

05;06

## К решению обратной задачи рентгеновской дифракции на периодических наноструктурах InGaN/GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

© А.Г. Красильников, В.И. Пунегов, Н.Н. Фалеев

Сыктывкарский государственный университет

E-mail: punegov@syktsu.ru

Present affiliation: Rigaku MSC, 9009 New Trails Drive, The Woodlands,

TX 77381-5209, USA

*В окончательной редакции 8 января 2004 г.*

С учетом когерентного и диффузного рассеяния численно решена обратная задача рентгеновской дифракции на двух сверхрешетках Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)–GaN–(In<sub>0.03</sub>GaN–In<sub>0.1</sub>GaN)<sub>x</sub>SSL–AlGaN(20 nm), выращенных при близких технологических условиях. Получены детальные профили распределения деформации/состава и структурных дефектов в многослойных гетероструктурах, которые позволяют анализировать процессы эпитаксиального роста и дефектообразования в рассогласованных гетероструктурах блочного типа. Анализируются особенности дифракционного рассеяния рентгеновского излучения на таких структурах. Показано, что сходные ростовые процедуры не гарантируют получения одинаковых по структурным параметрам наномасштабных периодических систем сильно рассогласованных твердых растворов.

Начиная с пионерских работ [1–6], получение информации о структурных характеристиках приповерхностных слоев кристаллов и гетероструктур по данным рентгеновской дифрактометрии остается одной из актуальных задач физики конденсированного вещества. Тем не менее несмотря на большое число работ (смотри, например, [7] и приведенную там литературу), до сих пор нет единого общепринятого подхода к проблеме решения обратной задачи рентгеновской дифракции.

В работах [8,9] впервые для определения структурных параметров многослойных лазерных гетероструктур и градиентных гетероэпитаксиальных слоев были одновременно использованы когерентная и диффузная компоненты дифрагированного излучения. Полученные таким

образом данные позволили существенно дополнить информацию о процессах эпитаксиального роста и дефектообразования в согласованных гетероструктурах. Однако до сих пор нет работ, в которых решение обратной дифракционной задачи было бы реализовано с учетом диффузного рассеяния для многослойных мозаичных гетероструктур с сверхрешетками. Данная работа посвящена этой проблеме.

Образцы  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)\text{-GaN-(In}_{0.03}\text{GaN-In}_{0.1}\text{GaN)}_{x\text{SSL}}\text{-AlGaN}$  (20 nm) были выращены методом газотранспортной металлоорганической эпитаксии (MOCVD) на сапфировой подложке и толстом (2–4  $\mu\text{m}$ ) буферном слое GaN при близких ростовых условиях. Рентгенодифракционные измерения были выполнены в государственном университете г. Нагойя (Япония) на высокоразрешающем двухкристальном дифрактометре Rigaku с 18 kW вращающимся анодом. Кривые дифракционного отражения и карты углового распределения дифрагируемого излучения (RSM pictures) снимались с использованием  $\text{CuK}\alpha_1$  излучения вблизи отражения GaN(0002). Для разделения когерентной и диффузной составляющих интенсивности рассеяния использовались узкие приемные щели перед детектором.

В основу численного алгоритма решения обратной дифракционной задачи были положены выражения для когерентной и диффузной компонент интенсивности рассеяния в кинематическом приближении [11]. Для расчетов некогерентной (диффузной) составляющей принята модель мозаичного кристалла, описанная там же [11]. В отличие от [8,9], где для решения обратной дифракционной задачи использовались двух- и трехкристальные спектры в режиме  $\vartheta-2\vartheta$  сканирования, в данном случае информация извлекалась из кривых дифракционного отражения и изодиффузных линий. При этом кривые дифракционного отражения были измерены с существенно большим разрешением. В вычислительной процедуре реализован метод минимизации функционала невязки для когерентной и диффузной составляющих интенсивности рассеяния

$$F[\varepsilon(z), f(z), r(z)] = \sum_i \left| \log \left( \frac{I^{exp}}{I^{th}} \right) \right|^2 \quad (1)$$

