

УДК 548.732

© 1991

ДИНАМИЧЕСКАЯ ТЕОРИЯ ДИФРАКЦИИ НА НЕИДЕАЛЬНОЙ ГЕТЕРОСТРУКТУРЕ

В. И. Пунегов

На основе статистической динамической теории дифракции исследуется рассеяние рентгеновских лучей на неидеальной трехслойной гетероструктуре. Средний слой гетероструктуры помимо статистически распределенных микродефектов имеет постоянный градиент деформации кристаллической решетки. Модель дефектов верхнего слоя задана в виде хаотически распределенных сферических аморфных кластеров. Численные расчеты кривых дифракционного отражения (КДО) от гетероструктуры $Al_{0.22}Ga_{0.78}As/Al_xGa_{1-x}As/GaAs(001)$ проведены для ряда значений статического фактора Дебая—Валлера каждого отдельного слоя. Концентрация x среднего слоя гетероструктуры непрерывно изменяется по толщине образца. Показано влияние диффузного рассеяния на формирование КДО каждого отдельного слоя и всей гетероструктуры.

Неразрушающим методом исследования дефектов кристаллической структуры является дифракция рентгеновских лучей [1-7]. Достаточно полно развиты кинематическая теория рассеяния жесткого излучения на кристаллах с дефектами [1]. Практические потребности в материалах электронной промышленности стимулируют развитие различных подходов динамической теории дифракции.

Применительно к кристаллам с микродефектами данные подходы базируются на введении статистически усредненной функции взаимной когерентности [2], теории возмущений [3, 4], матрицы плотности [5, 6] и статистической динамической теории [7, 8]. Преобладающее число работ (см., например, [2-4, 7, 8]) ограничивалось рассмотрением дифракции на кристаллах с однородно распределенными микродефектами.

Шаг в направлении учета неоднородного распределения микродефектов в рамках статистической динамической теории рассеяния сделан в [9, 10]. Использование модели «жестких ионов» в решении задачи дифракции на кристаллах со слоистой неоднородностью позволило раздвинуть пределы применимости теории: в отличие от теории Като [8], используемый в [9, 10] подход не ставит ограничений на размеры дефектов порядка межатомных расстояний при достаточно высокой их концентрации.

Теории по динамической дифракции в дефектных кристаллах при наличии двух каналов дифракционного рассеяния — когерентного и некогерентного — в основном строились в предположении, что параметр кристаллической решетки не имеет заметного пространственного изменения, т. е. в рассмотрение брался кристалл с так называемой «усредненной» решеткой.

Большое практическое значение имеют кристаллы с изменяющимся по толщине периодом решетки, так как широкий класс материалов, применяемых в промышленности, характеризуется таким строением (сверхрешетки, гетероструктуры, диффузионные слои и др.). Наиболее простой моделью ряда одномерно деформированных твердотельных объектов является кристалл с линейным изменением параметра решетки [11, 12]. Оптические принципы дифракции в таком кристалле исследованы в [13].

Эта модель нашла практическое применение при изучении явления дифракции в ионно-имплантированных слоях [14] и неоднородных эпитаксиальных пленках [14, 15].

Основные положения статистической динамической теории дифракции в кристаллах с непрерывно изменяющимся по толщине параметром решетки изложены в [16, 17]. Результаты этих работ служат отправной точкой для вычислительной диагностики нарушенных приповерхностных слоев с учетом когерентного и диффузного рассеяния.

Двухкристальная рентгеновская дифрактометрия широко используется для определения структурных характеристик полупроводниковых гетероструктур [18]. Новые нестандартные схемы дифракции (например, трехкристальная дифрактометрия [19], дифракция в скользящей геометрии [20]) позволяют получать дополнительную информацию о строении многослойных кристаллов.

В ряде случаев при исследовании динамического рассеяния в дискретно-слоистых кристаллах более удобной в практическом отношении явилась запись амплитудных коэффициентов отражения и прохождения в виде рекуррентных соотношений [18]. В рамках рекуррентных соотношений построены теории дифракции на многослойных кристаллах в предельно-асимметричной [21, 22] и скользящей [23] геометриях, а также в условиях многоволновой дифракции [24].

