

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ СТРУКТУРНЫХ ПАРАМЕТРОВ
ГРАДИЕНТНОГО ЭПИТАКСИАЛЬНОГО СЛОЯ
МЕТОДАМИ ВЫСОКОРАЗРЕШАЮЩЕЙ
РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКТОМЕТРИИ.
II. РЕШЕНИЕ ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ В РАМКАХ
КИНЕМАТИЧЕСКОЙ И СТАТИСТИЧЕСКОЙ
ДИНАМИЧЕСКОЙ ТЕОРИИ ДИФРАКЦИИ**

© *В.И.Пучегов, К.М.Павлов, С.Г.Подоров, Н.Н.Фалеев*

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

Экспериментальные результаты высокоразрешающей двух- и трехкристалльной дифрактометрии использованы для решения обратной задачи рентгеновской дифракции на градиентной гетероэпитаксиальной системе $\text{AlGaAs}/(001)\text{GaAs}$. Два метода, разработанные в рамках кинематического приближения (итерационный расчет) и статистической динамической теории дифракции (методом прямого поиска); лежат в основе решения данной проблемы. В процессе вычислений структурных характеристик неоднородного эпитаксиального слоя использовалось начальное приближение, полученное экспрессными методами рентгенодифракционной диагностики. Проведены расчеты профиля деформаций, а также распределения концентрации и размеров дефектов по глубине градиентного эпитаксиального слоя.

В ряде задач по определению атомно-кристаллического строения неоднородных полупроводниковых систем с помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии оказывается вполне достаточным получение приблизительных структурных характеристик исследуемого объекта. Эта проблема быстро и эффективно решается с помощью простых экспрессных методов рентгенодифракционной диагностики (см. [1] и приведенные там ссылки). Однако полное детальное восстановление структурных параметров представляет довольно сложную вычислительную процедуру [2]. При этом фактически всегда, когда реализуется сложный расчетный алгоритм, имеет смысл приступать к решению обратной задачи при наличии априорной информации об эпитаксиально выращенной структуре. Немаловажным (а в некоторых случаях и решающим) является использование ранее полученного начального приближения.

Цель данной работы — показать эффективность комплексного применения разных методов вычислительной рентгенодифракционной диагностики градиентных структур и продемонстрировать возможность

одновременного получения профилей деформаций, статических факторов Дебая-Валлера и размеров дефектов по глубине неоднородного слоя.

1. Предварительные результаты и экспериментальные данные

В работе [1] двухкристальный рентгенодифракционный спектр градиентной гетеросистемы $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ ($x = 0.0-0.6$) служил для предварительной экспрессной обработки с целью получения усредненных по глубине характеристик кристаллической структуры. Полученные в процессе исследования данные о толщине градиентного эпитаксиального слоя ($2.5 \mu\text{m}$) и градиенте деформации решетки ($6 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$) используются здесь в качестве начального приближения решения задачи.

В основе вычислительной процедуры рентгенодифракционной диагностики лежат двух- и трехкристальные рентгеновские спектры от

