

05:06

Структурная характеристика сверхрешеток AlGaN/GaN на основе 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 24 августа 2011 г.

По схеме Реннинера измерена трехволновая дифракция рентгеновских лучей от эпитаксиальных сверхрешеток AlGaN/GaN, выращенных методом МOCVD на *c*-сапфире. В качестве первичного взято запрещенное отражение 0001. В положении каждого трехволнового рефлекса измерялись пики θ -сканирования. Из угловых положений пиков на диаграмме Реннинера (кривых φ -сканирования) определены средние параметры *a* и *c* сверхрешеток. Показана возможность получения дифракционной картины с сателлитами на $\theta-2\theta$ -кривой 0001-отражения в азимутальном положении трехволновой дифракции. Проанализированы угловые полуширины дифракционных пиков как φ -, так и θ -сканирования в их связи с дефектной структурой слоев. На этой основе предлагается новый метод определения структурных параметров сверхрешеток.

Гетероструктуры, в частности сверхрешетки (СР) на основе AlGaN–GaN, привлекают повышенное внимание исследователей ввиду их практического применения в оптоэлектронных приборах, работающих в фиолетовой и ультрафиолетовой областях спектра. Поскольку физические свойства системы и характеристики приборов на ее основе зависят от напряжений и дефектов в эпитаксиальных слоях, определение структурных параметров СР является важным как с приборной, так и технологической точки зрения.

В структурном отношении СР AlGaN/GaN характеризуются периодом и толщиной отдельных слоев, составом слоя AlGaN, деформацией отдельных слоев и, следовательно, степенью их релаксации. При этом последняя может быть как релаксацией всей СР в среднем относительно подложки (или буферного слоя), так и релаксацией между отдельными

слоями СР [1]. Дефектная структура определяется, в основном, различными семействами дислокаций. При этом СР могут быть разделены на две группы — структуры с прямолинейными прорастающими дислокациями краевого и винтового типа и более хаотическим распределением дислокаций с большим количеством горизонтальных фрагментов [2]. Кроме того, обнаружены также прорастающие дислокации, проходящие под наклоном к гетерогранице [2]. Вся эта информация может быть получена из анализа картины двухволновой дифракции, измеренной в комбинации нескольких геометрий дифракции.

Трехволновая дифракция достаточно редко используется для структурных исследований эпитаксиальных слоев. Исключение составляют несколько работ, где по угловому положению трехволновых пиков на диаграмме Реннингера определялись параметры эпитаксиального слоя [3–5]. Первые измерения диаграмм Реннингера для слоев с вюрцитной структурой (GaN и ZnO) были проведены в работах [6–8]. В [9] изложены результаты более детального исследования трехволновой дифракции в эпитаксиальных пленках GaN и показано, что трехволновая дифракция в схеме Реннингера может оказаться адекватной заменой двухволновых измерений, поскольку позволяет сочетать в себе разную геометрию измерений и получать сведения о деформации и дефектной структуре слоев более простым и экспрессным способом.

По схеме Реннингера трехволновая дифракция в кристаллах измеряется путем настройки образца на первичное симметричное брэгговское отражение и дальнейшего азимутального его вращения вокруг вектора обратной решетки \mathbf{H}_1 первичного отражения (φ -сканирование). В кристаллах со структурой вюрцита в качестве первичного берется запрещенное отражение 0001. При попадании на сферу вальда (в отражающее положение) еще одного узла обратной решетки (вторичное отражение с вектором обратной решетки \mathbf{H}_2) на кривой φ -сканирования фиксируются трехволновые пики. Они возникают за счет так называемого окольного возбуждения (Umweganregung по терминологии Реннингера), так как в этом случае брэгговские условия будут соблюдаться не только для отражений с векторами обратной решетки \mathbf{H}_1 и \mathbf{H}_2 , но автоматически и для рефлекса с вектором $\mathbf{H}_3 = \mathbf{H}_1 - \mathbf{H}_2$. Для этого рефлекса волна с волновым вектором k_2 (дифрагированная для вторичного рефлекса) будет падающей, а отраженная волна пойдет в направлении первичного отражения \mathbf{k}_1 .

