

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СТРУКТУРНЫХ ПАРАМЕТРОВ ГРАДИЕНТНОГО ЭПИТАКСИАЛЬНОГО СЛОЯ МЕТОДАМИ ВЫСОКОРАЗРЕШАЮЩЕЙ РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКТОМЕТРИИ. I. НАЧАЛЬНОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ РЕШЕНИЯ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ ДИФРАКЦИИ

© В.И.Пунегов, Н.Н.Фалеев

Сыктывкарский государственный университет,
167001 Сыктывкар, Россия
(Поступила в Редакцию 28 марта 1995 г.
В окончательной редакции 26 июня 1995 г.)

Приближенные структурные характеристики градиентного эпитаксиального слоя AlGaAs получены с помощью высокоразрешающей двухкристальной рентгеновской дифрактометрии. Два простых, независимых друг от друга метода экспрессной вычислительной рентгенодифракционной диагностики использованы для определения среднего градиента деформации, среднего значения статического фактора Дебая-Валлера и толщины неоднородного слоя. В рамках кинематической теории дифракции исследовано распределение рассеянной интенсивности (когерентной и диффузной) по глубине градиентного слоя при фиксированных значениях угловой отстройки.

Неоднородные эпитаксиальные пленки [1], слои гетероэпитаксиальных структур [2] и полупроводниковых сверхрешеток [3], ступенчатые гетеропереходы [4] и многослойные системы [5] с градиентом состава по глубине в последние годы привлекают внимание исследователей. Все эти объекты имеют планарное строение и характеризуются одномерным изменением межплоскостного расстояния по толщине кристалла. Поскольку наиболее универсальным, бесконтактным, неразрушающим и экспрессным методом исследования атомно-кристаллического строения является дифракция рентгеновских лучей, число работ по изучению градиентных эпитаксиальных структур с помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии с каждым годом растет [1-3,5-14]. Часто в градиентных эпитаксиальных слоях имеет место линейное или близкое к нему изменение концентрационного состава по глубине [7-14], что приводит к линейному изменению межплоскостного расстояния.

Модель кристалла конечной толщины с линейным одномерным изменением параметра решетки в динамической теории дифракции рассмотрена в [15]. Однако предложенный в [15] формализм не позволяет

учитывать мелкомасштабные флуктуационные нарушения кристаллической решетки, вызванные хаотически распределенными дефектами. Наиболее полно данная проблема может быть разрешена в рамках статистической динамической теории дифракции [16-19].

На основе общих принципов статистического подхода к явлению рентгеновской дифракции в кристаллах с дефектами получены аналитические решения для углового распределения когерентно и диффузно рассеянной интенсивности от дефектного эпитаксиального слоя с постоянным градиентом деформации (или, что одно и то же, с линейным изменением параметра решетки) в кинематическом [20] и динамическом [21] случаях.

Потребности в исследовании кристаллического строения и качества полупроводниковых материалов привели к постановке и решению обратных задач рентгеновской дифракции [22]. Несмотря на обилие принципиальных трудностей, связанных с отсутствием фазовой информации, приводящей к неоднозначности получаемых результатов, нелинейностью задачи, а также необходимостью в ряде случаев разделения когерентной и диффузной компоненты рассеянной интенсивности, количество работ по совершенствованию старых и развитию новых методов неуклонно растет [23-33].

Определение градиента деформации и толщины градиентного слоя по осцилляционной структуре кривых дифракционного отражения (КДО) от кристалла с постоянным градиентом деформации решетки впервые предложено в [34] (см. также [35]). В основе этого метода лежала физическая интерпретация формирования КДО с помощью построения фазовых слоев, аналогичных зонам Френеля-Шустера в оптике [36,37]. Однако предложенный подход применим только для кристаллов с линейным изменением межплоскостного расстояния или объектов с профилем деформации, близким к линейному [35]. Основная привлекательность метода «фазовых слоев» — его простота.

Другой простой подход к вычислению профилей деформаций предложен в [38] и основан на измерении рассеянной интенсивности. Простота вычислений достигалась благодаря применению метода стационарной фазы к оценке величины кинематического коэффициента отражения. Как и в упомянутом выше случае [34,35], простые формулы [38] дают лишь приближенные значения структурных параметров исследуемого нарушенного слоя, при этом эффективность вычислений повышается для монотонных градиентов деформации.