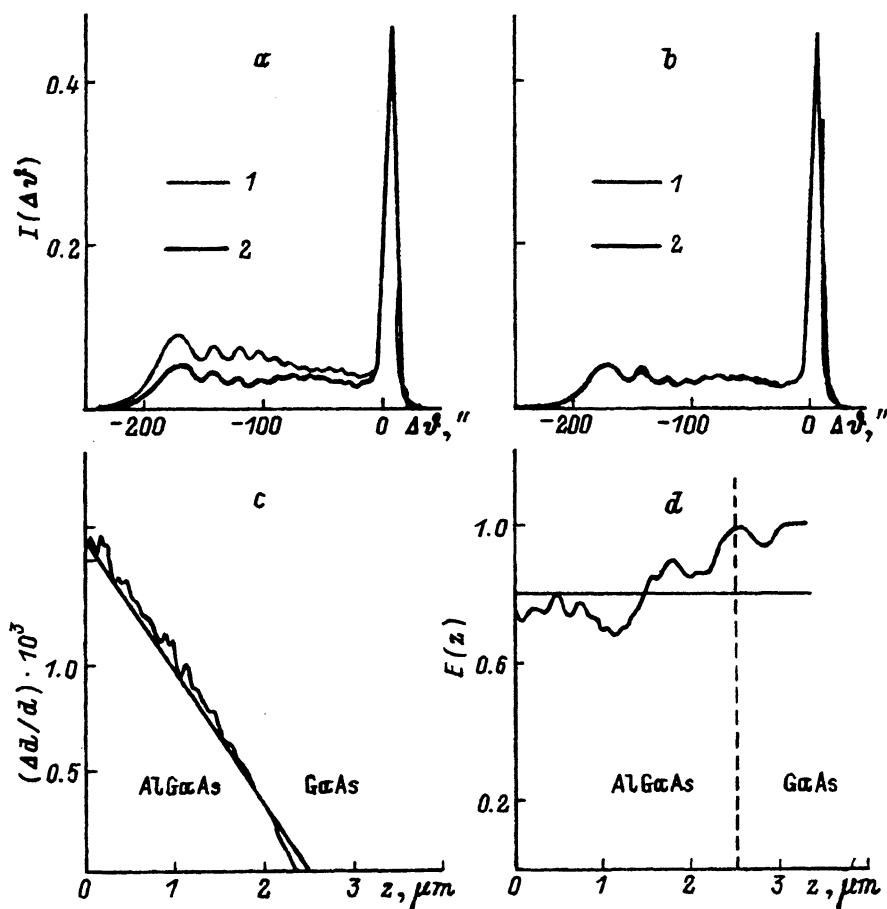


Рис. 1. Теоретическая (1) и экспериментальная (2) двухкристальные КДО (a,b); профили деформации (c) и статического фактора Дебая-Валлера (d), полученные с помощью «метода итераций».

Горизонтальная линия (d) — среднее значение статического фактора.

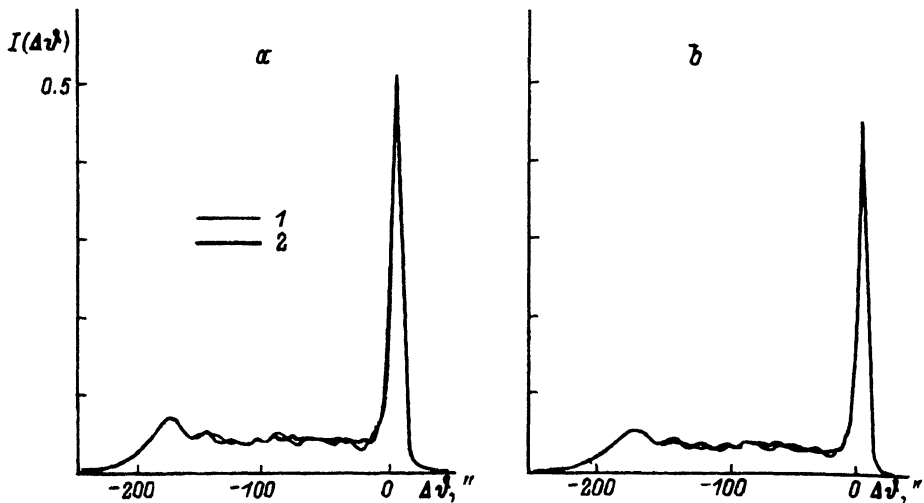


Рис. 2. Теоретические (1) и экспериментальные (2) двух- (а) и трехкристалльные (b) КДО от градиентного слоя.

Решение обратной задачи в рамках статистической динамической теории дифракции.

неоднородной эпитаксиальной структуры. Сведения о двухкристалльной дифрактометрии приведены в [1]. В трехкристалльной схеме в качестве третьего кристалла-анализатора применялся асимметричный кристалл Ge(001) с углом входа для отражения (004) порядка 4° . Трехкратные кривые дифракционного отражения (КДО) снимались при одновременном $\vartheta-2\vartheta$ -сканировании исследуемого образца и кристалла-анализатора.

Поскольку нет сильного различия (по крайней мере визуально) между дифракционными спектрами, полученными в режимах двух- и трехкристалльной дифрактометрии, можно утверждать, что основной вклад в формирование КДО дает когерентная составляющая. Двухкристалльная экспериментальная КДО приведена на рис. 1 и 2,а. Трехкристалльный дифракционный спектр изображен на рис. 2,б.