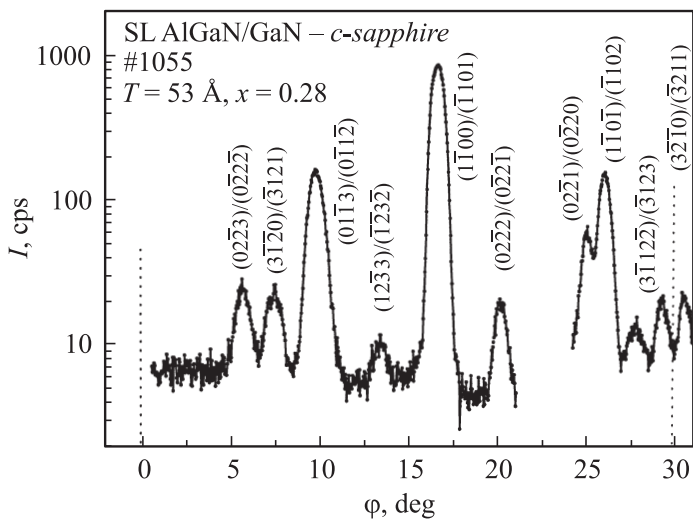


Рис. 1. Диаграмма Реннинера для сверхрешетки AlGaIn/GaN, измеренная для запрещенного первичного отражения 0001 на $\text{CuK}\alpha$ -излучении.

В настоящей заметке сделана первая попытка показать, какая структурная информация может быть получена о сверхрешетках из измерения и анализа картины трехволновой дифракции. В работе измерена трехволновая дифракция по схеме Реннинера в ряде образцов эпитаксиальной СР AlGaIn/GaN, выращенных методом MOCVD на *c*-сапфире с предварительным нанесением буферного слоя GaN. СР имели разный период и содержали разное количество Al в слое $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x = 0.2–0.5$). Ранее они были исследованы методами стандартной двухволновой дифракции [1–2].

Измерения трехволновой дифракции проводились на двухкристальном дифрактометре с использованием первичного запрещенного для структур типа вюрцита отражения 0001. Сканирование по азимутальному углу φ (сканирование по Реннингеру) осуществлялось в положении 2θ для среднего пика СР (нулевого сателлита). На максимуме каждой трехволновой комбинации записывались кривые θ -сканирования.

На рис. 1 представлена диаграмма Реннинера для одного из образцов, измеренная в интервале азимутальных углов ($0–30$)°. $\varphi = 0$

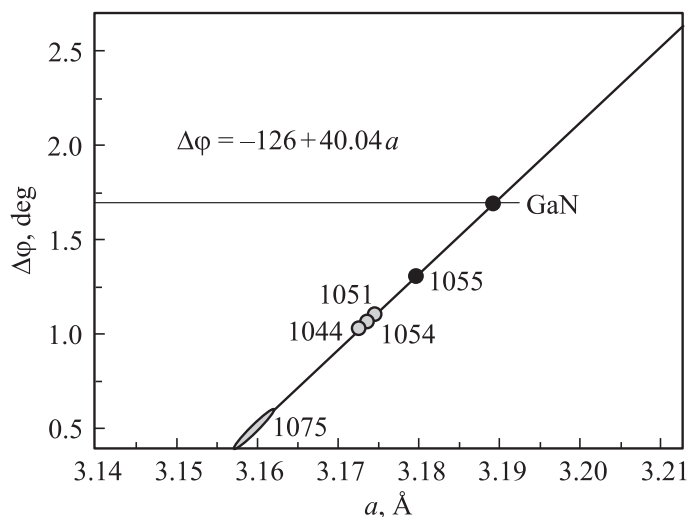


Рис. 2. Расчетное угловое расстояние между соседними трехволновыми пиками $(3\bar{2}\bar{1}0)/(\bar{3}211)$ (MP-10) на диаграмме Реннинера в зависимости от параметра решетки a в интервале параметра $c = 5.150 \pm 0.015$ Å. Точками показаны экспериментальные значения для разных образцов СР.