с использованием критерия  $\chi^2$  [12]:

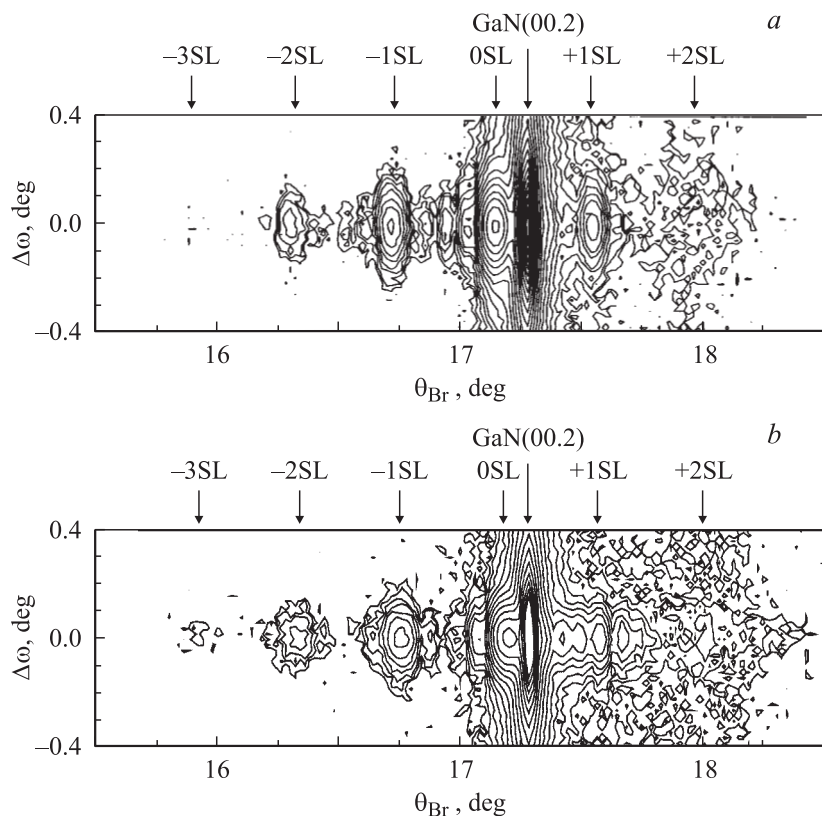
$$\chi^2 = \frac{1}{n - n_p} \sum_{i=0}^n \frac{\log^2(I_i^{exp}/I_i^{th})}{s_i^2}. \quad (2)$$

В соотношениях (1) и (2) введены обозначения:  $I^{\text{exp}}$ ,  $I^{\text{th}}$  — угловое распределение экспериментальной и теоретической интенсивности рассеяния,  $\varepsilon(z) = \Delta d/d$  — относительная деформация кристаллической решетки, отсчитывается относительно периода решетки GaN,  $f(z)$  — эффективная рассеивающая способность, равная произведению статического фактора Дебая–Валлера на нормированный структурный фактор образца,  $r(z)$  — распределение размеров блоков мозаичной структуры по глубине  $z$ . В выражении для критерия  $\chi^2$  под  $n$  следует понимать число точек на кривой дифракционного отражения и число точек на карте распределения интенсивности рассеяния в обратном пространстве,  $n_p$  — число искоемых параметров,  $s_i$  — нормировочный множитель, зависящий от погрешности исходных данных. Минимизация функционала невязки выполнена с помощью „метода скользящего спуска“, позволяющего вводить варьируемые условия на структурные параметры [13].

Для получения информации о профиле деформации, эффективной рассеивающей способности, вертикальных  $l_z$  и латеральных  $l_x$  размерах блоков мозаичной структуры исследуемые сверхрешетки рассматривались как  $N$ -слойные планарные системы. После решения задачи минимизации невязки для начального приближения ( $N = 15$  слоев,  $\varepsilon(z) = \text{const}$ ,  $f(z) = \text{const}$ ) каждый слой разбивается пополам и получается начальное приближение для повторного решения новой задачи минимизации невязки для удвоенного  $N$  ( $N = 30$ ).