2. Кинематическое приближение. Метод итераций в решении обратной задачи дифракции

В [3,4] предложен новый простой алгоритм решения обратной задачи восстановления профиля деформации нарушенного слоя в рамках кинематического приближения. Предполагалось, что мелкомасштабные флуктуационные поля смещений статистически распределенных микродефектов малы, так что влиянием диффузной компоненты на КДО можно пренебречь. Кроме того, рассматривались объекты, в которых осцилляционная структура КДО от нарушенного слоя расположена на относительно большом угловом расстоянии от пика подложки, и, следовательно, влияние интерференционного эффекта, вызванного дифракционным рассеянием, на подложке и пленке можно не учитывать. В [3] приводится простая формула для вычисления профиля деформации

$$\frac{\Delta d}{d}(z) = \frac{d}{2\pi} \operatorname{Re} \left\{ \frac{A_1(z)}{A_0(z)} \right\},$$

где

$$A_1(z) = \int_{\Delta\Omega} \eta^r e^{-i\eta^r z} R e^{i\varphi} d\eta, \quad A_0(z) = \int_{\Delta\Omega} e^{-i\eta^r z} R e^{i\varphi} d\eta,$$

$$\eta^r = \frac{2\pi}{\lambda\gamma_0} \left(\chi_0^r + \sin 2\vartheta_0 \Delta\vartheta \right), \quad \chi_0^r = \text{Re}(\chi_0)$$

(обозначения см. в [3]). Модуль амплитудного коэффициента отражения R непосредственно берется из экспериментальной КДО $I_g(\eta)$. Информация о фазе φ отсутствует, поэтому вычисление профиля деформации сводится к итерационной процедуре [3]. Отметим, что формулы для определения профиля деформации, приведенные в [3], легко модифицируются для исследования дифракции от тонкого кристаллического слоя, лежащего на толстой совершенной подложке.

Результаты вычислений по этому методу показаны на рис. 1. В качестве начального приближения служили данные, полученные с помощью метода «фазовых слоев» [1]. Стартовая КДО (тонкая линия на рис. 1,а) соответствует профилю, изображенному на рис. 1,с (прямая линия). Толстая линия (рис. 1,а,б) соответствует экспериментальному дифракционному спектру. В процессе вычислений достигнуто хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными результатами, которые иллюстрирует рис. 1,б. Полученные профили деформации и статического фактора Дебая–Валлера изображены на рис. 1,с,д соответственно. Из этих результатов следует, что распределение дефектов в слое неоднородно. Имеются сильно нарушенные участки кристаллической структуры на глубине порядка 1–1.5 μm и вблизи подложки. Среднее значение статического фактора Дебая–Валлера по всей глубине слоя очень близко к величине 0.8 (прямая линия на рис. 1,д), что также согласуется с предварительными оценками. Вычисления показывают, что поверхность подложки не является свободной от дефектов. Приповерхностный слой подложки толщиной 0.5 μm имеет нарушения структуры, по-видимому обусловленные миграцией дефектов из эпитаксиального слоя.

Резюмируя полученные результаты, следует отметить, что длина экстинкции «идеальной» градиентной решетки со средним значением концентрации алюминия $\langle x \rangle \approx 0.3$ (концентрация x изменяется по толщине от нуля на гетерогранице подложки и слоя до приблизительно 0.6 на поверхности эпитаксиального слоя) составляет порядка 1.7 μm . Наличие дефектов структуры (средний по толщине статический фактор Дебая–Валлера приблизительно равен 0.8) приводит к экстинкционной длине, превышающей 2 μm . Если учесть к тому же, что решетка является градиентной, т.е. дифракционное рассеяние имеет место на участке толщиной порядка 1 μm , заключаем, что 1) дифракция на исследуемой структуре не является строго динамической или строго кинематической, а носит промежуточный характер; 2) применение кинематических формул не дает больших ошибок и в данном случае оправдано, так как существенно уменьшает время машинного счета; 3) однако для более точного определения структурных характеристик исследуемого образца следует использовать динамическую теорию дифракции.