соответствует положению, при котором вектор $\langle 11-20 \rangle$ лежит в плоскости рассеяния. (Как известно, для гексагональных структур расположение трехволновых пиков зеркально повторяется через каждые 30° [6]). На экспериментальных диаграммах фиксируются все возможные для GaN (и для $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с $x < 0.5$) 10 трехволновых пиков. Их угловое положение, разумеется, определяется средними параметрами a и c сверхрешетки, которые, в свою очередь, обусловлены средней концентрацией Al и деформационным состоянием слоев. Как показано ранее [9], наиболее точно значение a находится из углового расстояния между двумя соседними, зеркально расположенными относительно линии $\varphi = 30^\circ$ трехволновыми пиками $(3\bar{2}\bar{1}0)/(\bar{3}211)$ с большой Лауэ составляющей вторичного рефлекса. На рис. 2 приведена расчетная зависимость этого расстояния от значения параметра a , построенная для интервала значений $c = 5.150 \pm 0.015$ с экспериментальными точками для ряда СР. В свою очередь, параметр c получается из

Таблица 1. Средние параметры решетки CP AlGaIn/GaN, полученные из углового положения пиков Реннингера

Параметр решетки	№ образца				
	1055	1054	1051	1044	1075
$a, \text{Å}$	3.1763	3.1735	3.1746	3.153	3.158
$c, \text{Å}$	5.155	5.155	5.1525	–	–

расстояния между пиками трехволновых комбинаций $(3\bar{1}\bar{2}\bar{2})/(\bar{3}123)$ и $(3\bar{2}\bar{1}0)/(\bar{3}211)$. Погрешность в определении параметров может быть оценена как $\Delta c = 0.0008$ и $\Delta a = 0.0004$ [9]. Полученные значения a и c для нескольких сверхрешеток приведены в табл. 1. Для части структур в пределах погрешности они совпадают со значениями, полученными в двухволновой дифракции.

Если проводить сравнение со стандартной двухволновой дифракцией, то в последней параметр c может быть измерен на трехкристальном дифрактометре в симметричной брэгговской геометрии более точно (погрешность Δc до 0.0002). Однако для определения параметра a требуется измерение асимметричных отражений и построение карт распределения интенсивности, что представляет собой длительную процедуру. Погрешность в значениях получается не лучше, чем $\Delta a = 0.001$, что хуже, чем в трехволновом случае. Кроме того, надо иметь в виду, что средние параметры CP находятся из углового положения нулевого сателлита. Но если для симметричного брэгговского отражения он хорошо идентифицируется как наиболее интенсивный пик, то в асимметричном рефлексе он может быть меньше других сателлитов и идентифицировать его может оказаться труднее.

Угловая ширина пиков на диаграммах Реннингера варьируется в пределах $\Delta\varphi = (0.5-1.0)^\circ$. Для образца с хаотическим распределением дислокаций в слое CP она практически одинакова для всех трехволновых комбинаций. Что касается структур с прямолинейными семействами дислокаций, то для них полуширина пиков φ -сканирования не одинакова для разных пиков. Однако для установления закономерности такого поведения пока не хватает статистики экспериментальных данных. Можно утверждать, что полуширина пиков должна определяться