В данной работе развита теория динамической дифракции на неидеальной трехслойной гетероструктуре. В схеме построения теории использованы результаты статистической динамической теории рассеяния на кристаллических слоях с «усредненной» [25] и одномерно деформированной [17] решетками.

1. Модель гетероструктуры и основные уравнения

Анализ дифракции на неидеальной гетероструктуре проведем на примере простой модели трехслойного кристалла. На толстом идеальном кристалле (подложке) расположен кристаллический слой с линейным изменением периода решетки. Начиная с подложки нумерацию слоев проведем снизу вверх. Таким образом, градиентный слой, а также все физические характеристики, тем или иным образом связанные с ним, будут определяться индексом «2».

Третий (верхний) слой представляет собой кристалл, усредненный параметр решетки которого не имеет пространственного изменения. Среднестатистический профиль деформации гетероструктуры изображен на рис. 1.

В конструкции гетероструктуры средний градиентный слой моделирует твердый раствор с непрерывным изменением компонентов по его толщине. Дефектная структура этого слоя не конкретизируется. Нарушение регулярного строения кристаллической среды характеризуется корреляционной длиной Като τ_0 [8] и значением статического фактора Дебая—Валлера E_2 . В пограничной области параметры решетки градиентного слоя и подложки в общем случае не согласованы.

Градиент деформации переходной области гетероструктуры между подложкой и верхним кристаллом определяется толщиной первого фазового слоя $l_1 = a^{3/2} (n \Delta a)$, где a — средний параметр решетки, Δa — среднестатистическое рассогласование параметров решетки между двумя соседними атомными периодами, n — порядок отражения рентгеновских лучей [13].

Дефекты верхнего слоя отвечают модели однородно распределенных сферических аморфных кластеров радиуса r_0 [25]. Поля упругих деформаций вне кластера отсутствуют. Степень нарушений кристаллической структуры определяется статфактором $E_3 = \exp(-4\pi c_3 r_0^3/3)$, где c_3 — концентрация дефектов верхнего слоя.

Для простоты ограничимся рассмотрением симметричной брэгговской дифракции на гетероструктуре с кубической решеткой. При малых изменениях концентрационного состава твердого раствора в ряде случаев можно пренебречь различием рассеивающих способностей (Фурье-компонент поляризуемостей) каждого слоя [26]. Амплитудный коэффициент отражения от подложки соответствует известному решению брэгговской дифракции на полубесконечном кристалле [27].

В градиентном слое смещение атомов от их положения в идеальной решетке представим в виде $\mathbf{u} = \langle \mathbf{u} \rangle + \delta \mathbf{u}$, где $\langle \dots \rangle$ означает статистическое усреднение, $\delta \mathbf{u}$ описывает случайные смещения, обусловленные флуктуациями концентрационного состава или микродефектами. Процедура статистического усреднения уравнений дифракции хорошо известна [8].

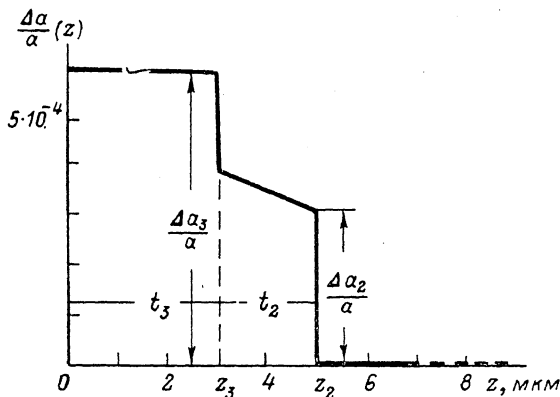


Рис. 1. Среднестатистический профиль деформации гетероструктуры $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (001).

С учетом среднестатистического поля атомных смещений и углового распределения рассеянной интенсивности она требует не менее громоздких, чем в [7, 8], преобразований. Поэтому в данной работе опустим промежуточные выкладки и далее по тексту приведем сразу основные уравнения для когерентно и диффузно рассеянного излучения. Краткий вывод этих уравнений для кристаллов с непрерывно изменяющимся по толщине параметром решетки изложен в [17].