3. Формализм статистической динамической теории дифракции для расчетов КДО от градиентных кристаллов

В геометрии Брэгга для расчетов КДО от дефектных градиентных кристаллов произвольной толщины следует использовать результаты статистической динамической теории дифракции [5] в рамках формализма, предложенного Като [6]. В основополагающей работе Топэна [7] для таких расчетов (в рамках когерентного приближения) получено нелинейное дифференциальное уравнение типа Риккати. При наличии в градиентном кристалле статистически распределенных микродефектов аналогичное уравнение для когерентных полей получено в [5]. Поскольку на формирование профиля КДО влияет и диффузное рассеяние, в [5] приводится уравнение для вычисления углового распределения некогерентного рассеянного излучения, обусловленного статистически распределенными микродефектами.

В случае, когда можно пренебречь эффектами диффузного поглощения ($\mu_d l \ll 1$, μ_d — коэффициент диффузного поглощения, l — толщина градиентного слоя), что очень часто имеет место при дифракции на реальных гетероэпитаксиальных системах, уравнения дифракции допускают аналитические решения для кристалла с постоянным градиентом деформации [8]. Эти решения как для когерентной КДО, так и углового распределения диффузного рассеяния выражаются через функции Вебера (параболического цилиндра) $D_{-\nu}(t)$, где индекс $\nu \approx (i2\pi)^{-1}(l_1 E/l_{\text{ext}})^2$ определяет характер дифракционного рассеяния (при малых ν имеет место кинематическая дифракция). Величина этого индекса не только определяется отношением толщины дифракционного слоя (или первого фазового (френелевского) слоя) l_1 к длине экстинкции l_{ext} , как это имело место в когерентном приближении, но и зависит от статического фактора Дебая-Валлера E .

Решение обратной задачи рентгеновской дифракции на основе численного интегрирования уравнения Топэна (без учета диффузного рассеяния) проведено в [9]. Однако в рамках формализма статистической динамической теории дифракции с учетом двух каналов дифракционного рассеяния (когерентного и диффузного) такой подход сопряжен с большими, порой непреодолимыми трудностями. В частности, учет изменения по глубине концентрации и размеров дефектов сильно усложняет формализм статистической динамической теории дифракции и делает вычислительную процедуру непомерно трудной. Более перспективным в этом отношении является метод рекуррентных соотношений в рамках статистической динамической теории дифракции [10].

Таким образом, следующий этап решения обратной дифракционной задачи восходит к вычислительной процедуре с использованием вышеупомянутых рекуррентных соотношений. Алгоритм решения прямой задачи с использованием этого формализма предложен в недавней работе [11]. Результаты решения обратной задачи дифракции на лазерной гетероструктуре с использованием данных высокоразрешающей двух- и трехкристальной дифрактометрии представлены в [12]. В данной работе метод минимизации функционала невязки [13] коэффици-

ентов отражения применялся к поиску структурных параметров градиентной системы с разбиением на 16 элементарных слоев. В качестве стартового приближения решения выбран концентрационный профиль, соответствующий данным предварительной обработки (рис. 1,с).

Результаты численного решения обратной дифракционной задачи показаны на рис. 2 (*a* — двухкристалльная КДО, *b* — трехкристалльная КДО в режиме $\vartheta-2\vartheta$ -сканирования). Тонкой сплошной линией показаны теоретические КДО, толстой — экспериментальные спектры. Профили деформации, распределения статического фактора Лебая-Валлера и среднего радиуса дефектов приведены на рис. 3. На предварительной стадии вычислений нами использовалась исключительно сконструированная корреляционная функция в виде гауссовой зависимости в выражении для корреляционной длины. Корреляционная длина позволяет изначально оценить средний размер дефектов. Дальнейшие вычисления проводились для сферически-симметричных дефектов «кулоновского» типа [14,15].

4. Обсуждение результатов

Таким образом, нами были использованы четыре метода (включая экспрессные методы определения начального приближения) для рентгенодифракционной диагностики неоднородной эпитаксиальной системы с приблизительно постоянным градиентом деформации. Все эти методы приводят к близким результатам пространственного распределения деформаций. Первые два метода («фазовых слоев» и «стационарной фазы») [1] достаточно просты, однако не дают полной информации о структурных особенностях градиентного слоя. С другой стороны, эти два метода успешно используются для экспрессной обработки дифракционных данных при наличии большого количества экспериментальных спектров, когда точность результатов не имеет принципиального значения. Два других метода достаточно трудоемки и не лишены недостатков [3,12]. Однако комплексное использование спектров, снятых в двух дифракционных режимах, снижает вероятность неправильных вычислений.