Для расчетов профилей деформации от градиентных кристаллов разработан метод, в основе которого лежит дискретное Фурье-преобразование амплитудного коэффициента отражения [12-14]. Этот метод рассматривается как дальнейшее развитие метода интегральных характеристик [23,24].

Настоящая работа посвящена экспрессному вычислению структурных характеристик градиентной эпитаксиальной системы $\text{AlGaAs}/(001)\text{GaAs}$ по данным высокоразрешающей двухкристалльной рентгеновской дифрактометрии с привлечением двух простых методов рентгенодифракционной диагностики.

1. Экспериментальные результаты

Исследуемая структура $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ ($x = 0.0-0.6$) была выращена методом металлоорганической газофазной эпитаксии. Создавался градиентный состав по глубине эпитаксиального слоя. Концентрация Al в твердом растворе линейно (с точностью, которую позволяла ростовая технология) увеличивалась от нуля у подложки до приблизительно 0.6 у поверхности структуры. Подобного рода «модельные» структуры выращивались специально для отработки методики высокоразрешающих рентгенодифракционных исследований: экспериментальных и теоретических. Изучалась возможность применения метода двухкristальной рентгеновской дифрактометрии для экспрессного определения параметров эпитаксиальной структуры с постоянным градиентом состава по глубине. Измерения проводились на высокоразрешающем трехкristальном дифрактометре, собранном на базе широкоугольного гониометра ГУР-8. В качестве монохроматора использовался асимметричный кристалл $\text{Ge}(001)$, обеспечивающий для отражения (004) $\text{CuK}\alpha_1$ -излучения расходимость первичного пучка в одну угловую секунду. Приведенные в этой работе экспериментальные результаты получены при съемке в режиме двухкristальной схемы (рис. 1).

Двухкristальные кривые дифракционного отражения имеют форму, характерную для неоднородных эпитаксиальных структур с отрицательным градиентом деформации решетки (межплоскостное расстояние отражающих атомных плоскостей уменьшается с глубиной). Отчетливо проявляющиеся характерные градиентные осцилляции на КДО позволяют утверждать, что данная градиентная структура обладает достаточно высоким кристаллическим совершенством. Центральная часть экспериментального профиля кривой отражения отличает-

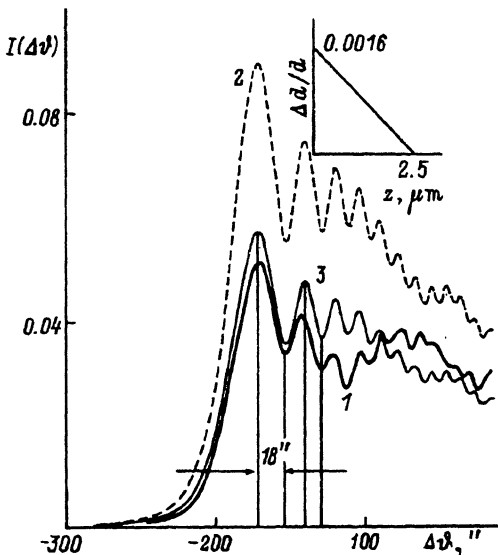


Рис. 1. Экспериментальная (1) и теоретические (2, 3) КДО градиентного кристалла.

E : 2 — 1, 3 — 0.8. На вставке — профиль деформации.

ся от характерной расчетной КДО «идеального» кристалла с постоянным градиентом деформации. По предварительным оценкам можно заключить, что на некоторой глубине (ориентировочно в середине слоя) имеет место отклонение состава от заданного линейного профиля. На это указывает также сглаживание осцилляционной структуры в этой области дифракционного спектра. Фрагменты экспериментальной КДО приведены на рис. 1, 3.