Амплитудный коэффициент отражения когерентных волн от градиентного слоя $R_2(z=z_3)$ находится из решения уравнения

$$i \frac{dR_2}{dz} = (\sigma_g R_2^2 + \sigma_g) E_2 + \left(\eta_2 - \frac{dg \langle \mathbf{u} \rangle}{dz} + i2\rho_2 \right) R_2 \quad (1)$$

с граничным условием $R_2(z=z_2)=0$, где $t_2=z_2-z_3$ — толщина градиентного слоя. В общепринятых обозначениях [27] для симметричной брэгговской дифракции $\eta_2 = 2\pi[\chi_0 + (\Delta\vartheta + \Delta\vartheta_2) \sin 2\vartheta_0]/(\lambda\gamma_0)$; $\sigma_{\pm g} = \pi\chi_{\pm g}c/(\lambda\gamma_0)$; $\rho_2 = \sigma_g \sigma_{-g} (1 - E_2^2) \tau_2$; ϑ_0 — брэгговский угол подложки; $\Delta\vartheta = \vartheta - \vartheta_0$; $\Delta\vartheta_2 = -(\Delta a_2/a) \text{tg } \vartheta_0$ — угловой сдвиг, обусловленный несоответствием параметров решетки подложки и нижней границы градиентного слоя гетероструктуры.

Ослабление когерентной компоненты дифрагированного излучения из-за диффузного рассеяния определяется статфактором $E_2 = \langle \exp(i g \delta \mathbf{u}) \rangle$, где \mathbf{g} — вектор дифракции. Корреляционная длина

$$\tau_2 \int_0^{\infty} \exp(i\eta\xi - ig[\langle \mathbf{u}(z+\xi) \rangle - \langle \mathbf{u}(z) \rangle]) G_2(\xi, z) d\xi$$

зависит от вида корреляционной функции

$$G_2(\xi, z) = (1 - E_2^2)^{-1} \langle \exp(-ig[\delta \mathbf{u}(z+\xi) - \delta \mathbf{u}(z)]) \rangle - E_2^2.$$

В строгой постановке задачи корреляционная функция для определенного типа дефектов и заданного закона распределения случайных атомных смещений должна вычисляться. В градиентном слое тип дефектов не конкретизируется. Достаточно общей и удобной в практических целях характеристикой среды может служить модель, в которой соответствующее статистическое усреднение приводит к следующему простому виду корреляционной функции [17]:

$$G_2(\xi, z) = \exp(-\pi\xi^2/4\tau_0^2),$$

где τ_0 имеет смысл корреляционной длины Като [8]. Предполагается, что распределение флюктуационных смещений от линейного закона изменения параметра решетки однородно по толщине кристалла. В рамках такой модели $\langle \exp(-ig[\delta u(z+\xi) - \delta u(z)]) \rangle = \langle \exp(-ig[\delta u(\xi) - \delta u(0)]) \rangle$, что в конечном итоге является обоснованием выбора G_2 , не зависящей от координаты z . Кроме того, следует отметить, что $\tau_0 \ll \Lambda_2, t_2$, где Λ_2 — экстинкционная длина градиентного слоя.

Амплитудный коэффициент отражения когерентных волн от третьего слоя имеет вид

$$R_3 = \sigma_g E_3 \{ \exp(i\epsilon t_3) - 1 \} / Q, \quad (2)$$

где t_3 — толщина этого слоя,

$$Q = \epsilon_1 \exp(i\epsilon t_3) - \epsilon_2, \quad \epsilon_1 = (-\eta_d + \epsilon)/2; \quad \epsilon_2 = (-\eta_d - \epsilon)/2,$$

$$\epsilon = (\eta_d^2 - 4\sigma_g \sigma_{-g} E_3^2)^{1/2}, \quad \eta_d = \eta_3 + i2\rho_3, \quad \eta_3 = 2\pi[\chi_0 + (\Delta\vartheta + \Delta\delta_3) \sin 2\delta_0] / (\lambda\gamma_0),$$

$$\Delta\delta_3 = -(\Delta a_3/a) \operatorname{tg} \vartheta_0, \quad \rho_3 = \sigma_g \sigma_{-g} (1 - E_3^2) \tau_3.$$

Выражение для корреляционной длины $\tau_3 = \tau_3(\Delta\vartheta, r_0)$ при выполнении условий $\tau_3(0, r_0) \ll \Lambda_3, t_3$ получено в [25].

