

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

05;06;07;12

Журнал технической физики, т. 66, в. 1, 1996

**РЕНТГЕНОДИФРАКТОМЕТРИЧЕСКАЯ
ИДЕНТИФИКАЦИЯ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИИ
И КОЛИЧЕСТВЕННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ВЫСОКИХ
ПЛОТНОСТЕЙ ДИСЛОКАЦИЙ
В МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СЛОЯХ
ГЕТЕРОЭПИТАКСИАЛЬНЫХ СИСТЕМ С БОЛЬШИМИ
НЕСООТВЕТСТВИЯМИ ПЕРИОДОВ РЕШЕТОК**

© Г.Ф.Кузнецов

Институт радиотехники и электроники РАН,
141120 Фрязино, Московская область, Россия
(Поступило в Редакцию 20 октября 1994 г.
В окончательной редакции 20 июля 1995 г.)

Изоструктурная и неизоструктурная гетероэпитаксия материалов полупроводниковых соединений $A^{III}B^V$, $A^{II}B^{VI}$, их твердых растворов, например InAs/GaAs, GaAs или InGaAs/InP, в частности наращивание GaAs на Si [1], либо GaAs или Si на сапфире (Al_2O_3) [2], играет все большую роль в микро- и оптоэлектронике. Известно, что решетки наращиваемых эпитаксиальных слоев могут сопрягаться с монокристаллической подложкой как когерентно (при $h < h_c$), так и некогерентно (при $h \geq h_c$). В первом случае это означает чисто упругую деформацию гетероэпитаксиальной монокристаллической пленки или слоя, во втором — упругие напряжения в гетерослое релаксируют частично и за счет пластической деформации, механизмом которой является генерация дислокаций в процессе его наращивания.

Исследование особенностей дефектной структуры и процессов дефектообразования, протекающих в этих материалах в период их наращивания, — одна из наиболее сложных проблем.

Работы Хорнстры [3], Чу [4] и наши последующие публикации [5–10] явились основной предпосылкой в решении проблемы идентификации, измерения и разделения компонент упругих и пластических деформаций в монокристаллических слоях одно- и многослойных непериодических и периодических (сверхрешетки) эпитаксиальных систем (МСМЭС). Для идентификации чисто упругой и пластической деформации в монокристаллических слоях гетероэпитаксиальных систем автором предложено сочетание двух неразрушающих рентгеновских

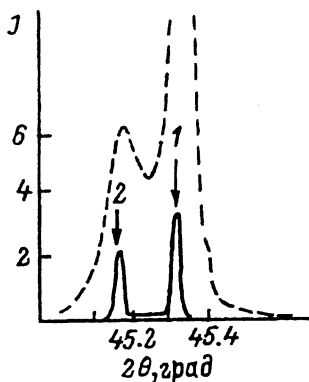
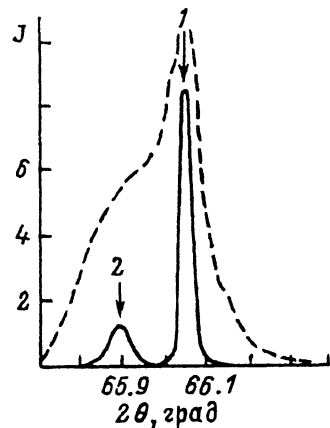


Рис. 1. Совмещенные рентгенодифрактограммы, снятые при брэгг-дифракции в отражении (004) монохроматического $\text{CuK}\alpha_1$ -излучения методами РД (сплошная кривая) и ПДКК (штриховая), монокристаллического слоя ZnSe (максимум 2) толщиной ($h \sim 4$ мкм), выращенного методом МOCVD на подложке GaAs (максимум 1).

Рис. 2. Совмещенные рентгенодифрактограммы, снятые при лауэ-дифракции в отражении (220) монохроматического $\text{CuK}\alpha_1$ -излучения методами РД (сплошная кривая) и ПДКК (штриховая), монокристаллического слоя ZnSe (максимум 2) толщиной ($h \sim 7$ мкм), выращенного методом МOCVD на подложке GaAs (максимум 1).