2. Начальное приближение решения обратной задачи дифракции на градиентном слое с использованием метода фазовых слоев

В [20] показано, что в кинематическом приближении угловое распределение когерентно рассеянной интенсивности от нарушенного слоя толщиной l с постоянным градиентом деформации не зависит от концентрации однородно распределенных дефектов и полностью определяется толщиной первого фазового (френелевского) слоя $l_1 = \sqrt{a^3 / \langle \Delta d \rangle}$, где d — межплоскостное расстояние идеального кристалла, $\langle \Delta d \rangle$ — усредненное рассогласование в межплоскостном расстоянии между двумя соседними периодами решетки кристаллического слоя с постоянным градиентом деформации.

В случае неоднородного распределения дефектов дифракционный спектр может принимать самые разнообразные формы [20], и, следовательно, получение правильного решения обратной дифракционной задачи крайне затруднительно. Дело в том, что в градиентном кристалле при фиксированном угле падения рентгеновского пучка отражательная способность различных участков (элементарных слоев) кристалла по глубине будет различной. Эта отражательная способность определяется величиной деформации решетки элементарного слоя, его кристаллическим совершенством и композиционным составом. Если учесть, что и диффузный фон при этом может иметь достаточно сложную форму, адекватное решение обратной задачи без комплексного использования двух- и трехкристальной дифрактометрии в общем случае практически невозможно.

В результате анализа решения кинематической рентгеновской дифракции в кристалле с постоянным градиентом деформации решетки по глубине было показано, что угловые расстояния между экстремумами КДО определяются простой формулой [35]

$$\delta \vartheta_n = \frac{\lambda}{4l_1 \cos \vartheta_0} \{ \sqrt{4n+3} - \sqrt{4n-1} \}.$$

Из этого соотношения непосредственно находится параметр, характеризующий градиент деформации решетки,

$$l_1 = \frac{\lambda}{4\delta \vartheta_n \cos \vartheta_0} \{ \sqrt{4n+3} - \sqrt{4n-1} \}. \quad (1)$$

Максимальная деформация градиентного слоя $(\Delta d/d)_{\max}$ связана протяженностью КДО $\Delta \Theta_{RC}$ соотношением

$$\Delta \Theta_{RC} = -(\Delta d/d)_{\max} = \text{tg}(\vartheta_0). \quad (2)$$

| | $\delta\vartheta_1$ | $\delta\vartheta_2$ | $\delta\vartheta_3$ | ϑ_0 | $\langle l_1 \rangle, \mu\text{м}$ | $\Delta\Theta_{RC}$ | $(\Delta d/d)_{\text{max}}$ | $\langle \Delta d \rangle / d, 10^{-10}$ | $l, \mu\text{м}$ |
|--------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------|------------------------------------|---------------------|-----------------------------|--|------------------|
| $l_1, \mu\text{м}$ | 18'' 0.48 | 14'' 0.45 | 11'' 0.48 | 33° | 0.47 | -200'' | 0.00163 | 11 | 2.55 |

В нашем случае $\Delta\Theta_{RC}$ находят по углам, соответствующим положению брэгговского пика подложки и крайнего (наиболее удаленного) фрагмента КДО слоя, где интенсивность практически сливается с фоном. С другой стороны, максимальная деформация может быть записана как

$$(\Delta d/d)_{\text{max}} = dl/l_1^2, \quad (3)$$

где l — толщина градиентного слоя. Из (2), (3) получаем формулу для определения толщины слоя по экспериментальной КДО

$$l = l_1^2 |\Delta\Theta_{RC}| \text{ctg}(\vartheta_0) / d. \quad (4)$$

Из экспериментального дифракционного спектра, изображенного на рис. 1, находим по формулам (1)–(4) приблизительные характеристики градиентного слоя (см. таблицу).

По этим структурным характеристикам рассчитана КДО (кривая 2 на рис. 1). На вставке к рис. 1 помещен профиль деформации, соответствующий этой кривой. Теоретическая кривая существенно отличается по интенсивности от экспериментального спектра (кривая 1). Заметим, что на дальнем от подложки участке спектра положения интерференционных осцилляций совпадают. Применяя для расчетов КДО модель градиентного слоя с однородно распределенными дефектами, получаем теоретическую КДО (кривая 3 на рис. 1) более близкую по интенсивности к экспериментальной кривой. Статический фактор Лебая–Валлера в данном случае равен 0.8.