Угловое распределение интенсивности на экспериментальных картах пространственного распределения дифрагируемого излучения однозначно соответствует мозаичной структуре эпитаксиальных слоев (рис. 1). Удлинение сверхструктурных тяжей в направлении  $\Delta\omega(q_x)$  обусловлено разворотом кристаллических блоков. Средний размер блоков в направлении эпитаксиального роста, который оценивается по корреляционной длине модели мозаичной структуры, составляет для слоев GaN  $\sim 165$ – $175$  nm. Для сверхрешеток этот параметр составляет  $\sim 53$ – $55$  nm, что близко к их полной толщине. Латеральные размеры блоков в слое GaN и сверхрешетках, оцениваемые по полуширине  $\omega$ -кривых, составляют  $\sim 100$ – $115$  nm. Границы блоков образованы скоплениями прорастающих дислокаций, плотность которых в верхней части слоя GaN и сверхструктурах оценивается на уровне  $7 \div 10 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ .

Несмотря на блочность эпитаксиальных слоев, плотность диффузно-рассеянного рентгеновского излучения сравнительно низкая. Поэтому



**Рис. 1.** Картина пространственного распределения дифрагируемого излучения для образцов 1 (а) и 2 (b) вблизи отражения (0002), излучение  $\text{CuK}_{\alpha 1}$ .

на картинах пространственного распределения дифрагируемого излучения одновременно со сверхструктурными дифракционными пятнами четко прослеживаются пятна толщинных осцилляций. Протяженные (в направлении  $2\theta - \omega$ ) интерференционные картины свидетельствуют о довольно высокой (для блочной гетероструктуры) планарности эпитаксиальных слоев (смотри также [10]). По оценкам шероховатость (размытие) интерфейсов в сверхрешетках составляет  $\sim 2.0 - 2.2 \text{ nm}$ .

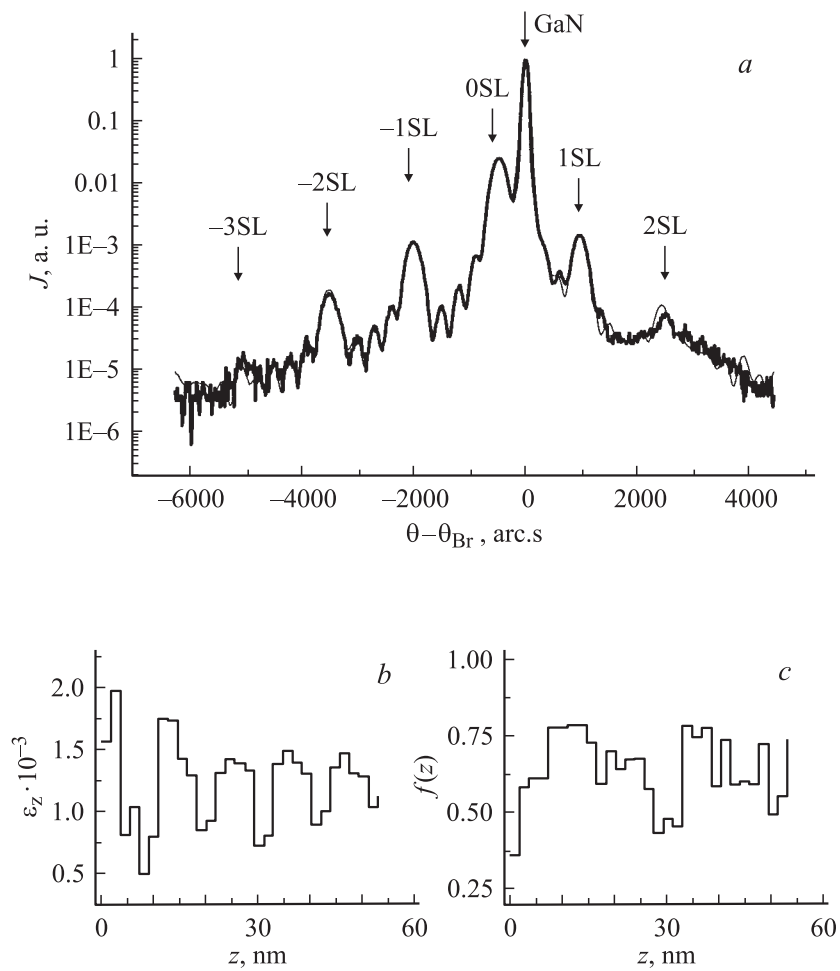
На рис. 2 и 3 приведены экспериментальные и теоретические кривые дифракционного отражения (*a*), а также вычисленные профили относительной деформации кристаллической решетки (*b*) и эффективной рассеивающей способности (*c*). Данные о структурных характеристиках получены для модели сверхрешеток с  $N = 30$ , отсчет глубины на профилях (*b*) и (*c*) ведется от границы верхнего защитного слоя (AlGaIn) и сверхрешетки. Наличие защитного слоя AlGaIn учитывалось в расчетах, однако принятая модель не предполагала структурных изменений в этом слое.