методов РД-ПДКК, а именно рентгенодифрактометрического (РД) и псевдо дифракционных кривых качания (ПДКК). Оба этих метода реализуются на двухкристалльном дифрактометре-спектрометре с нулевой дисперсией (в геометрии $n, -n$) при $\Theta-2\Theta$ сканировании в строго коллимированном монохроматическом $\text{CuK}\alpha_1$ -излучении. В методе РД сканирование с узкой 50 мкм щелью перед счетчиком, в методе ПДКК — с полностью открытым входным окном счетчика (угол раствора окна $\sim 3^\circ$) [5-10].

Критические толщины или величины несоответствия периодов решеток (НПР) для любой гетеропары материалов можно априори рассчитать теоретически [5-7], если воспользоваться табличными данными периодов a_j решеток и учесть при этом изменения периодов при нагревании материалов до температуры эпитаксиального наращивания T_0 [9]. При $h \geq h_c$ в наращиваемых монокристаллических гетерослоях начинается генерация дислокаций как механизм пластической деформации. Чем больше толщина слоя превышает критическую, тем больше в нем генерируется дислокаций. Их плотность резко нарастает от нуля до некоторой предельной величины $0 \leq N_d \leq 10^6 \text{ см}^{-2}$. Последняя зависит от конечной толщины выращенного монокристаллического гетерослоя и заданной величины НПР при температуре его эпитаксии.

На рис. 1 и 2 приведены снятые в отражении (004) дифрактограммы РД-ПДКК для весьма толстых ($h = 4$ и 7 мкм) монокристаллических слоев $\text{ZnSe}/(001)\text{GaAs}$, для которых $h \gg h_{кр}$. Для них ширины кривых ПДКК примерно в 3 раза превышают ширины их РД кривых. Из этого следует, что в монокристаллических слоях ZnSe данных образцов в процессе их наращивания произошла мощная пластическая

деформация. В результате пластической деформации идеальная кристаллическая решетка этих монокристаллических слоев разбилась на множество взаимно разориентированных фрагментов. Судя по ширине ПДКК кривой для монокристаллического ZnSe, максимальный угол разориентации фрагментов решетки в пластически деформированном слое достигает $\sim 0.1^\circ$. В подложке же GaAs рентгенотопографически зарегистрирована ячеистая дислокационная структура. Однако разориентации углов ее ячеек, как следует из РД-ПДКК измерений, не превышают 0.01° .

Элементарным актом пластической деформации в монокристаллах является образование или генерация одной (линии) дислокации. Линия дислокации окажется либо замкнутой петлей, либо оба ее конца выйдут на свободные поверхности монокристалла. Для монокристаллических слоев в гетероэпитаксиальных системах принятая нами модель предполагает, что все линии генерируемых дислокаций параллельны гетерогранице и своими концами выходят на торцевые поверхности гетероструктуры. Пользуясь представлениями и моделью Чу [4], в данной работе предлагается измерять величины компонент деформаций ε_{xx} и ε_{yy} , параллельных гетерогранице, непосредственно прямым РД методом Лауэ на прохождение. По этим экспериментальным данным можно получить грубую количественную оценку плотности дислокаций ρ в пластически деформированных монокристаллических гетерослоях. Расчет плотности дислокаций сделаем по следующей формуле [5]:

$$\rho = m\varepsilon_{xx}/hb, \quad (1)$$

где $m = 2$ или $m = 3$ для ориентаций подложек ГЦК кристаллов (001) или (111) соответственно, h — толщина монокристаллического слоя, b — вектор Бюргерса дислокаций.

