barras (10) y (-10) y calcula la variación promedio en píxeles de la separación de las barras (10) y (-10) mediante la ecuación (3) en el intervalo de tiempo  $t = 0$  a  $t = t_m$  que dura el video

$$dp = \frac{\sum_{w=0}^n d_w}{n} \quad (3)$$

donde  $dp$  es la separación promedio en píxeles a un instante  $t$ ,  $d_w$  es la distancia en píxeles entre las barras (-10) y (10) medida en el intervalo de tiempo  $t = 0$  a  $t = t_m$  y  $n$  es el número de píxeles dentro del área del recuadro interno.

Finalmente, el algoritmo calcula el porcentaje de la variación de la constante de red  $\Delta a/a_0$  mediante la ecuación (4):

$$\Delta a/a_0 = d_0 \times 100 \times ((1/dp_i) - (1/d_0)) \quad (4)$$

La figura 3b muestra una curva de variación de constante de red del patrón de difracción de la figura 3a, el cual

corresponde a un crecimiento de InGaAs/GaAs. Nótese sobre la Fig. 3b un incremento en la constante de red del orden de 0.4%. Se ha reportado (ver Refs. [3, 8 y 9]) que un incremento abrupto en  $a_0$  durante los primeros instantes de crecimiento de la película corresponde a la formación de islas 3D sobre la superficie del sustrato (relajación elástica) mientras que si el incremento en  $a_0$  ocurre de manera gradual en un intervalo de tiempo considerable, la relajación de la película es mediante la introducción de dislocaciones (relajación plástica). Por otro lado, analizando la evolución de la secuencia de patrones RHEED, el cual inicialmente está formado por barras (imagen no mostrada), a medida que avanza el video (alrededor de 100s) éste cambia a un patrón formado por puntos (ver Fig. 3a). De acuerdo con el comportamiento de variación de  $a_0$  (Fig. 3b) y la evolución de la morfología de la superficie de la película (Fig. 3a) en el intervalo de tiempo analizado, se puede inferir que la relajación de la película InGaAs depositada sobre GaAs es del tipo plástica acompañada de una rugosificación del frente de crecimiento.

(d) *Trazo 3D del perfil de intensidad*

Cuando se tiene una película epitaxial de alto orden cristalino el haz difractado es de alta coherencia y el patrón RHEED resultante será compuesto de barras finas y alargadas. Sin embargo, si la superficie presenta desorden cristalino el haz difractado será incoherente resultado de la suma de la dispersión de los diversos dominios o mosaicos de la superficie. En este caso, las barras de difracción se ensanchan y se acortan. Un trazo 3D del perfil de intensidad del patrón de difracción permite hacer una estimación del orden cristalino de la superficie, es decir de la calidad de la película que se está creciendo. Para obtener esta información, se selecciona un recuadro abarcando el largo y ancho de las tres barras de difracción principales (ver Fig. 4a). El algoritmo hace un barrido horizontal línea por línea dentro del recuadro seleccionado y determina el perfil de intensidad de las tres barras principales del patrón de difracción (ver Fig. 4b). De acuerdo con *Dove et al.* [10], el diámetro del perfil de intensidad es proporcional al tamaño de los dominios. Por tanto, la determinación del diámetro de las barras de difracción proporciona información sobre el grado de mosaicidad del cristal que se está creciendo. Los resultados de los cálculos del tamaño de los dominios serán publicados posteriormente.

#### 4. Conclusiones

Hemos desarrollado un programa de procesamiento de patrones de RHEED para la determinación rápida y directa de la velocidad de crecimiento, variaciones de constante de red y trazo 3D del perfil de intensidad de películas epitaxiales crecidas por la técnica de MBE. La aplicación del programa al estudio de películas de GaAs y de InGaAs a través de sus patrones de difracción indica buen desempeño del software desarrollado.

## Agradecimientos

Los autores agradecen al Dr. Máximo López del Depto. de Física CINVESTAV DF por los videos RHEED proporcionados. Así también a los profesores Salomón Chavez (CUCEI/U. de G.), Jorge Pardiñas Mir y Lino Coria Mendoza (DESI/ITESO) por sus valiosas contribuciones en la discusión de resultados.

## Referencias

- [1] V.P. LaBella, D.W. Bullock, C. Emery, Z. Ding, and P.M. Thibado, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 3065 (2001)
- [2] J. Massies, P. Etienne, F. Dezaly, and N.T. Linh, *Surf. Sci.* **99**, 121 (1980)
- [3] E. Martinez-Guerrero, E. Ballet Amalric, L. Martinet, G. Feuillet, B. Daudin, H. Mariette, P. Holliger, C. Bru-Chevallier, and C. Dubois, *J. Appl. Phys.*, **91**, 4983 (2002)
- [4] E. Martinez-Guerrero, PhD Thesis 02ISAL.0009, chapter 2, INSA-Lyon, France, (2002)
- [5] J.G. Proakis and D.G. Manolakis, *Tratamiento digital de señales*, Capitulo 6, Prentice-Hall, (1998)
- [6] T.E. Harvey, K.A Bertness, R.K. Hickernell, C.M. Wang and J.D Splet, *Journal of Crystal Growth*, **251**, 73 (2003)
- [7] T.M. Lu, G.C. Wang, and Y.P. Zhao, *Surface Review and Letters* **5**, 899 (1998)
- [8] J. Zou and D. J. H. Cockayne *J. Appl. Phys.* **79**, 15 (1996)
- [9] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 196 (1994)
- [10] D.B. Dove, R. Ludeke, and L.L. Chang, *J. Appl. Phys.* **44**, 1897 (1973).