

06

Форма распределения интенсивности рентгеновской дифракции в обратном пространстве и ее связь с дислокационной структурой эпитаксиальных слоев

© Р.Н. Кютт, М.П. Щеглов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: R.Kyutt@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 30 октября 2017 г.

Измерена дифракция в асимметричной брэгговской геометрии и построены карты распределения интенсивности в обратном пространстве для эпитаксиальных слоев GaN, выращенных на *c*-сапфире, с разной степенью структурного совершенства. Подтверждено, что для регулярной системы прорастающих перпендикулярных прямолинейных дислокаций контуры равной интенсивности вытянуты в направлении, параллельном поверхности. При более хаотичном распределении дислокаций с большой долей горизонтальных фрагментов контуры развернуты в сторону направления, перпендикулярного вектору обратной решетки, хотя и не достигают предельного положения, характеризующего идеально мозаичный кристалл.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.12.46297.17100

В двухволновой дифракции двумерное распределение интенсивности широко используется при анализе деформаций и релаксации упругих напряжений в многослойных эпитаксиальных структурах [1–5]. Обычно для этой цели стандартным подходом служат измерения в асимметричной брэгговской геометрии, позволяющие получать компоненты, перпендикулярные и параллельные поверхности образца.

Для нарушенных кристаллических структур влияние дефектов приводит к изменению формы контуров равной интенсивности вокруг узлов обратной решетки. Как известно, дислокации вызывают уширение дифракционных пиков и влекут за собой растяжение распределений интен-

сивности в тех или иных направлениях. При анализе формы и направленности изоконтуров играют роль два момента. Для прямолинейных дислокаций рассеяние, по Кривоглазу, есть фурье-преобразование от поля смещений; следовательно, распределение интенсивности должно иметь форму дисков, перпендикулярных линии дислокации. Внутри диска распределение интенсивности определяется произведением $\mathbf{H} \cdot \mathbf{u}$, где \mathbf{H} — вектор обратной решетки, а \mathbf{u} — поле смещений вокруг дислокации. Это имеет место (и экспериментально наблюдается) для регулярной системы дислокаций, каковыми являются прорастающие перпендикулярно интерфейсу дислокации. Такая дислокационная структура характерна для эпитаксиальных слоев III-нитридов (GaN, AlN, InN), для которых при больших рассогласованиях параметров решетки с подложкой затруднено образование параллельных интерфейсу дислокаций. Распределение интенсивности в этом случае вытянуто параллельно поверхности как для симметричных, так и асимметричных рефлексов [3–7]. Конечно, мы не должны отбрасывать размерный эффект. Если оперировать в рамках мозаичной модели кристалла областями когерентного рассеяния (ОКР), то для эпитаксиальных слоев нужно рассматривать два направления: параллельно и по нормали к поверхности. Для слоев с регулярной системой прорастающих дислокаций эти размеры в принципе будут разными.

Для достаточно тонких пленок размер по нормали обычно определяется толщиной слоя. Что касается латерального размера, то в первом приближении его можно ассоциировать со средним расстоянием между дислокациями. Конечно, для дислокационных структур размеры, как и сами ОКР, являются некими весьма опосредованными величинами. Тем не менее их следует принимать во внимание при анализе формы контуров равной интенсивности.

Анализ экспериментальных данных, проводимый на основе построения Вильямсона–Холла, показал, что вклад латеральных размеров в общую угловую ширину пиков θ -моды во многих случаях меньше, чем вклад локальных разворотов вокруг дислокаций. Разумеется, здесь речь идет о сплошных слоях, а не о более сложных структурах, как например в [8].

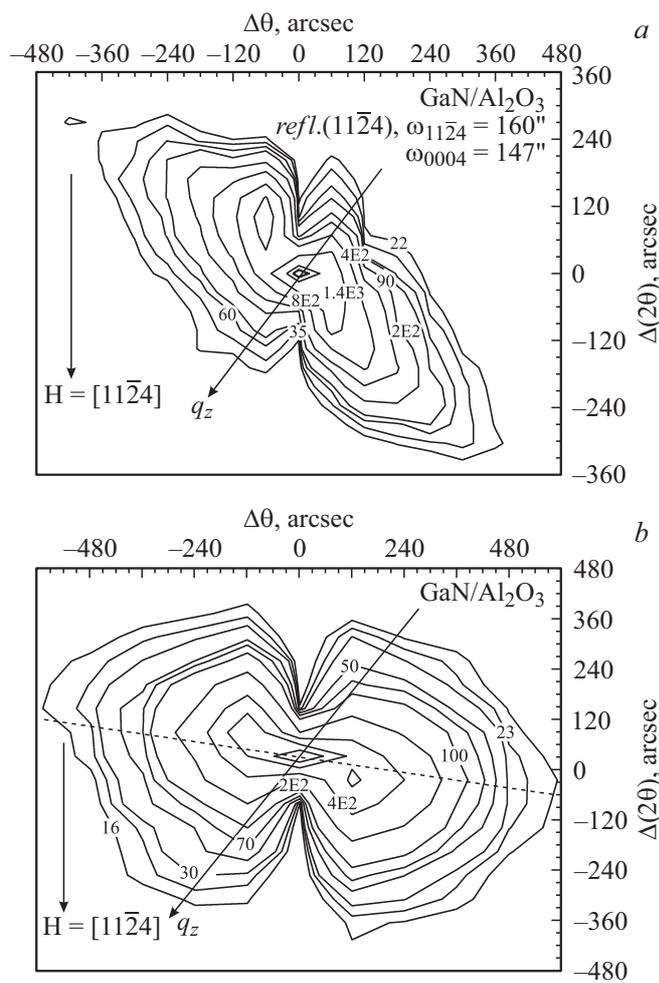
В экспериментах по двухволновой дифракции измеряется интенсивность в плоскости дифракции, определяемой волновыми векторами падающей и дифрагированной волн \mathbf{k}_0 , \mathbf{k}_h и вектором дифракции \mathbf{H} , т. е. в поперечных сечениях, перпендикулярных дискам распределения.