Решение задачи дифракции на гетероструктуре требует «сшивания» решений для отдельных слоев с учетом соответствующей фазовой задержки, возникающей в результате прохождения рентгеновских квантов в каждом слое. Амплитудный коэффициент отражения двухслойной структуры (подложки и градиентного слоя) $R_{1,2}$ находится из решения (1) при $R_{1,2} = R_2(z=z_3)$ с граничным условием $R_2(z=z_2) = R_1(z=z_2)$, где R_1 — амплитудный коэффициент отражения подложки.

Амплитудный коэффициент отражения когерентных волн от всей гетероструктуры определяется выражением

$$R = (P_2 \lambda_1 - P_1 \lambda_2) / (\lambda_1 - \lambda_2), \quad (3)$$

где

$$P_{1,2} = \epsilon_{1,2} / (\sigma_{-g} E_3), \quad \lambda_1 = (R_{1,2} - P_1) \exp(i\epsilon t_3), \quad \lambda_2 = R_{1,2} - P_2.$$

Угловое распределение интенсивности диффузно рассеянных волн в градиентном слое следует из соотношения

$$I_2^d = -|\sigma_g|^2 (1 - E_3^2) \int_0^{t_2} dz I_0^c(z) e^{-(\mu t_3)z} \operatorname{Re}(\tau_2), \quad (4)$$

где μ — линейный коэффициент фотопоглощения; $I_0^c(z)$ — интенсивность когерентной волны в направлении прохождения. Для кристалла с «усредненной» решеткой интеграл (4) вычисляется [25].

Интенсивность диффузного рассеяния на гетероструктуре складывается из некогерентной интенсивности третьего слоя I_3^c и интенсивности I_2^d , прошедшей через третий слой

$$I^d = I_3^c + T_3^{-g} I_2^d. \quad (5)$$

Здесь T_3^{-g} — коэффициент прохождения третьего слоя в направлении дифракции. В рассматриваемом случае симметричной брэгговской дифракции этот коэффициент имеет вид

$$T_3^{-g} = |(\epsilon_1 \exp(i\epsilon t_3) - \epsilon_2)/Q|^2, \quad (6)$$

где в выражениях для $\epsilon_{1,2}$, ϵ и Q Фурье-компоненту поляризуемости χ_g следует заменить на χ_{-g} .

Соотношение (5) отражает то обстоятельство, что из-за широкого углового распределения диффузных квантов, родившихся в градиентном слое, только незначительная их часть испытывает дифракцию в угловой