Измеренные по рис. 2 величины $\varepsilon_{xx} \approx \varepsilon_{yy} = 3.50 \cdot 10^{-3}$ оказались для данного пластически деформированного монокристаллического слоя ZnSe почти равными (различие лишь $\Delta\varepsilon \approx 2 \cdot 10^{-4}$) величине НПР, рассчитанной на основе взятых из таблиц при комнатной температуре величин периодов свободных решеток и пересчитанных на температуру эпитаксии по [9]. Подстановка измеренных $\varepsilon_{xx} \approx \varepsilon_{yy}$ в (1) для этого слоя ZnSe толщиной 7 мкм дала величину плотности дислокаций в нем $\rho \approx 2.5 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$. При этом эта плотность дислокаций соответствует их плотности в поперечном сечении монокристаллического слоя.

Измеренная РД методом при комнатной температуре перпендикулярная гетерогранице компонента деформации $\varepsilon_{zz} = 2.35 \cdot 10^{-3}$ оказалась меньше параллельных гетерогранице компонент деформации, т. е. $\varepsilon_{zz} = 2.35 \cdot 10^{-3} < \varepsilon_{xx} \approx \varepsilon_{yy} = 3.50 \cdot 10^{-3}$. Если же измеренные величины ε_{zz} , ε_{xx} , ε_{yy} пересчитать на величину НПР для свободных решеток ZnSe/(001)GaAs по формуле (2), учитывающей анизотропию и вклад компонент упругой и пластических деформаций [5,10]

$$\varepsilon_c = C_{11}\varepsilon_{zz} + C_{12}(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) / (C_{11} + 2C_{12}), \quad (2)$$

то в результате для этого образца гетероструктуры получаем величину $\varepsilon_c = 3.73 \cdot 10^{-3}$. Она с точностью $\pm 4 \cdot 10^{-5}$ совпадает с теоретически

рассчитанной по (1) в [9] величиной НПР при температуре наращивания T_0 если взять табличные данные их периодов и учесть различия величин КТР этих материалов гетерослоя и подложки при комнатной температуре и температуре наращивания.

Это принципиально важный научный результат. Он означает, что в гетероструктурах типа $\text{ZnSe}/(001)\text{GaAs}$ уже при температуре наращивания происходит практически полная ($\sim 100\%$) релаксация упругих напряжений посредством пластической деформации кристаллической решетки гетерослоя. Другими словами, релаксация упругих напряжений произошла путем генерации и накопления большой плотности дислокации (порядка $\rho \sim 2 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$) в наращиваемом монокристаллическом слое ZnSe . И при последующем охлаждении эпитаксиальной системы от температуры наращивания до комнатной в ней происходит только нарастание упругой деформации без какого-либо заметного перехода ее в пластическую. Отсюда следует, что пластическая деформация наращиваемого толстого ($h \gg h_c$) эпитаксиального слоя происходит в очень узком интервале температур вблизи температуры эпитаксии $T_{\text{эп}}$.

Эта методика РД измерения и расчета высоких плотностей дислокаций ($\rho > 1 \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$) применена нами также для других гетероструктур с существенно большими величинами НПР в свободном состоянии их решеток: например, для $\text{InAs}/(001)\text{GaAs}$ с $\epsilon_c = 6.9 \cdot 10^{-2}$ при толщине гетерослоя 1.1 мкм получено $\rho \approx 3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, для $\text{GaAs}/(001)\text{Si}$ с $\epsilon_c = 4.2 \cdot 10^{-2}$ при толщине 1.8 мкм оказалось $\rho \approx 5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. Как видим, все эти полученные результаты находятся в разумных областях величин.

Кстати, полученная нами неразрушающим РД методом величина плотности дислокаций в гетероэпитаксиальном слое InAs/GaAs по порядку величины совпала с оценкой величины плотности дислокаций для этого типа гетероструктур, измеренной прямым, но разрушающим методом просвечивающей электронной микроскопии в [11].

Точность вышеприведенных расчетов и оценок плотности дислокаций в пределах одного порядка величины. Она обуславливается, прежде всего, степенью применимости принятой модели. Однако при плотностях дислокаций, превышающих $\rho \geq 1 \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$, не существует более точных и надежных неразрушающих методов измерения или контроля плотности дислокаций. Поэтому предлагаемый рентгенодифракционный РД-ПДКК метод благодаря его оперативности должен занять подобающее ему место. Хотя при анализе количественных характеристик мозаичности монокристаллических слоев [5,12], наращиваемых при неизоструктурной гетероэпитаксии, его придется дополнять неразрушающим рентгенотопографическим методом расходящегося пучка от квазиточечного источника (РПКИ) [5,12] либо разрушающим методом просвечивающей электронной микроскопии [11].