Для более ясного физического понимания процесса дифракции на кристалле с постоянным градиентом деформации проведем расчеты рентгеновских интенсивностей в направлении дифракции внутри исследуемого образца. При фиксированной угловой отстройке η_p распределение когерентно рассеянной интенсивности по глубине z находится из соотношения

$$I_g^c(z) \approx |\sigma_g|^2 (l_1^2/2) E^2 \{ [C(u_z) - C(u_p)]^2 + [S(u_z) - S(u_p)]^2 \}, \quad (5)$$

где $C(u)$, $S(u)$ — интегралы Френеля, $u_p = \eta_p l_1 / (\pi\sqrt{2})$, $u_z = u_p + \sqrt{2} \cdot z / l_1$. В отличие от углового распределения $I_g^c(\Delta\vartheta)$ пространственное распределение $I_g^c(z)$ зависит лишь от одного параметра u_z , при этом $C(u_p)$ и $S(u_p)$ являются постоянными величинами для заданного угла падения рентгеновского пучка.

Пространственное распределение диффузно рассеянной интенсивности для «гауссовой» корреляционной функции [20,21] $G = \exp \times \times (-\pi\xi^2/(4\tau_0^2))$ имеет вид

$$I_g^d(z) \approx 2|\sigma_g|^2 (1 - E^2) l_1^2 \{ \text{erf}(y_z) - \text{erf}(y_p) \} / 4, \quad (6)$$

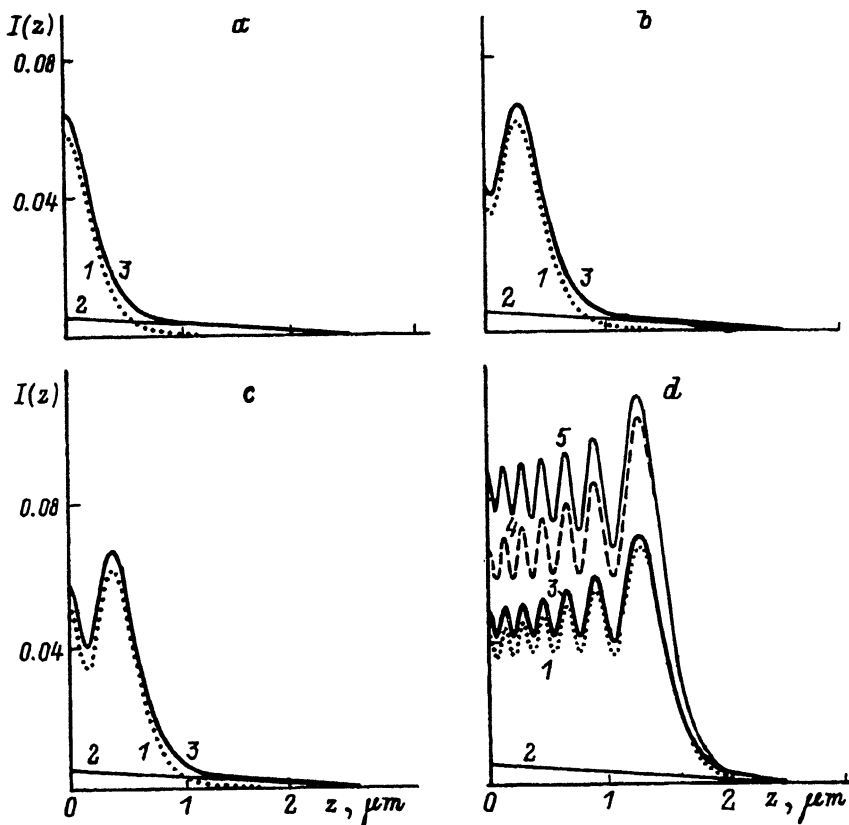


Рис. 2. Распределение рассеянной интенсивности по толщине градиентного слоя с профилем деформации на рис. 1 для различных углов.

$\Delta\vartheta$ ("): *a* — 172, *b* — 152, *c* — 142, *d* — 64. 1 — когерентная, 2 — диффузная, 3 — полная КДО для $E = 0.8$, 4 — для $E = 1.0$, 5 — без учета фотопоглощения, $E = 1.0$.

