

05;06

## Изучение дефектной структуры эпитаксиальных слоев GaN на основе анализа пиков трехволновой дифракции рентгеновских лучей

© Р.Н. Кютт

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург  
E-mail: r.kyutt@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 25 февраля 2010 г.

Проведены измерения многоволновой дифракции рентгеновских лучей в эпитаксиальных пленках GaN с разной плотностью дислокаций. Использовалась схема Реннингера с первичным запрещенным отражением 0001. Проанализирована угловая ширина трехволновых дифракционных пиков как в направлении  $\varphi$ -сканирования (вращение вокруг нормали к поверхности), так и  $\theta$ -моды сканирования (вращение около брэгговского угла). Обнаружено расщепление трехволновых пиков Реннингера, обусловленное крупноблочной структурой слоев. Показана высокая чувствительность полуширины пиков  $\theta$ -моды для некоторых трехволновых комбинаций к плотности дислокаций.

Структурному исследованию эпитаксиальных слоев A<sup>III</sup>-нитридов посвящено немало экспериментальных работ, выполненных методами рентгеновской дифракции. К настоящему времени дислокационная структура таких слоев хорошо изучена. Эпитаксиальные слои A<sup>III</sup>-нитридов (GaN, AlN, InN) имеют структуру типа вюрцита и выращиваются в большинстве случаев на подложке сапфира, при этом рассогласование в плоскости интерфейса (0001) очень велико (13% для GaN). Это приводит к генерации большой плотности дислокаций. В большинстве случаев в них преобладает система прямолинейных, прорастающих перпендикулярно поверхности дислокаций краевого и винтового типов.

В рентгенодифракционных работах дислокационная структура характеризуется, как правило, на основе мозаичной модели с введением таких параметров, как размер блоков в двух направлениях, деформация в блоках, развороты блоков вокруг оси, параллельной поверхности (tilting) и вокруг нормали к поверхности (twisting). В работе [1]

была предложена более детальная характеристика нитридных слоев с введением тензора микродисторсии. Для того чтобы получить все компоненты тензора микродисторсии, требуется измерение  $\theta-2\theta$  и  $\theta$ -мод сканирования в 3 геометриях дифракции. В [1] для этого использовались симметричная брэгговская геометрия, симметричная Лауэ-геометрия и наклонная или скользящая дифракция. Из анализа полуширин измеренных дифракционных пиков определяются размеры областей когерентного рассеяния в двух направлениях и компоненты тензора микродисторсии, а из последних оценивается плотность различных семейств дислокаций.

По упрощенной мозаичной модели также требуется комбинация симметричных, асимметричных и наклонных брэгговских отражений [2]. Переход от одной геометрии к другой с соответствующей настройкой образца представляет собой довольно сложную экспериментальную процедуру.

Пики многоволновой дифракции уже сочетают в себе отражения в различных геометриях. Поэтому они несут информацию об уширении в разных направлениях. Это может позволить определять структурное состояние кристалла более простым способом, не меняя геометрии измерений.

Самой простой схемой наблюдения многоволновой дифракции является схема сканирования Реннингера [3]. В ней образец настраивается на получение симметричного брэгговского отражения  $H_1$  и затем, оставаясь в этих условиях, вращается вокруг вектора обратной решетки  $\mathbf{OH}_1$  (или, что то же самое, вокруг нормали к поверхности). В качестве первичного берется запрещенное или очень слабое (квазизапрещенное) отражение. В этом случае при попадании на сферу Эвальда узла  $H_2$  на диаграмме сканирования (зависимости интенсивности луча, идущего в направлении  $\mathbf{k}_h$ , от азимутального угла  $\varphi$ ) появляется трехволновой пик.