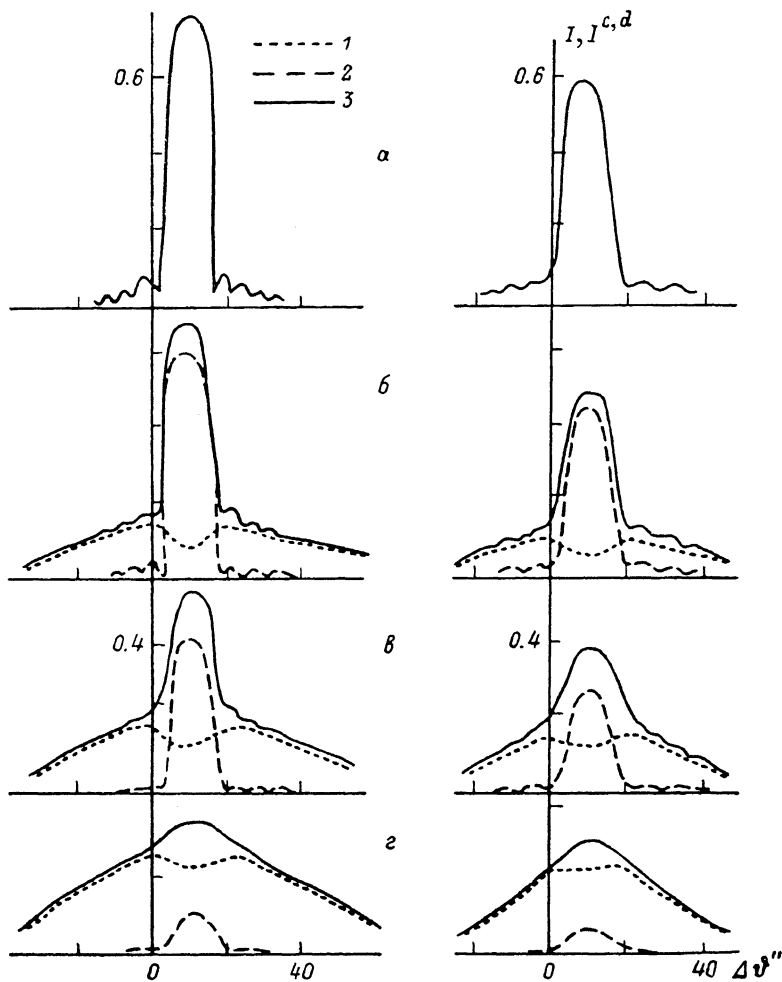


Рис. 2. КДО от верхнего (слева) и градиентного слоев в зависимости от величины статфактора.

1 — диффузная, 2 — когерентная, 3 — полная интенсивность. а — $\epsilon_{2,3}=1.0$, б — 0.8, в — 0.6, г — 0.2.

области максимума верхнего слоя. Это должно вызывать появление экстинкционного провала под дифракционным пиком от верхнего слоя даже при условии, если дефекты в этом слое отсутствуют.

В остальной угловой области, как это следует из анализа формулы (6), диффузная компонента градиентного слоя ослабляется за счет фотопоглощения. В отличие от традиционного выражения для коэффициента прохождения [27] соотношение (6) учитывает влияние микродефектов верхнего слоя на прохождение и дифракцию некогерентных волн, рожденных в градиентном слое.

2. Численные результаты

Расчеты кривых дифракционного отражения выполнены для гетероструктуры $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (001) (концентрация x непрерывно изменяется по толщине градиентного слоя). Выбрано σ -поляризованное (004) отражение $\text{Cu } K_{\alpha}$ -излучения.

Необходимые для численного моделирования Фурье-компоненты поляризуемостей принятой в рассмотрение многослойной структуры полу-

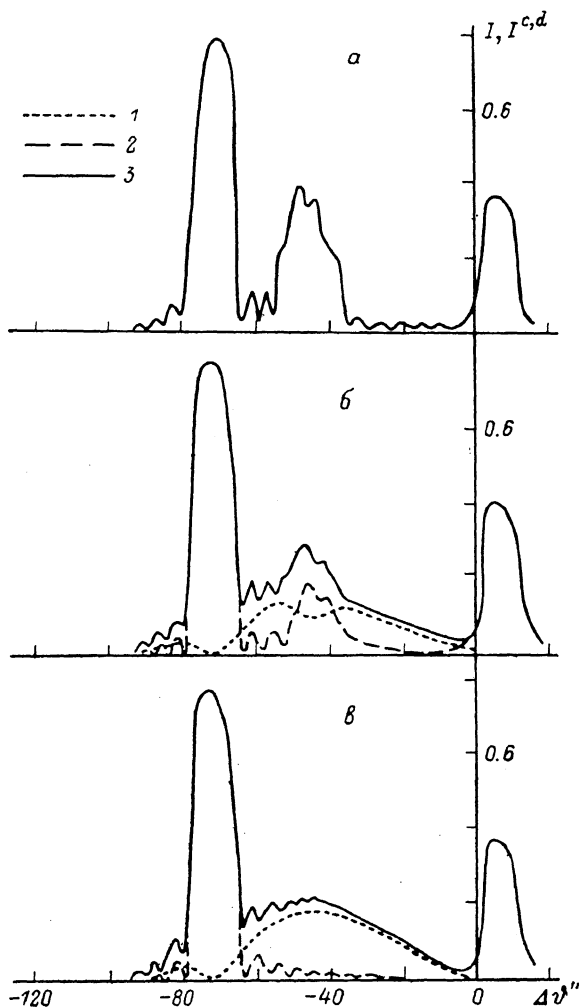


Рис. 3. КДО от гетероструктуры в зависимости от величины статфактора E_2 градиентного слоя.

1 — диффузная, 2 — когерентная, 3 — полная интенсивность. а — $E_2=1.0$, б — 0.6, в — 0.2.