где τ_0 — характеристика среды, известная как корреляционная длина

Като [16], $\text{erf}(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y \exp(-x^2) dx$ — интеграл вероятности. Здесь с учетом $\tau_0/l_1 \ll 1$, что реализуется практически всегда, введены параметры $y_p = \tau_0 \cdot \eta_p / \sqrt{\pi}$, $y_z = y_p + 2\sqrt{\pi}\tau_0 \cdot z/l_1^2$.

При численном моделировании рассеянных интенсивностей в объеме градиентного кристалла использованы решения (5), (6). На рис. 2 показано формирование отраженных интенсивностей по глубине градиентного слоя с однородно распределенными дефектами (статический фактор $E = 0.8$, корреляционная длина Като $\tau_0 = 0.01 \mu\text{m}$) для полученного начального приближения профиля деформации ($(\Delta d/d)_{\text{max}} = 0.0016$, $l = 2.5 \mu\text{m}$). Этот рисунок иллюстрирует выход когерентной, диффузной и полной интенсивности в зависимости от фиксированных угловых отстроек. Данные результаты полностью согласуются с формализмом метода фазовых слоев [34]. Для угла $\Delta\theta = -172''$ первый фазовый (дифракционный) слой толщиной $2l_1 \approx 0.9 \mu\text{m}$ формируется у входной поверхности градиентного кристалла. Поскольку над ним нет

антифазного слоя, наблюдается выход максимальной интенсивности (рис. 2,а). Для угла $\Delta\vartheta = -152''$ «брэгговский период» смещается на большее расстояние в глубь кристалла и сверху формируется второй фазовый (антифазный) слой, который гасит дифракционную интенсивность (рис. 2,б). На КДО это соответствует первому минимуму на осцилляционной структуре. Точное положение минимума приходится на угол $\Delta\vartheta = -153''$, поэтому на рис. 2,б минимальное значение интенсивности не совпадает с $z = 0$. Имеет место некоторое увеличение интенсивности из-за того, что «брэгговский период» сместился глубже и сверху сформировалась часть третьего (синфазного) фазового слоя. Полное действие этого слоя будет иметь место при $\Delta\vartheta = -142''$, что соответствует положению второго осцилляционного максимума на КДО (рис. 2,с). Для угла $\Delta\vartheta = -64''$ «брэгговский период» сместится достаточно глубоко по толщине кристалла. Над ним формируется определенное число (в нашем случае 13) синфазно и антифазно пропускающих слоев (рис. 2,д). Следует отметить, что на них не происходит дифракционного рассеяния. На рис. 2,д показаны распределения рассеянных интенсивностей по глубине для «идеального» градиентного слоя с учетом (кривая 4) и без учета (кривая 5) фотоэлектрического поглощения. На рис. 2 приведены также диффузные компоненты рассеянной интенсивности. Механизм формирования выходящей диффузной интенсивности аналогичен выходу когерентной компоненты. Как и дифракция когерентных волн, диффузное рассеяние осуществляется на первом фазовом слое. В отличие от когерентной составляющей диффузно рассеянные кванты не испытывают интерференционных эффектов при прохождении градиентной решетки. Поэтому профиль распределения диффузной составляющей по глубине градиентного слоя не имеет осцилляционной структуры.

3. Определение структурных параметров градиентного слоя по интенсивности рассеянного излучения

Второй метод, который был использован для получения предварительной информации о структурных характеристиках градиентного слоя, изложен в [38]. В отличие от первого метода [34,35], в котором основная роль отводилась интерференционным осцилляциям, данный подход требует измерений отраженной интенсивности. Когерентно рассеянная от градиентного слоя интенсивность в угловой области формирования КДО приблизительно равна

$$I_g^c \approx |E \cdot l_1 / l_{\text{ext}}|^2. \quad (7)$$

Из (7) непосредственно следует вывод о том, что в кристалле с постоянным градиентом деформации при $l_1 < l$, где l — толщина кристалла, дифракционное рассеяние происходит только на первом фазовом слое. При этом чем выше степень аморфизованности слоя градиентной пленки, тем слабее отражательная способность первого фазового слоя. При изменении направления падающего на кристалл рентгеновского пучка в пределах угловой области КДО этот фазовый слой перемещается от входной поверхности до нижней границы. На рис. 3 приведены профиль деформации (а), полученный с помощью формул работы [38], и