Для эпитаксиальных слоев многоволновая дифракция использовалась лишь в нескольких работах, где из углового положения многоволновых пиков на диаграмме Реннингера определялись параметр решетки и деформация эпитаксиального слоя [4-6]. Для эпитаксиальных пленок GaN диаграммы Реннингера были измерены в работах [7-9]. Авторы работы [6] измерили положение и относительную интенсивность трехволновых рефлексов на шкале зависимости от угла  $\varphi$  и показали их соответствие расчету [10]. В работах [7,8] было показано различие

Плотность семейств дислокаций в слоях GaN, полученная из измерений двухволновой дифракции

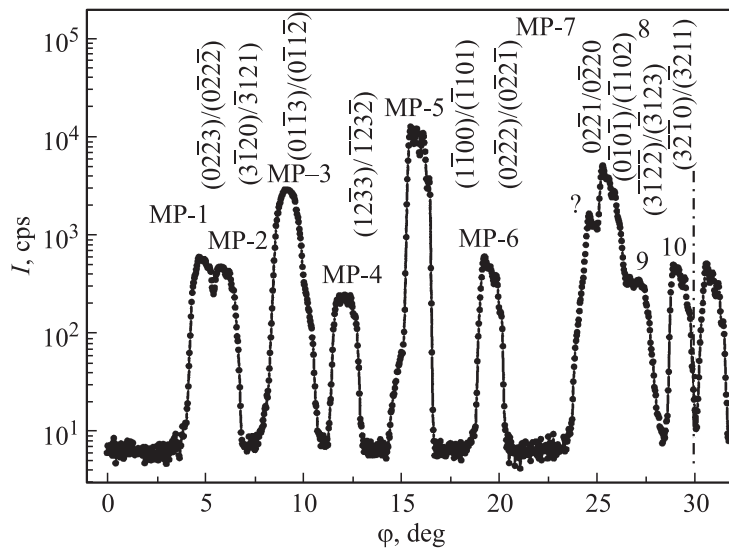
$\rho, \text{cm}^{-2}$	№ 1	№ 2	№ 3
$\rho$ (screw thread.), $\text{cm}^{-2}$	$(3.4 \pm 0.5) \cdot 10^7$	$(3 \pm 0.5) \cdot 10^8$	0
$\rho$ (edge thread.), $\text{cm}^{-2}$	$(7 \pm 1) \cdot 10^8$	$(4.5 \pm 0.5) \cdot 10^8$	$(1.2 \pm 0.3) \cdot 10^9$
$\rho$ (sm. angle boundaries), $\text{cm}^{-2}$	$(1.1 \pm 0.3) \cdot 10^9$	$(6.2 \pm 0.5) \cdot 10^8$	$(2.5 \pm 0.2) \cdot 10^9$
$\rho$ (horiz), $\text{cm}^{-2}$	$(4.5 \pm 0.5) \cdot 10^7$	$(1.2 \pm 0.2) \cdot 10^8$	$(4.5 \pm 0.5) \cdot 10^9$

ширины трехволновых дифракционных пиков для слоев GaN, выращенных в разных условиях, но без подробного анализа и выявления каких-либо закономерностей. В настоящей работе на примере трех образцов с пленками GaN проанализировано влияние параметров микроструктуры пленок на экспериментальную картину трехволновой дифракции.

Эпитаксиальные слои GaN толщиной около  $10 \mu\text{m}$  были выращены на подложках (0001)-сапфира методом газотранспортной эпитаксии. Предварительно образцы были исследованы методом двухволновой рентгеновской дифракции. На основе анализа полуширин экспериментальных дифракционных пиков по методике, описанной в [1], были получены параметры микроструктуры слоев: плотности отдельных семейств дислокаций и размеры областей когерентного рассеяния в двух направлениях. Значения плотности дислокаций приведены в таблице.

Диаграммы Реннинера измерялись на высокоразрешающем дифрактометре в двухкристальной схеме, использовалось  $\text{CuK}\alpha$ -излучение, монохроматором служил совершенный кристалл Ge(111). В качестве первичного отражения использовалось симметричное брэгговское отражение 0001, запрещенное для кристаллов со структурой вюрцита. Сканирование по Реннингеру (измерение зависимости интенсивности от азимутального угла поворота  $\varphi$ ) проводилось как с грубым шагом (для измерений в интервале  $0-180^\circ$ ), так с меньшим шагом в  $0.03^\circ$  в угловом интервале  $0-30^\circ$ . На максимуме каждого трехволнового пика измерялись кривые  $\theta$ -сканирования.