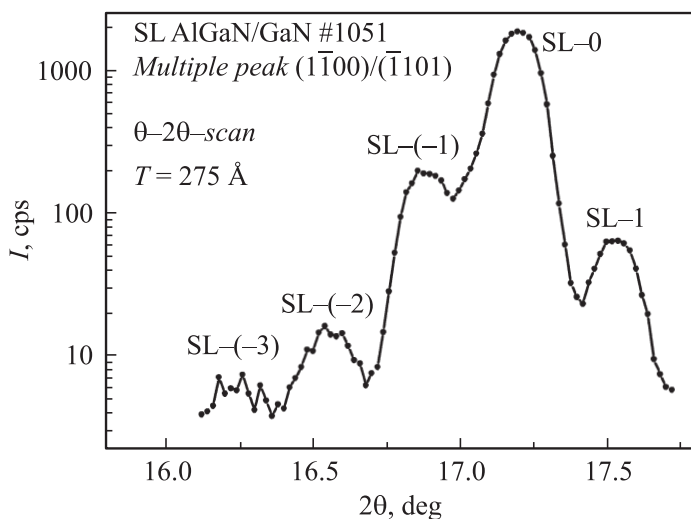


Рис. 3. Кривая $\theta-2\theta$ -сканирования для сверхрешетки AlGaIn/GaN, измеренная для запрещенного отражения 0001 в азимутальном положении, соответствующем трехволновой комбинации $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$.

углами локальных разворотов вокруг нормали к поверхности (twisting), а последние обусловлены прорастающими краевыми дислокациями, как неупорядоченными, так и локализованными в малоугловых границах. Однако разница в полуширинах для разных трехволновых комбинаций показывает, что могут быть и другие влияющие факторы (дисперсионное уширение, изгиб образца, размер областей когерентного рассеяния и др.).

В случае двух сильных волн CP дают дифракционную картину с узлами-сателлитами, периодически распределенными в обратном пространстве в направлении, параллельном нормали к поверхности. Для нитридных слоев, имеющих характерную дислокационную структуру, эти сателлиты хорошо проявляются на кривых $\theta-2\theta$ -сканирования в симметричной брэгговской геометрии для разрешенных отражений. Оказалось, что похожая картина имеет место и для запрещенного отражения 0001 в случае попадания на сферу Эвальда третьего узла. На рис. 3 приведена кривая $\theta-2\theta$ -моды, измеренная в азимутальной

Таблица 2. FWHM пиков θ -сканирования для некоторых трехволновых комбинаций (в угловых секундах)

Номер пика	Отражения	1055 (53 Å)*	1054 (129 Å)	1051 (281 Å)	1044 (470 Å)	1075 (140 Å)
MP-3	(01 $\bar{1}$ 3)/(0 $\bar{1}$ 1 $\bar{2}$)	1205	860	1530	1570	1460
MP-5	(1 $\bar{1}$ 00)/($\bar{1}$ 101)	3580	2830	3480	3870	3660
MP-8	(1 $\bar{1}$ 0 $\bar{1}$)/($\bar{1}$ 102)	1970	1830	2360	2240	2360
MP-10	(3 $\bar{2}$ $\bar{1}$ 0)/($\bar{3}$ 211)	5910	5450	6000	6780	6200

*В скобках указан период сверхрешетки

позиции образца, соответствующей самой интенсивной трехволновой комбинации (1 $\bar{1}$ 00)/($\bar{1}$ 101). При этом угловое расстояние между спутниками соответствует симметричному отражению 0001 по известной формуле $\Delta\theta = \lambda/2T \cos(\theta_B)$, где T — период сверхрешетки.

Вообще говоря, появление спутников в трехволновом рефлексе выглядит неожиданным, так как при угловом сканировании на сферу Эвальда должны попадать одновременно как узел–спутник первичного, так и вторичного рефлексов. Однако переход от одного спутника к другому для брэгговского и лауэвского рефлексов соответствует разным углам поворота образца. Для Лауэр-рефлекса угловое расстояние между спутниками равно $\Delta\theta = \lambda/2T \sin(\theta_B)$, а для брэгговского см. формулу выше.