Срыв когерентного роста монокристаллического слоя ZnSe , как и твердого раствора $\text{ZnSe}_{1-x}\text{S}_x$, происходит при условии $h \geq h_c$. Далее по мере увеличения толщины наращиваемого слоя, т.е. при всех $h > h_c$, процесс наращивания сопровождается одновременным прохождением пластической деформации или нагнетанием дислокаций в наращиваемый монокристаллический слой. В какой-то момент механизм двумерного или послойного роста, по-видимому, сменяется механиз-

мом трехмерного зародышеобразования и роста. В момент окончания процесса наращивания в пластическую релаксированшем толстом монокристаллическом слое практически не остается упругих напряжений. Энергия упругих напряжений несоответствия практически полностью перешла в энергию вновь генерированных дислокаций в гетерослое. Составляющие его мелкие фрагменты, отделенные один от другого дислокационными стенками или сетками, благодаря силам адгезии удерживаются на поверхности подложки и друг друга. При температуре эпитаксии эта система находится в равновесии. Фрагменты кристаллической решетки при этом практически не испытывают воздействия упругих деформаций.

Однако при охлаждении наращенной эпитаксиальной системы, перенесшей пластическую деформацию и фрагментацию решетки в процессе эпитаксиального наращивания, в ней вновь начинают проявляться упругие напряжения. Но это уже термоупругие напряжения несоответствия противоположного знака. Так, до срыва когерентного роста монокристаллический слой ZnSe находится под действием сжимающих напряжений несоответствия. После окончания пластической релаксации при температуре эпитаксии фрагментированный монокристаллический слой переходит практически в ненапряженное состояние. А в результате последующего охлаждения от температуры наращивания до комнатной температуры в нем возникают термоупругие напряжения растяжения. Этим заключением дается ответ на вопрос об инверсии знака упругих напряжений в некоторых гетероэпитаксиальных системах, обсуждавшихся в [4].

Список литературы

- [1] Антипов В.Г., Кютт Р.Н., Сорокин Л.М. и др. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. Вып. 2. С. 1-5.
- [2] Кузнецов Г.Ф., Семилетов С.А., Багамадова А.М. // Кристаллография. 1978. Т. 23. № 2. С. 350-356.
- [3] Hornstra J., Bartels W.J. // J. Cryst. Growth. 1978. Vol. 5. P. 513-517.
- [4] Chu S.N.G., Macrender A.T., Strage K.E., Jonston W.D. // J. Appl. Phys. 1985. Vol. 126. P. 249-257.
- [5] Кузнецов Г.Ф. Докт. дис. М., 1989. 466 с.
- [6] Кузнецов Г.Ф. // Тез. IV Всесоюз. совещания "Дефекты структуры в полупроводниках". Новосибирск, 1984. Ч. 2. С. 58-59.
- [7] Бокий Г.Б., Кузнецов Г.Ф. // ДАН СССР. 1984. Т. 279. С. 876-880.
- [8] Кузнецов Г.Ф., Хазанов А.А. // Кристаллография. 1990. Т. 35. № 5. С. 1267-1270.
- [9] Кузнецов Г.Ф. // Тез. докл. конф. по электронным материалам. Новосибирск, 1992. С. 246-247.
- [10] Кузнецов Г.Ф. // Тез. докл. конф. по электронным материалам. Новосибирск, 1992. С. 32-33.
- [11] Гутаковский А.К., Кантер Ю.К., Ревенко М.А. и др. // Кристаллография. 1989. Т. 34. № 3. С. 706-712.
- [12] Кузнецов Г.Ф., Семилетов С.А. // Обзоры по электронной технике. Сер. Микроэлектроника. М., 1975. Вып. 1(280). 95 с.