На рис. 1 приведена диаграмма Реннинера для образца 1 (наиболее совершенного). Как и следует из геометрических соображений, наблюдается 10 трехволновых пиков в угловом интервале в  $30^\circ$ , за-



**Рис. 1.** Диаграмма Реннингера для образца 1 эпитаксиальных пленок GaN, измеренная на первичном отражении (0001).  $\text{CuK}_\alpha$ -излучение.

тем они зеркально отражаются при угле  $\varphi = 30^\circ$  и эта комбинация периодически повторяется через каждые  $60^\circ$ . Пики идентифицированы на рис. 1. Их угловое положение также соответствует расчету за исключением пика около  $\varphi = 25^\circ$  (отмечен вопросительным знаком), которого нет в таблице, приведенной в работе [6]. Все пики значительно шире тех, что обычно измеряются для совершенных кристаллов Si и Ge. Относительная интенсивность трехволновых пиков Реннингера в основном соответствует расчету, наиболее интенсивным из них является комбинация  $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$  (обозначена как MP-5), затем следуют пики MP-3 и MP-8. Для двух других образцов диаграммы Реннингера аналогичны приведенной, но для образца 3 с наибольшей плотностью дислокаций пики более широкие, а близлежащие пики почти не разрешаются.

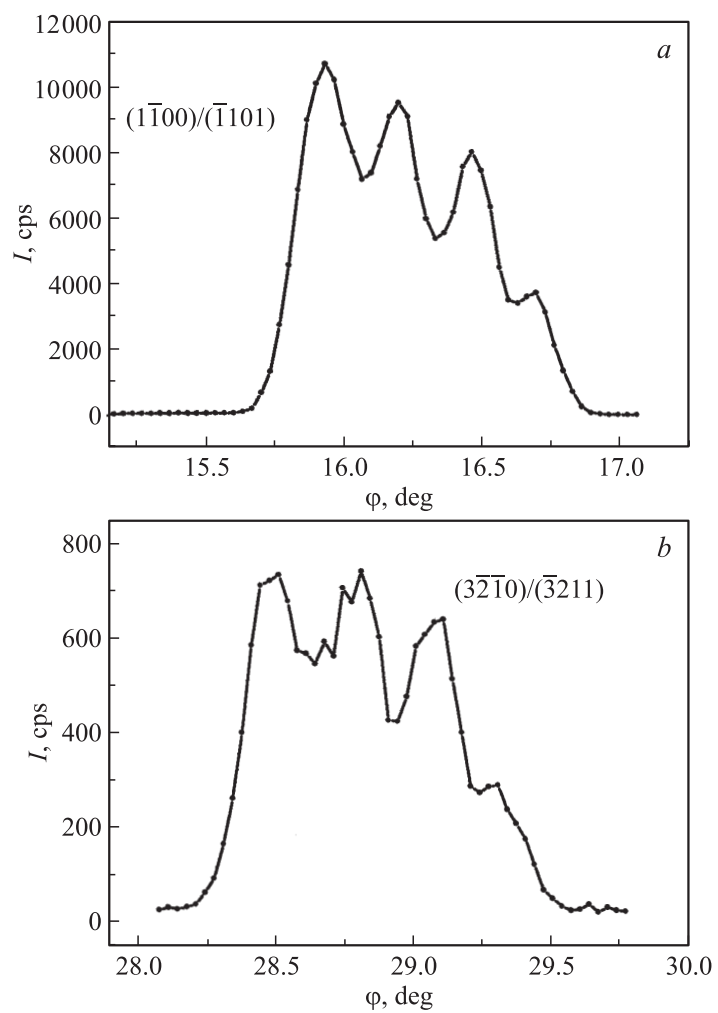
Если увеличить отдельные участки диаграммы  $\varphi$ -сканирования, то видно, что пиков на ней гораздо больше, чем положенное число трехволновых комбинаций. Это указывает на расщепление пиков, вы-