Если не принимать во внимание некоторых локальных отличий дифракционных спектров, профили кривых дифракционного отражения визуально хорошо совпадают (рис. 2, *a* и 3, *a*). По расстоянию между сателлитными максимумами определяется средний сверхструктурный период для обоих образцов. В рассматриваемом случае периоды сверхрешеток приблизительно совпадают и равны  $11 \pm 1$  nm. Среднее значение относительной деформации первого образца  $\bar{\epsilon}_1 = 1.2 \cdot 10^{-3}$ , второго соответственно  $\bar{\epsilon}_2 = 0.6 \cdot 10^{-3}$ . Отличие обусловлено уменьшением концентрации In в сверхрешетке. Это привело к уменьшению упругих напряжений в эпитаксиальных слоях, соответственно уменьшилась их релаксация, что в конечном итоге и привело к увеличению статического фактора Дебая–Валлера во второй структуре.

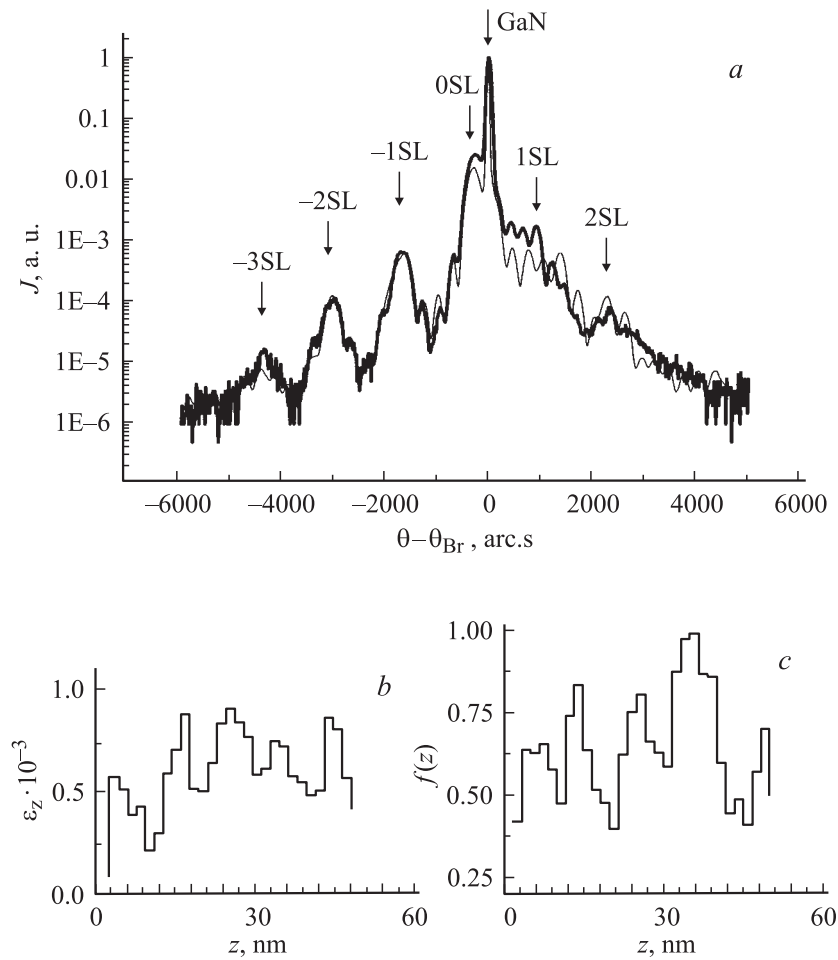
Если же деформация уменьшилась вследствие релаксации упругих напряжений, это могло привести к генерации тех типов дефектов в структуре, которые не учитывались при численном решении обратной задачи. Этим, в частности, можно объяснить локальные расхождения экспериментальной и теоретической кривых отражения от второго образца.