чены на основе табличных значений атомных факторов [28] с учетом дисперсионных поправок [29] и теплового фактора Дебая—Валлера [30]. При этом расчетная экстинкционная длина для совершенного кристалла GaAs находится в хорошем согласии с результатами работы [26].

Вычисление когерентной и диффузной компонент рассеянной на градиентном слое интенсивности проводилось на основе (1) и (4) с использованием численных методов. Расчет амплитудного коэффициента отражения когерентной составляющей от гетероструктуры выполнен по формуле (3). Интенсивность диффузно рассеянных волн на третьем слое вычислялась по методу, предложенному в [25].

На рис. 2 изображены КДО верхнего (слева) и градиентного слоев в зависимости от значений статфакторов E_3 и E_2 . Радиус дефектов верх-

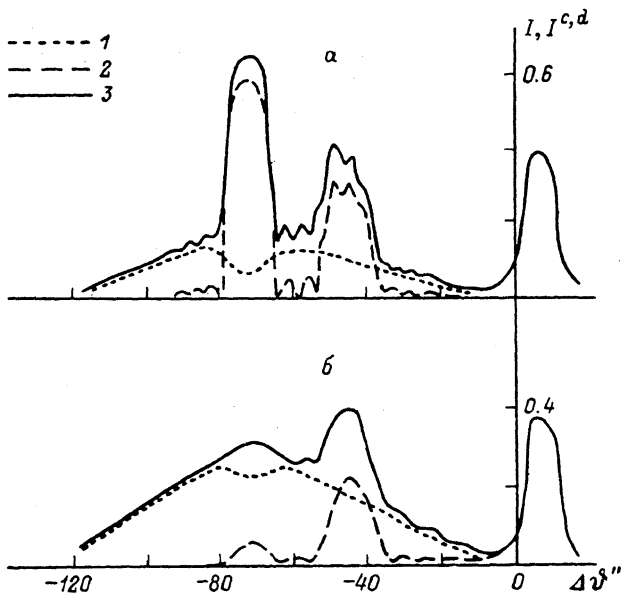


Рис. 4. КДО от гетероструктуры с дефектным верхним слоем. В градиентном слое микродефекты отсутствуют ($E_2=1$).

1 — диффузная, 2 — когерентная, 3 — полная интенсивность. а — $E_3=0.8$, б — 0.2.

него слоя $r_0=0.3$ мкм, для градиентного слоя $\tau_0=0.2$ мкм, $t_3=3$, $t_2=2$ мкм. Расчеты показывают тенденцию роста диффузной составляющей и подав-

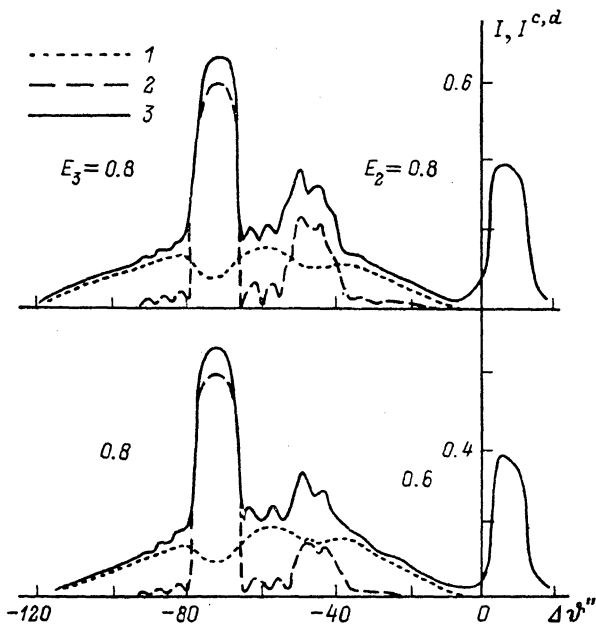


Рис. 5. КДО от гетероструктуры в зависимости от величины статфакторов верхнего E_3 и градиентного E_2 слоев.

1 — диффузная, 2 — когерентная, 3 — полная интенсивность.

ление когерентной компоненты с увеличением величины статфактора. В случае большой степени аморфизации слоя ($E_{2,3}=0.2$) профиль КДО в основном определяет диффузная компонента.