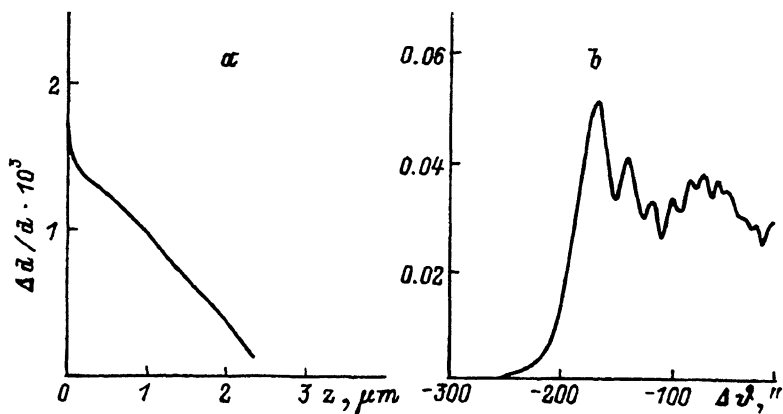


Рис. 3. Профиль деформации (а), полученный с помощью метода [38], и фрагмент экспериментальной КДО, используемой при расчетах (б).

фрагмент экспериментального спектра (б), используемый при расчетах. Как видно из этого рисунка (ср. с рис. 1), линейный участок профиля деформации приблизительно согласуется с результатами, полученными по первому методу [34,35].

В настоящей работе мы показали, что два экспрессных метода рентгенодифракционной диагностики дают согласующиеся результаты. Заметим, что совсем недавно эти два метода уже использовались при изучении однородности эпитаксиальных слоев вдоль ростовой поверхности [39]. В наших исследованиях метод «фазовых слоев» дает толщину градиентного слоя, равную $2.55 \mu\text{m}$, метод «стационарной фазы» — $2.49 \mu\text{m}$. Соответственно средний градиент деформации по первому методу составляет $6.4 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$, по второму — $6.0 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$. Следует отметить, что возможности второго метода более обширны. Метод «фазовых слоев» хотя и является более экспрессным, но применим лишь для структур с постоянным или близким к постоянному градиентом деформации. Метод «стационарной фазы» может быть использован для большего класса профилей деформации [38]

Авторы признательны В. Бушуеву за обсуждение результатов, Б. Явичу и М. Сеницыну за предоставление гетероэпитаксиальной градиентной структуры.

Работа поддержана Международным научным фондом (гранты NU 6000, NU 6300).

Список литературы

- [1] Xiong F., Tombrello T.A., Chen H.Z., Morkoc H., Yariv A. J. Vac. Sci. Technol. **B6**, 2 758 (1988).
- [2] Красильников В.С., Югова Т.Г., Бублик В.Т., Дроздов Ю.Н., Малькова Н.В., Шепекина Г.В., Хансен К.Р., Резов А.В. Кристаллография **33**, 6, 1469 (1988).
- [3] Bartels W.J., Hornstra J., Lobeek D.J.W. Acta Cryst. **A42**, 539 (1986).
- [4] Lakhani A.A. Materials Lett. **2**, 6A&B, 508 (1984).
- [5] Van der Sluis P. J. Phys. D.: Appl. Phys. **26**, A188 (1993).