званное, очевидно, крупноблочной структурой пленки, при которой блоки развернуты относительно друг друга вокруг оси вращения, т.е. вокруг нормали к поверхности. При этом углы разворота между блоками обычно меньше, чем угловые расстояния между отдельными трехволновыми рефлексами. Однако в некоторых случаях они близки друг другу, например в области углов  $(25-30)^\circ$ . Тогда для того чтобы разделить эффект расщепления и разные рефлексы, можно измерить в положении каждого максимума кривые  $\theta$ -сканирования. Для отражений от разных блоков они должны иметь одинаковую полуширину, а для разных рефлексов — разную. Еще один способ такого разделения — сравнить форму кривой по обе стороны от линии зеркального отражения при  $\varphi = 30^\circ$ . Пики от разных рефлексов должны иметь зеркально отраженную форму, а расщепленные пики от одного рефлекса — одинаковую.

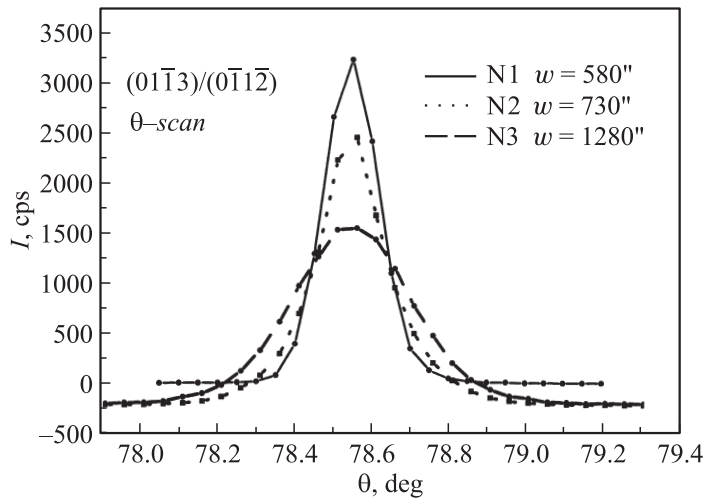
Очевидно, что если мы имеем дело с развернутыми по углу  $\varphi$  блоками, то количество пиков и их форма должны быть одинаковыми для разных трехволновых комбинаций. Это и демонстрирует рис. 2, *a, b*, на котором приведена тонкая структура для двух трехволновых комбинаций  $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}12)$  и  $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$  для образца 1. Видно, что в освещаемую пучком область попадают 4 крупных блока с углом разворота около  $0.2^\circ$ .

Полуширина пиков  $\varphi$ -сканирования мало зависит от типа трехволновой комбинации, что подтверждает тот уже упомянутый выше факт, что основной вклад в уширение вносит так называемый *twisting*, т.е. локальные развороты вокруг нормали к поверхности (последние, как известно, определяются краевыми прорастающими дислокациями и состоящими из них дислокационными стенками). На это же указывает и сравнение полуширин пиков Реннингера для трех образцов. Образцы 1 и 2, имеющие одинаковый эффективный угол таких разворотов, дают практически одинаковые полуширины пиков  $\varphi$ -сканирования  $(0.2-0.3)^\circ$ . Для образца 3 со значительно большей плотностью упомянутых дислокаций (см. таблицу) наблюдается заметно большая ширина пиков Реннингера  $(0.5-0.6)^\circ$ .

Для кривых  $\theta$ -сканирования также наблюдаются свои закономерности. Разумеется, они также заметно уширены по сравнению с пиками  $\theta$ -моды, измеряемыми для совершенных монокристаллов. Но полуширина пиков сильно (в несколько раз) меняется от рефлекса к рефлексу. Самыми широкими из них являются пики, относящиеся



**Рис. 2.** Тонкая структура трехволновых пиков Реннингера от образца 2 эпитаксиального слоя GaN. Трехволновые комбинации:  $a$  —  $(1\bar{1}00)/(1\bar{1}01)$ ,  $b$  —  $(3\bar{2}\bar{1}0)/(3\bar{2}11)$ .