В обоих образцах заметные нарушения структурного совершенства выявлены на интерфейсах между буферным слоем GaN и сверхрешетками, а также на границе между сверхрешетками и верхним слоем AlGaIn толщиной 20 nm. В первом образце вследствие частичной релаксации упругих напряжений протяженные структурные дефекты появились также в центре периодической структуры. Тем не менее средние значения статических факторов Дебая–Валлера совпадают для обоих образцов и равны 0.6, что ненамного ниже значений фактора Дебая–Валлера для тонкого ( $0.3 \mu\text{m}$ ) планарного слоя GaN, выращенного на подложке SiC (0001) [10].

Сравнительно высокая плотность дислокаций в исследованных образцах означает, что структуры были выращены при заметных нару-



**Рис. 2.** Экспериментальная (жирная линия) и теоретическая (тонкая линия) кривые дифракционного отражения, отражение (0002), излучение  $\text{CuK}_{\alpha 1}$  (a), профиль деформации (b) и распределение статического фактора Дебая–Валлера по глубине образца 1. Большие значения деформации соответствуют большей концентрации In в эпитаксиальных слоях.



**Рис. 3.** Экспериментальная (жирная линия) и теоретическая (тонкая линия) кривые дифракционного отражения, отражение (0002), излучение  $\text{CuK}\alpha_1$  (a), профиль деформации (b) и распределение статического фактора Дебая–Валлера по глубине образца 2. Большие значения деформации соответствуют большей концентрации In в эпитаксиальных слоях.

шениях стехиометрии роста, характерных для III-V гетероструктур. При эпитаксиальном росте нитридов это является одной из основных причин структурных нарушений, которые в процессе роста приводят к образованию гигантского количества точечных дефектов на ростовой поверхности, которые в дальнейшем преобразуются в протяженные дефекты.

В обычной ситуации локальными центрами концентрации упругих напряжений и точечных дефектов в гетероструктурах являются непланарные интерфейсы (планарные бездефектные интерфейсы слабо задерживают диффундирующие точечные дефекты [14]). Вследствие этого около них происходит структурная трансформация точечных дефектов в кластеры, дислокации и их скопления. В толстых в сравнении с длиной термодиффузии точечных дефектов слоях нитридов, вдали от интерфейсов, такими центрами оказываются скопления прорастающих дислокаций (блочные стенки), вокруг которых образуются собственные деформационные поля и концентрируются точечные дефекты.

Введение в гетероструктуры дополнительных интерфейсов (сверхрешеток) приводит к пространственному перераспределению точечных дефектов от прорастающих дислокаций и дислокационных стенок к интерфейсам и в конечном итоге при релаксации упругих напряжений к образованию на них дислокаций несоответствия (ДН). В силу своей природы последние не образуют пространственных скоплений, подобных блочным стенкам, а более или менее однородно распределяются на интерфейсах и/или в объеме эпитаксиальных слоев. Это приводит к нарушениям планарности интерфейсов и ростовой поверхности, уменьшению длины когерентности дифрагируемого излучения, к появлению диффузно-рассеянного рентгеновского излучения и в конечном итоге уменьшению фактора Дебая–Валлера в структуре.