- [6] Halliwell M.A.G. *Microscopy of Semiconductor Materials*. Oxford (1981). Inst. Phys. Conf. Ser. 60. (Inst. Phys. London-Bristol (1981)). P. 271-276.
- [7] Halliwell M.A.G., Juler J., Norman A.G. *Microscopy of Semiconductor Materials*. Oxford (1983). Inst. Phys. Conf. Ser. 67. (Inst. Phys. London-Bristol (1983)). P. 365-370.
- [8] Halliwell M.A.G., Lyons M.H., Hill M.J. *J. Cryst. Growth* **68**, 2, 523 (1984).
- [9] Елюхин В.А., Конников С.Г., Неменов М.И., Сорокина Л.П., Фалеев Н.Н. *ЖТФ* **54**, 10, 2077 (1984).
- [10] Macrander A.T. *Ann. Rev. Mater. Sci.* **18**, 283 (1988).
- [11] Baumbach T., Bruhl H.-G., Rhan H., Pietsch U. *J. Appl. Cryst.* **21**, 5, 386 (1988).
- [12] Степанов А.А., Хилевая С.В., Эглая А.П. *Поверхность*, 4, 156 (1991).
- [13] Степанов А.А. *Кристаллография* **37**, 5, 1122 (1992).
- [14] Stepanov A.A. *J. Appl. Cryst.* **27**, 1, 7 (1994).
- [15] Kolpakov A.V., Punegov V.I. *Solid State Commun.* **54**, 7, 573 (1985).
- [16] Kato N. *Acta Cryst A* **36**, 5, 763, 770 (1980).
- [17] Holy V. *Phys. Stat. Sol. (b)* **111**, 1, 341 (1982).
- [18] Бушуев В.А. *ФТТ* **31**, 11, 70 (1989).
- [19] Пунегов В.И. *Кристаллография* **35**, 3, 576 (1990).
- [20] Пунегов В.И. *ЖТФ* **61**, 12, 71 (1991).
- [21] Punegov V.I., Vishnjakov Yu.V. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, A184 (1995).
- [22] А.В. Гончарский, А.В. Колпаков, А.А. Степанов. *Обратные задачи рентгеновской дифрактометрии*. Рига (1992). 181 с.
- [23] Afanasev A.M., Kovalchuk M.V., Kovev E.K., Kohn V.G. *Phys. Stat. Sol. (a)* **42**, 415 (1977).
- [24] Kohn V.G., Kovalchuk M.V., Imamov R.M., Lobanovich E.F. *Phys. Stat. Sol. (a)* **64**, 435 (1981).
- [25] Степанов С.А., Кондрашкина Е.А., Чузо А.Н. *Поверхность*, 9, 112 (1988).
- [26] Афанасьев А.М., Фанченко С.С. *ДАН СССР* **287**, 6, 1395 (1986).
- [27] Afanasev A.M., Fanchenko S.S., Maslov A.V. *Phys. Stat. Sol. (a)* **117**, 2, 341 (1990).
- [28] Завьялова А.А., Иманов Р.М., Ломов А.А., Маслов А.В., Маргушев З.Ч. *Кристаллография* **32**, 5, 1235 (1987).
- [29] Kyutt R.N., Petrashen P.V., Sorokin L.M. *Phys. Stat. Sol. (a)* **60**, 381 (1980).
- [30] Варганьяц И.А., Ковальчук М.В., Кон В.Г., Николаенко А.М., Харитонов И.Ю. *Письма в ЖЭТФ* **49**, 11, 630 (1989).
- [31] Дарбинян С.П., Петрашень П.В., Чуховский Ф.Н. *Кристаллография* **37**, 4, 854 (1992).
- [32] Подоров С.Г., Пунегов В.И., Кусиков В.А. *ФТТ* **36**, 3, 827 (1994).
- [33] Pavlov K.M., Punegov V.I., Faleev N.N. *X-ray topography and high resolution diffraction*. 2nd Europ. Symposium. Berlin (5-7 September 1994). P. 163; Павлов К.М., Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. *ЖЭТФ* **107**, 6, 1967 (1995).
- [34] Колпаков А.В., Пунегов В.И. *Вестн. МГУ. Сер. 3, Физика, астрономия* **27**, 5, 85 (1986).
- [35] Колпаков А.В., Пунегов В.И. *Поверхность*, 3, 82 (1988).
- [36] Шустер А. *Введение в теоретическую оптику*. Л.-М. (1985). 376 с.
- [37] Пунегов В.И. *Деп. в ВИНТИ, рег. № 8903-В 87. Сыктывкар* (1987). 29 с.
- [38] Кон В.Г., Прилепский М.В., Суходрева И.М. *Поверхность*, 11, 122 (1984).
- [39] Бушуев В.А., Хапачев Ю.П., Лидер В.В. *Письма в ЖТФ* **19**, 23, 74 (1993).