**Рис. 3.** Пики  $\theta$ -сканирования трехволнового рефлекса  $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$  на диаграмме Реннинера для эпитаксиальных слоев GaN. Образцы 1 (сплошная линия), 2 (пунктирная), 3 (штриховая).

к трехволновым комбинациям, для которых вектор обратной решетки  $\mathbf{OH}_2$  параллелен поверхности (Лауэ-отражение), в наших обозначениях это трехволновые рефлексы МР-2, МР-5, МР-10. Поскольку Лауэ-рефлексы чувствительны к краевым прорастающим дислокациям [1], то, скорее всего, последние и являются ответственными за дополнительное уширение соответствующих пиков  $\theta$ -моды. А самый узкий пик наблюдается для комбинации  $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$ , в которой вектор  $\mathbf{OH}_2$  имеет большую составляющую, нормальную к поверхности, и малую, параллельную ей.

На рис. 3 приведены дифракционные кривые  $\theta$ -моды сканирования, измеренные на максимуме трехволновой комбинации МР-3 (самые узкие пики из всех комбинаций) для всех трех образцов. Из сравнения полуширин пиков видно, что пики для образцов 1 и 2 близки друг к другу, а пики для образца 3 значительно шире.

С другой стороны, если сравнивать полуширины пиков  $\theta$ -сканирования разных трехволновых комбинаций, то окажется, что для самого

совершенного образца 1 они отличаются гораздо меньше ( $585''$  — самый узкий,  $1150''$  — самый широкий), чем для самого дефектного образца 3 (соответственно  $1280''$  и  $4650''$ ). Это говорит о том, что трехволновые комбинации  $(3\bar{1}\bar{2}0)/(3121)$ –MP-2 и  $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$ –MP-5 являются наиболее чувствительными к плотности дислокационных ансамблей, в основном к краевым дислокациям, локализованным в малоугловых границах, и к горизонтальным дислокациям.

Таким образом, измерение и анализ трехволновой дифракции в эпитаксиальных слоях GaN показывают высокую чувствительность угловой ширины пиков Реннингера к дислокационной структуре слоев.

## Список литературы

- [1] *Ratnikov N.N., Kyutt R.N., Shubina T.V., Pashkova T., Monemar B.* // J. Phys. D. Appl. Phys. 2001. V. 34. P. A30.
- [2] *Sricant V., Speck J.S., Clarke D.R.* // J. Appl. Phys. 1997. V. 82. P. 4286.
- [3] *Renninger M.* // Z. Phys. 1937. V. 106. P. 141.
- [4] *Chang S.L.* // Appl. Phys. Lett. 1980. V. 37. P. 819.
- [5] *Sasaki J.M., Cardoso L.P., Campos C., Roberts K.J., Clark G.F., Pantos E., Sacilotti M.A.* // J. Appl. Phys. 1996. V. 79. P. 3492.
- [6] *Freitas R.O., Lamas T.E., Quivy A.A., Morelhaio S.L.* // Phys. Stat. Sol. (a). 2007. V. 204. P. 2548.
- [7] *Blasing J., Krost A.* // Phys. Stat. Sol. 2004. V. 201. P. 17.
- [8] *Blasing J., Krost A., Hertkorn J. et al.* // J. Appl. Phys. 2009. V. 105. P. 033 504.
- [9] *Ahe M. von der, Cho Y.S., Kaluza N. et al.* // XTOP 2008. 9th Biennial Conference on High Resolution X-ray Diffraction and Imaging. September 15–19, 2008. Linz, Austria. Abstracts. P. 96.
- [10] *Rossmannith E.* // Acta Cryst. 2006. V. A62. P. 174.