Поскольку в направлении нормали к поверхности уширение дифракционного распределения интенсивности, как правило, много меньше латерального, в эксперименте диски выявляются преимущественно в форме, близкой к эллипсу. И если размер этих эллипсов вдоль большой оси определяется подавляющим вкладом дислокационной структуры (за исключением влияния изгиба), то размер вдоль малой оси зависит кроме толщины и от других факторов, включающих инструментальные вклады. Детально анализировать их (по крайней мере, в рамках данной публикации) не представляется возможным. Поэтому основным параметром, характеризующим тип дислокационной структуры, в настоящей работе служит направление большой оси эллипсов относительно нормали к поверхности и дифракционного вектора.

Взаимоотношением вкладов латеральных размеров и локальных разворотов был объяснен разворот изоконтуров асимметричных отражений в некоторых образцах III-нитридов в работе [9]. Однако в данном случае авторы полагали, что дислокации вызывают уширение дифракционных рефлексов перпендикулярно дифракционному вектору, тогда влияние конечных латеральных размеров действительно приводит к развороту. Такой же точки зрения придерживаются и авторы одной из последних работ на эту тему [10]. На самом же деле уширение, обусловленное прямолинейной системой прорастающих дислокаций (как винтовых, так и краевых), как отмечено выше, направлено параллельно поверхности. Туда же „смотрит“ направление большой оси эллипса.

С другой стороны, в работе [11] также наблюдалась разная направленность контуров для слоев GaN и InN в эпитаксиальной системе InN–GaN–сапфир, но это было качественно объяснено авторами как изменение типа дислокационной структуры при переходе от нижнего слоя к верхнему.

В настоящей работе экспериментально измерены карты распределения интенсивности для асимметричного брэгговского рефлекса и проанализирована форма полученных контуров в зависимости от дислокационной структуры. Объектами исследования служило несколько образцов со слоями GaN, выращенными на *c*-сапфире методом газотранспортной эпитаксии (HVPE) с разным типом дислокационной структуры, толщина пленок была около 10 μm . Измерения проводились на рентгеновском дифрактометре в трехкристальной схеме. Монохроматором и анализатором служили кристаллы Ge(004).



Экспериментальные контуры (карты) распределения интенсивности вокруг узла обратной решетки асимметричного брэгговского рефлекса $11\bar{2}4$ для двух эпитаксиальных слоев GaN с разным типом дислокационной структуры: регулярной системой прямолинейных перпендикулярных дислокаций (a) и хаотическим распределением дислокаций (b).

На рисунке приведены две характерные карты распределения, построенные на ортогональных осях q_H – q_α , где ось q_α перпендикулярна \mathbf{H} . Видно, что в первом случае распределение вытянуто вдоль q_x — параллельно поверхности. Угол большой оси эллипса составляет с осью q_H угол 39° , что равно углу асимметрии рефлекса $11\bar{2}4$. Согласно отмеченному выше, это соответствует регулярной системе прорастающих перпендикулярно поверхности прямолинейных дислокаций. Поскольку для данного рефлекса мы имеем дело с вкладом как винтовых, так и краевых дислокаций: $(\mathbf{H} \cdot \mathbf{u}) \neq 0$, говорить об их соотношении, а также размерах ОКР здесь не приходится. Эти данные были получены из детального анализа отражений Брэгга и Лауэ ранее. Здесь же для нас имеет значение только одна характеристика — направление большой оси эллипса вдоль поверхности, что позволяет сделать вывод о регулярной системе прорастающих перпендикулярных дислокаций.