Именно ДН ответственны за выявленные нами нарушения структурного совершенства на интерфейсах и в объеме исследованных структур. Но общее количество образовавшихся на интерфейсах ДН оказалось недостаточным для того, чтобы значительно нарушить планарность интерфейсов и привести к гашению интерференции дифрагируемого рентгеновского излучения. Отметим, что в отличие от ДН захват избыточных дефектов прорастающими дислокациями и увеличение их плотности приводит к увеличению структурного совершенства эпитаксиальных слоев и росту фактора Дебая–Валлера [10].

Таким образом, показано, что, решение обратной дифракционной задачи с учетом диффузного рассеяния позволяет получить детальные



профили распределения деформации/состава и структурных дефектов в многослойных гетероструктурах блочного типа. Это позволяет анализировать процессы эпитаксиального роста и дефектообразования в структурах с высокой плотностью кристаллических дефектов. Подобного рода данные практически недоступны для других недифракционных методов. Метод позволяет выявить отличия структурных параметров в образцах, выращенных в близких технологических условиях. Показано, что сходные ростовые процедуры не гарантируют появления одинаковых по структурным параметрам наномасштабных периодических систем на основе рассогласованных твердых растворов.

Еще раз показано, что скопления прорастающих дислокаций не дают существенного вклада в диффузное рассеяние рентгеновского излучения. Подтверждено, что основными центрами диффузного рассеяния рентгеновского излучения являются краевые ДН и вносимые ими структурные искажения, а не точечные дефекты (прежде всего в силу малого размера последних), как это было предположено в работе [10]. Именно ДН ответственны за нарушение планарности интерфейсов и гладкости ростовой поверхности.

Авторы выражают благодарность Prof. Y. Takeda и Dr. M. Tabuchi (Department of material science and Engineering, School of Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-01, Japan) за предоставление исследуемых образцов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования РФ (грант № E02–3.4–302) и РФФИ (грант № 03–02–16239).

## Список литературы

- [1] *Burget J., Taupin D.* // Acta Cryst. 1968. V. A24. P. 99–102.
- [2] *Burget J., Collella R.* // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. P. 3505–3509.
- [3] *Fukuhara A., Takano Y.* // Acta Cryst. 1977. V. A33. P. 137–142.
- [4] *Afanasev A.M., Kovalchuk M.V., Kovev E.K., Kohn V.G.* // Phys. stat. sol. (a). 1977. V. 42. P. 415–422.
- [5] *Kyutt R.N., Petrashen' P.V., Sorokin L.M.* // Phys. stat. sol. (a). 1980. V. 60. P. 381–389.
- [6] *Larson B.C., Barhorst J.F.* // J. Appl. Phys. 1980. V. 51. P. 3181–3185.
- [7] *Гончарский А.В., Колпаков А.В., Степанов А.А.* Обратные задачи рентгеновской дифрактометрии. Рига: Латвийский университет, 1992. 181 с.

- [8] Павлов К.М., Пунегов В.И., Фалеев Н.Н. // ЖЭТФ. 1995. Т. 107. С. 1967–1982.
- [9] Пунегов В.И., Павлов К.М., Подоров С.Г., Фалеев Н.Н. // ФТТ. 1996. Т. 38. С. 264–271.
- [10] Kazimirov A., Faleev N., Temkin N., Bedzyk M.J., Dmitriev V., Melnik Yu. // J. Appl. Phys. 2001. V. 89 (11). P. 6092–6097.
- [11] Nesterets Ya.I., Punegov V.I. // Acta Cryst. A. 2000. V. 56. N 6. P. 540–548.
- [12] Афанасьев А.М., Чуев М.А., Имамов Р.М. и др. // Кристаллография. 1997. Т. 42. В. 3. С. 514–523.
- [13] Химмельблау Д. Прикладное нелинейное программирование. М.: Мир, 1975.
- [14] Фалеев Н.Н., Флак Л.И., Баташова С.В., Мишурный В.А., Васильев В.И., Сазонов В.В. // Сб. докл. Всесоюз. конф. по физическим процессам в гетероструктурах. Калуга (Россия), 1990. Т. 1. С. 241.