Сравнивая результаты, полученные с помощью вышеизложенных методом, видим, что градиент деформации решетки не является строго постоянным по всей толщине. Изменение концентрации твердого раствора вблизи подложки более сильное, чем в приповерхностной области. Однако если метод итераций не указывает на флуктуационные сбои в начальной стадии ростового процесса (рис. 1,с), то эти сбои ясно видны из результатов комплексных расчетов по рекуррентным соотношениям (рис. 3). Очевидно, именно провал на профиле деформаций на глубине порядка $2 \mu\text{m}$ отвечает за отклонение формы экспериментальной КДО от дифракционного спектра «идеальной» структуры с постоянным градиентом в угловой области ($-100''$)—($-20''$) (рис. 1). Отклонение от монотонности в поведении профиля деформации имеет место также в приповерхностной области градиентного слоя (на глубине приблизительно $0.75 \mu\text{m}$). Возможно, эти «провалы» профиля деформаций связаны с релаксацией напряженного состояния в процессе эпитаксиального роста.

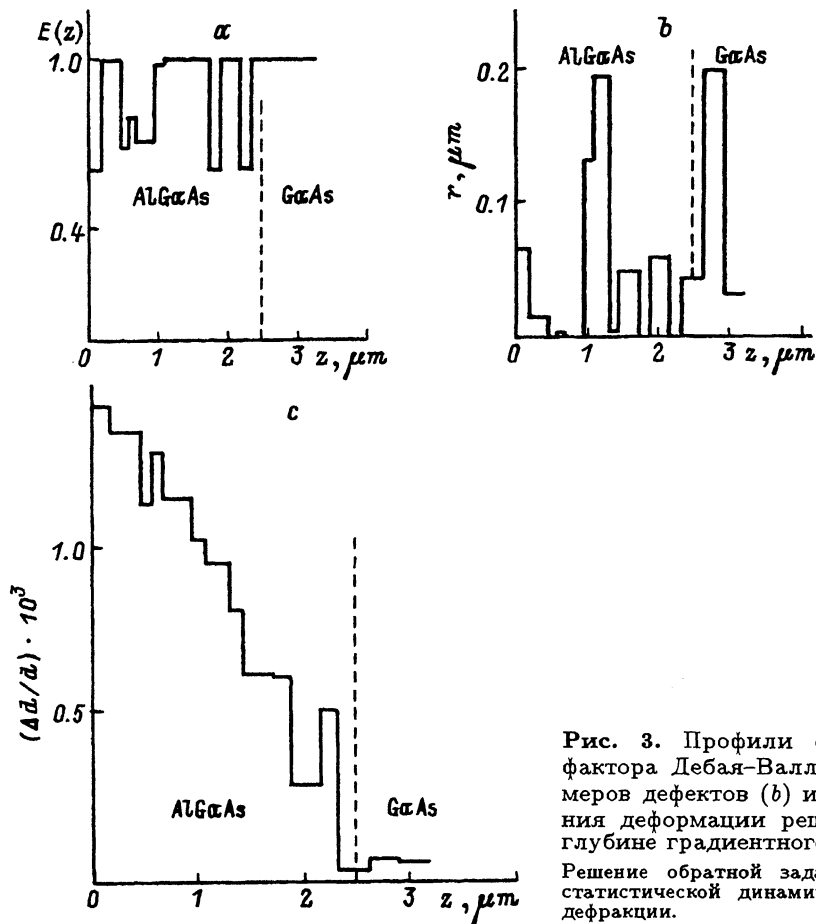


Рис. 3. Профили статического фактора Лебая–Валлера (а), размеров дефектов (б) и распределения деформации решетки (с) по глубине градиентного слоя.

Решение обратной задачи в рамках статистической динамической теории дифракции.