Из-за интерференции дифрагированных волн профиль максимума градиентного слоя гетероструктуры заметно меняется (рис. 3). Вид КДО сильно зависит от совершенства каждого слоя гетероструктуры. На рис. 3 изображены КДО гетероструктуры, в которой верхний слой — совершенный кристалл ($E_3=1$), статфактор градиентного слоя E_2 варьируется от 1 до 0.2. В верхней части рисунка показана КДО от бездефектной гетероструктуры. В этом случае диффузная компонента отсутствует и профиль кривой дифракционного отражения полностью определяет когерент-

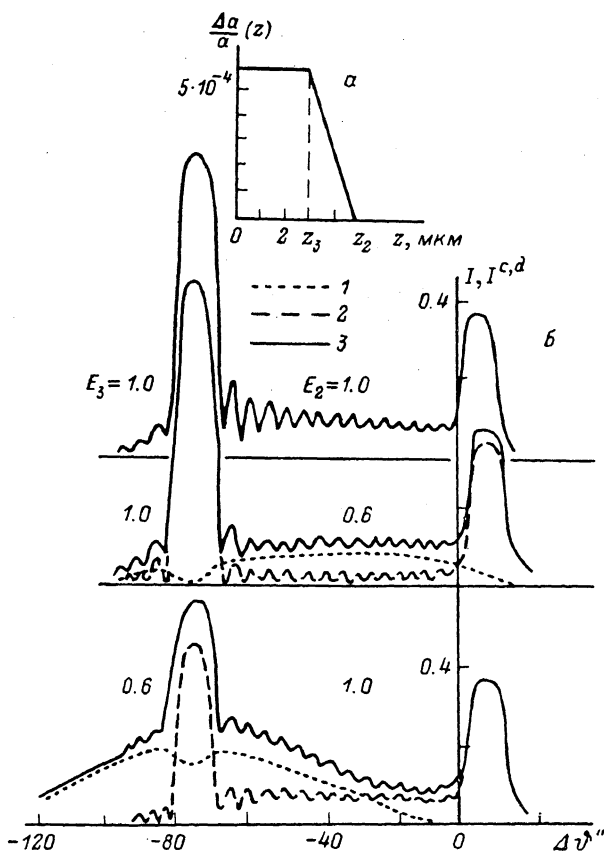


Рис. 6. Закон изменения межплоскостного расстояния (а) и КДО (б) гетероструктуры с большим градиентом деформации переходного слоя.

1 — диффузная, 2 — когерентная, 3 — полная интенсивность.

ная интенсивность. При $E_2=0.2$ когерентное рассеяние на градиентном слое сильно подавлено, в угловой области дифракции этого слоя практически отсутствует экстинкционный провал, который еще заметен при $E_2=0.6$. Что касается экстинкционного провала под пиком верхнего слоя, то, как отмечалось выше, он обусловлен дифракцией диффузных волн, родившихся в градиентном слое гетероструктуры. На рис. 4 показаны КДО гетероструктуры с различной степенью аморфизации верхнего слоя. Нарушение строгой периодической структуры среднего слоя связано лишь с постоянным градиентом деформации решетки. Видно, что кривые дифракционного отражения с $E_3=0.8$ и $E_3=0.2$ существенно отличаются.

Боле протяженный диффузный фон формируется, когда оба верхних слоя гетероструктуры частично аморфизованы (рис. 5). При этом изменение статфактора градиентного слоя с 0.8 до 0.6 заметно видоизменяет профиль КДО гетероструктуры. Наличие микродефектов в градиентном слое является причиной появления двух экстинкционных провалов диффузного фона (рис. 3, 5), так как родившиеся в этом слое диффузные

кванты испытывают дифракцию как в собственной среде, так и в верхнем слое гетероструктуры при соответствующих значениях угловой отстройки. В отсутствие микродефектов в градиентном слое имеется лишь один экстинкционный провал в угловой области брэгговского пика верхнего слоя (рис. 4).

До сих пор используемая в численных расчетах модель гетероструктуры (рис. 1) имела малую деформацию решетки градиентного слоя. Поэтому на приведенных профилях КДО четко выделяются оба дифракционных максимума двух верхних сред (рис. 3—5). Картина существенно меняется, если переходный слой имеет большой градиент деформации. На рис. 6 показаны профиль деформации такой гетероструктуры и соответствующие ему КДО. Переходная область обеспечивает непрерывное согласование параметров решетки на границах слоев. В этом случае нет ясно выраженного дифракционного максимума градиентного слоя. Степень аморфизации каждого слоя гетероструктуры влияет на величину амплитуды интерференционных осцилляций, а также профиль КДО в целом.