Во втором случае карта распределения интенсивности имеет другой вид. Контуры (эллипс) вытянуты практически перпендикулярно оси q_H , ось эллипса составляет с осью q_H малый угол в 10° . Если исходить из модели прямолинейных дислокаций, то разворот контуров распределения интенсивности от направления q_x в сторону q_z должен вызываться горизонтальными дислокациями. Конечно, в реальных объектах нет двух регулярных систем прямолинейных дислокаций. Поэтому если считать таковыми разрозненные фрагменты, то направление контуров перпендикулярно дифракционному вектору (при асимметричной дифракции) можно вполне связать с хаотическим дислокационным распределением по объему эпитаксиального слоя.

Как упоминалось выше, для хаотического распределения дислокаций обычно считается, что контуры равной интенсивности, скорее, вытянуты в направлении, перпендикулярном вектору дифракции. Хотя строгих теоретических расчетов (в отличие от случая регулярных прорастающих дислокаций) в литературе нет. Вообще говоря, разворот контуров от положения, параллельного поверхности, можно интерпретировать как переход от регулярной системы дислокаций к мозаичному кристаллу. Тогда предельным структурным состоянием является идеально мозаичный кристалл с равновероятными ориентациями кристаллитов-зерен, для которого диски распределения интенсивности перпендикулярны вектору дифракции.

Как видно из рисунка, *b*, этот конечный предел для нашего образца не достигается, что свидетельствует о некоем сохраняющемся вкладе прорастающих нормальных к поверхности дислокаций.

Таким образом, для эпитаксиальных слоев АИИ-нитридов с большой плотностью дислокаций направление наибольшего уширения дифракционных распределений лежит в интервале углов между параллельным поверхности и перпендикулярным вектору обратной решетки положениями. Этот интервал (и, следовательно, степень хаотичности в распределении дислокаций) тем больше, чем больше угол асимметрии дифракционного рефлекса. Разумеется, здесь речь не идет о чисто горизонтальных системах дислокаций, которые не характерны для пленок АИИ-нитридов (за исключением некоторых особых методов выращивания типа ELOG).

Разный характер дислокационной структуры в двух описанных образцах следовал и из анализа полуширин и дифракционных пиков для образца, пример которого приведен на рисунке, *a*: наблюдалась резкая анизотропия в угловой ширине дифракционных пиков отражений Брэгга и Лауэ. Из рисунка, *a* и приведенного выше анализа видно, что эти свойства непосредственно следуют из формы контуров равной интенсивности. Отметим также, что по Вильямсону–Холлу вклад латеральных размеров в уширение значительно меньше, чем вклад дислокационных разворотов, так что их влияние на направление контуров в нашем случае также мало.

В настоящее время трудно связать направленность контуров равной интенсивности с конкретными параметрами дислокаций, если такое вообще возможно (за исключением прямолинейных прорастающих дислокаций). Для таких выводов у нас недостаточно экспериментальных данных и требуются дополнительные исследования. Пока можно говорить только о некоей степени мозаичности (или хаотичности) в распределении дислокаций.

Список литературы

- [1] *Heinke H., Kirchner V., Einfeldt S., Hommel A.* // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. N 14. P. 2145–2147.
- [2] *Alexe G., Heinke H., Haase L., Hommel D., Schreiber J., Albrecht M., Strunk H.P.* // J. Appl. Phys. 2005. V. 97. N 10. P. 103506. (1–6).

- [3] *Poust B., Hejing B., Hayachi S., Ho R., Matney K., Sandhu R., Wojtowicz M., Goorsky M.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2005. V. 38. N 10A. P. A93–98.
- [4] *Barchuk M., Holy V., Miljevich B., Krause B., Baumbach T., Hertkorn J., Sholz F.* // J. Appl. Phys. 2010. V. 108. N 4. P. 043521.
- [5] *Kyutt R.N., Shcheglov M.P., Ratnikov V.V., Davydov V.Yu., Smirnov A.N., Rozhavskaya M.M., Zavarin E.E., Lundin V.V.* // Cryst. Rep. 2013. V. 58. N 7. P. 953–958.
- [6] *Кютт Р.Н., Ратников В.В., Мосина Г.Н., Щеглов М.П.* // ФТТ. 1999. Т. 41. В. 1. С. 30–37.
- [7] *Ratnikov V.V., Kyutt R.N., Shubina T.V., Pashkova T., Monemar B.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V. 34. N 10A. P. A30–A34.
- [8] *Kyutt R.N., Banskchikov A.G., Kaveev A.K., Sokolov N.S., Ohtake Y., Tabuchi M., Takeda Y., Lomov A.A.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40. N 16. P. 4896-4901.
- [9] *Chierchia R., Böttcher T., Heinke H., Einfeldt S., Figge S., Hommel D.* // J. Appl. Phys. 2003. V. 93. N 11. P. 8918–8925.
- [10] *Barchuk M., Motylenko M., Lukin G., Pätzold O., Rafaja D.* // J. Appl. Cryst. 2017. V. 50. Pt 2. P. 555–560.
- [11] *Кютт К.Н., Динаев Ю.А.* // Письма в ЖТФ. 2009. Т. 35. В. 21. С. 6–15.