Что касается статического фактора Лебая–Валлера, то имеется качественное согласие результатов, полученных двумя методами. Вдоль нормали в глубь градиентного слоя в области от 0.5 до 1.0 μm , по данному методу «рекуррентных» соотношений, находится сильно нарушенный участок. Из расчетов по итерационному методу этот участок имеет большую толщину. Его протяженность по глубине составляет порядка 10 μm . Данная «нарушенная» область совпадает с «провалом» на профиле деформации (рис. 3). Таким образом, на рассматриваемом участке градиентного слоя имеется корреляция между релаксацией напряженного состояния (частичного снятия деформации) и увеличенной степенью аморфизованности. Если учесть, что размеры дефектов в этой области малы (рис. 3, б), то, следовательно, велика их концентрация. Скорее всего, это точечные дефекты и их скопления (кластеры небольшого радиуса). По соседству имеется участок слоя, который содержит дефекты больших размеров (до 0.2 μm) при малой их концентрации. По-видимому, здесь, а также на границе с подложкой сосредоточены крупные кластеры или дислокационные петли.

Еще один достаточно сильно нарушенный участок градиентного слоя лежит в промежутке между 1.8 и 2.2 μm . Это также соответствует «провалу» на профиле деформаций. В отличие от первого нарушенно-

го участка здесь дефекты имеют большие размеры (порядка $0.05 \mu\text{m}$). Причиной появления этих дефектов может служить недостаточно чистая поверхность подложки. Наконец, оба метода выявляют определенно сильное повреждение кристаллической структуры в тонком приповерхностном слое толщиной порядка $0.3 \mu\text{m}$. Скопление дефектов в этой области размерами около $0.07 \mu\text{m}$ (предположительно кластеров) объясняется снятием здесь упругих напряжений.

Предложенная в настоящей работе методика последовательного получения информации о структурных характеристиках градиентного слоя с использованием данных высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии предполагает использование ее для других градиентных структур, таких как диффузионные и ионно-имплантированные кристаллы. В отличие от работы [12] мы усовершенствовали метод «рекуррентных соотношений». В настоящей работе варьировались толщины слоев разбиения данной градиентной структуры. Несмотря на довольно трудоемкий процесс определения и уточнения структурных характеристик градиентной системы, цель данного исследования достигнута. С другой стороны, нельзя утверждать, что получены стопроцентно правильные результаты. Данная задача не исследовалась на предмет однозначности полученного решения [2,16]. К тому же не получено «абсолютного» согласия экспериментальных и теоретических дифракционных спектров. Однако уже на данной стадии решения поставленной задачи имеются достаточно ясные представления о существующих структурных особенностях градиентного слоя.

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

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

Список литературы

- [1] Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. ФТТ. Наст. вып. С. 255
- [2] Гончарский А.В., Колпаков А.В., Степанов А.А. Обратные задачи рентгеновской дифрактометрии. Рига (1992). 181 с.
- [3] Подоров С.Г., Пунегов В.И., Кусиков В.А. ФТТ **36**, 3, 827 (1994).
- [4] Колпаков А.В., Пунегов В.И. Поверхность, **3**, 82 (1988).
- [5] Punegov V.I., Petrakov A.P., Tikhonov N.A. Phys. Stat. Sol. (a) **122**, 2, 449 (1990).
- [6] Kato N. Acta Cryst. **A36**, 5, 763, 770 (1980).
- [7] Taupin D. Bull. Soc. Franc. Miner. Crist. **87**, 469 (1964).
- [8] Punegov V.I., Vishnjakov Yu.V. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, A184 (1995).
- [9] Гончарский А.В., Колпаков А.В., Степанов А.А. Поверхность, **12**, 66 (1986).
- [10] Punegov V.I. Phys. Stat. Sol. (a) **136**, 1, 9 (1993).
- [11] Пунегов В.И. Письма в ЖТФ **20**, 2, 25 (1994).
- [12] Pavlov K.M., Punegov V.I., Faleev N.N. X-ray topography and high resolution diffraction/2nd European Symposium. Berlin / (5-7 September 1994). P.163; Павлов К.М., Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. ЖЭТФ **107**, 6, 1967 (1995).
- [13] Химмельблау Д. Прикладное нелинейное программирование. М. (1975). 534 с.
- [14] Holy V. Acta Cryst. **A40**, 675 (1984).
- [15] Кривоглаз М.А. Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. Киев (1983). 408 с.
- [16] Афанасьев А.М., Фанченко С.С. ДАН СССР **287**, 6, 1395 (1986).