В заключение отметим, что изложенная схема рассмотрения динамической дифракции на трехслойной гетероструктуре может быть распространена на любой дискретно-слоистый кристалл с любым числом слоев. Алгоритм решения такой задачи подробно изложен в [21].

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Кривоглаз М. А. Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. Киев. 1983. 408 с.
- [2] Holy V. // Phys. St. Sol. (b). 1982. V. 111. P. 341—351.
- [3] Молодкин В. Б. // Металлофизика. 1981. Т. 3. № 4. С. 27—38.
- [4] Дмитриенко В. Е., Каганер В. М. // Металлофизика. 1987. Т. 9. № 1. С. 71—76.
- [5] Дударев С. Л., Рязанов М. И. // Преприят МИФИ. 1989. № 001-89. 28 с.
- [6] Дарбинян С. П., Варганьянц И. А., Чуховский Ф. Н. // Физика (Ереван). 1987. № 8—9. С. 64—70.
- [7] Бушуев В. А. // Кристаллография. 1989. Т. 34. № 2. С. 279—287.
- [8] Kato N. // Acta Cryst. A. 1980. V. 36. N 5. P. 763—778.
- [9] Петрашень П. В. // Металлофизика. 1986. Т. 8. № 1. С. 35—43.
- [10] Петрашень П. В., Чуховский Ф. Н. // Металлофизика. 1986. Т. 8. № 3. С. 45—51.
- [11] Колпаков А. В., Пунегов В. И. // Вестник МГУ, сер. 3. Физика, астрономия. 1984. Т. 25. № 6. С. 64—67.
- [12] Kolpakov A. V., Punegov V. I. // Sol. St. Comm. 1985. V. 54. N 7. P. 573—578.
- [13] Колпаков А. В., Пунегов В. И. // Вестник МГУ, сер. 3. Физика, астрономия. 1986. Т. 27. № 5. С. 85—87.
- [14] Колпаков А. В., Пунегов В. И. // Поверхность. 1988. № 3. С. 82—84.
- [15] Лидер В. В., Чуховский Ф. Н., Хапачев Ю. П., Барашев М. Н. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 4. С. 74—80.
- [16] Пунегов В. И. // Тез. докл. III совещ. по всесоюз. межвуз. программе «Рентген». Ереван, 1989. С. 22, 38.
- [17] Пунегов В. И. // Кристаллография. 1990. Т. 35. № 3. С. 576—583.
- [18] Bartels W. J., Hornstra J., Lobeek D. J. W. // Acta Cryst. A. 1986. V. 42. N 6. P. 539—545.
- [19] Кютт Р. Н., Аргунова Т. С. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 1. С. 40—45.
- [20] Golovin A. L., Pietsch U. // Phys. St. Sol. (a). 1986. V. 96. N 2. P. K111—K115.
- [21] Пунегов В. И., Ладанов А. В. // Поверхность. 1990. № 4. С. 45—50.
- [22] Punegov V. I., Ladanov A. V. // Collected Abstr. 12 Europ. Cryst. Meeting. Moscow, 1989. V. 3. P. 93.
- [23] Пунегов В. И., Ладанов А. В. // ЖТФ. 1989. Т. 59. № 11. С. 188—189.
- [24] Ladanov A. V., Punegov V. I. // См. [22]. P. 137.
- [25] Бушуев В. А. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 11. С. 70—78.
- [26] Tarfer L., Ploog K. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. N 8. P. 5565—5574.
- [27] Пинскер З. Г. Рентгеновская кристаллооптика. М., 1982. 391 с.
- [28] Cromer D. T., Waber J. T. // International Tables for X-ray Crystallography. 1974. V 4. P. 71—151.
- [29] Cromer D. T., Liberman D. // J. Chem. Phys. 1970. V. 53. N 5. P. 1891—1898.
- [30] Vetelino J. F., Gaur S. P., Mitra S. S. // Phys. Rev. B. 1972. V. 5. N 6. P. 1260—1268.