Если перейти к анализу полуширин пиков θ -сканирования, то здесь сохраняются те же тенденции, которые ранее наблюдались для одиночных слоев GaN [9]. Наиболее широкими и, следовательно, наиболее чувствительными к дефектам являются пики для трехволновых комбинаций с чистыми Лауэ (параллельными поверхности) векторами обратной решетки вторичного рефлекса. При этом, чем больше эта компонента, тем кривые θ -сканирования шире (рефлексы (3 $\bar{1}$ 20)/(3121) и (3 $\bar{2}$ 10)/(3211) (табл. 2). Самые узкие пики имеют место для θ -сканирования трехволновых рефлексов (01 $\bar{3}$ 3)/(0 $\bar{1}$ 1 $\bar{2}$) и (1 $\bar{1}$ 0 $\bar{1}$)/($\bar{1}$ 102) с большими брэгговскими компонентами вектора \mathbf{H}_2 .

Однако FWHM трехволновых θ -пигов для CP оказывается заметно большим, чем для одиночных слоев GaN (см. [9]) при примерно одинаковой степени уширения пиков двухволновой дифракции. Кроме

того, из табл. 2 видно, что значения FWHM достаточно близки для всех исследованных образцов, несмотря на то, что по данным стандартной двухволновой дифракции СР с наибольшим содержанием Al (образец 1075) имеет заметно большую плотность всех семейств дислокаций.

Уширение пиков трехволновой дифракции (как θ -, так и φ -сканирования) может быть обусловлено двумя причинами — самой формой узла обратной решетки вторичного рефлекса и геометрическим фактором (путем, по которому этот узел пересекает сферу Эвальда при сканировании). Форма узла зависит от анизотропии полей смещений вокруг дислокаций и взаимной ориентации векторов смещения и дифракционного вектора [10]. Второй (геометрический) фактор определяется положением узла вторичного рефлекса на сфере Эвальда при соблюдении условий трехволновой дифракции и направлением его движения при сканировании. Вероятно, последний фактор и вызывает разную степень уширения пиков θ -сканирования для разных трехволновых трехволновых комбинаций.

Таким образом, в работе на примере СР AlGaIn/GaN реализован новый метод определения структурных параметров сверхрешеток и оценки их структурного совершенства, основанный на измерении и анализе пиков Ренингера в трехволновой дифракции рентгеновских лучей. Он позволяет проводить измерения в одной простой симметричной брэгговской геометрии и тем самым избежать сложной процедуры перехода от одной геометрии дифракции к другой, как в двухволновом случае.

Список литературы

- [1] Кютт Р.Н., Щеглов М.П., Давыдов В.Ю., Усиков А.С. // ФТТ. 2004. Т. 46. С. 353.
- [2] Кютт Р.Н., Мосина Г.Н., Щеглов М.П., Сорокин Л.М. // ФТТ. 2006. Т. 48. С. 1491.
- [3] 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.
- [4] Korytar D., Ferrary C., Bochnicek Z. // J. Appl. Cryst. 1998. V. 31. P. 570.
- [5] Freitas R.O., Lamas T.E., Quivy A.A., Morelhao S.L. // Phys. stat. sol. (a). 2007. V. 204. P. 2548.
- [6] Blasing J., Krost A. // Phys. Stat. Sol. 2004. V. 201. P. 17.

- [7] *Blassing J., Krost A., Hertkorn J.* et al. // J. Appl. Phys. 2009. V. 105. P. 033504.
- [8] *Кюмм Р.Н.* // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. В. 15. С. 14.
- [9] *Кюмм Р.Н.* // ЖТФ. 2011. Т. 81. В. 5. С. 81.
- [10] *Ratnikov V.V., Kyutt R.N., Shubina T.V., Pashkova T., Monemar B.* // J. Phys. D. Appl. Phys. 2001. V. 34. P. A30.