

06:07

Трехволновая дифракция в нарушенных эпитаксиальных слоях с вюрцитной структурой

© Р.Н. Кютт

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: r.kyutt@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 8 июня 2010 г. В окончательной редакции 29 сентября 2010 г.)

Проведены экспериментальные измерения трехволновой дифракции рентгеновских лучей по схеме Реннингера для серии эпитаксиальных слоев GaN различной толщины и разного структурного совершенства. В каждом угловом интервале азимутального вращения в 30° наблюдаются все 10 трехволновых пиков, обусловленных геометрией дифракции с первичным запрещенным отражением 0001 и $\text{CuK}\alpha$ -излучением. Для каждой трехволновой комбинации измерены дифракционные кривые φ - и θ -сканирования. Проанализированы угловая полуширина полученных дифракционных пиков и ее связь с параметрами двухволновой дифракционной картины и дислокационной структурой слоев. Показано, что пики φ -сканирования менее чувствительны к степени структурного совершенства, чем пики θ -моды. Из последних наибольшая зависимость от плотности дислокаций наблюдается для трехволновых комбинаций $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$ и $(3\bar{2}\bar{1}0)/(\bar{3}211)$ с чистой Лауэ-составляющей вторичного отражения, а наименьшая — для комбинации $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$ с большой брэгговской составляющей. Обнаружено расщепление трехволновых пиков Реннингера, обусловленное крупноблочной структурой некоторых из исследованных слоев с разворотами блоков вокруг нормали к поверхности. Определена полная интегральная интенсивность всех трехволновых комбинаций, их соотношения качественно соотносятся с теорией.

Введение

Многоволновая дифракция открыта Реннингером в 1937 г. [1], им были проведены первые эксперименты, разработаны два варианта кинематической теории для расчета соответствующих дифракционных картин. С тех пор вышло немало как теоретических, так и экспериментальных работ на эту тему [2–6]. Эксперименты проводились в основном на монокристаллах, причем, как правило, для проверки тех или иных теоретических расчетов. Чаще всего объектом исследования являлись кристаллы сферической формы [7].

Для эпитаксиальных слоев многоволновая дифракция использовалась лишь в нескольких работах, где из углового положения многоволновых пиков на диаграмме Реннингера определялись параметр решетки и деформация эпитаксиального слоя [8–10].

Эпитаксиальные слои A^{III} -нитридов (GaN, AlN, InN), а также близкого к ним ZnO имеют структуру типа вюрцита и выращиваются в большинстве случаев на подложке сапфира, при этом рассогласование в плоскости интерфейса (0001) очень велико (13% для GaN). Это приводит к генерации большой плотности дислокаций. К настоящему времени дислокационная структура таких слоев хорошо изучена. В большинстве случаев в них преобладает система прямолинейных, прорастающих перпендикулярно поверхности дислокаций краевого и винтового типов [11–16].

В рентгенодифракционных работах дислокационная структура характеризуется, как правило, на основе мозаичной модели с введением таких параметров, как размер блоков в 2 направлениях, деформация в блоках, раз-

вороты блоков вокруг оси, параллельной поверхности (tilting) и вокруг нормали к поверхности (twisting).

В работе [16] была предложена более детальная характеристика нитридных слоев с введением тензора микродисторсии. Из ее компонент можно оценить плотность отдельных семейств дислокаций. Для того чтобы получить все компоненты тензора микродисторсии, требуется измерение $\theta-2\theta$ и θ -мод сканирования в 3 геометриях дифракции. В [16] для этого использовались симметричная брэгговская геометрия, симметричная Лауэ-геометрия и наклонная, или скользящая, дифракция. Из анализа полуширин измеренных дифракционных пиков определяются размеры областей когерентного рассеяния в двух направлениях и плотность различных дислокационных ансамблей.

По упрощенной мозаичной модели также требуется комбинация симметричных, асимметричных и наклонных брэгговских отражений [17]. Переход от одной геометрии к другой с соответствующей настройкой образца представляет собой довольно сложную экспериментальную процедуру.

Трехволновые пики Реннингера уже сочетают в себе отражения в различных геометриях. Поэтому они несут в себе информацию об уширении в разных направлениях. Это позволит определять структурное состояние кристалла более простым способом, не меняя геометрии измерений.

Первые диаграммы Реннингера для GaN и ZnO были измерены в работах [18–20]. Авторы работы [18] рассчитали положение и относительную интенсивность трехволновых рефлексов на шкале зависимости от угла φ и показали их соответствие расчету. В работах [19–20]

было показано различие ширины трехволновых дифракционных пиков для слоев GaN, выращенных в разных условиях, без подробного анализа и выявления каких-либо закономерностей.

Ранее в [21] были опубликованы некоторые предварительные результаты измерений трехволновой дифракции в нескольких образцах GaN. В настоящей работе проведено более детальное исследование с привлечением большого количества эпитаксиальных слоев GaN, различных по структурному совершенству и толщине. На основе экспериментальных измерений трехволновой дифракции рассмотрен ряд особенностей дифракционной картины Реннингера в сильно нарушенных эпитаксиальных слоях с вюрцитной структурой и проведен сравнительный анализ дифракционной картины в случаях трехволновой и двухволновой дифракций.

1. Методика

Трехволновая (многоволновая) дифракция возникает, когда наряду с узлами обратной решетки O и H_1 (случай стандартной двухволновой дифракции) на сферу Эвальда попадает еще один узел H_2 . В этом случае брэгговские условия будут соблюдаться не только для отражений H_1 и H_2 , с векторами обратной решетки \mathbf{OH}_1 и \mathbf{OH}_2 , но автоматически и для рефлекса с вектором $\mathbf{H}_2\mathbf{H}_1 = \mathbf{OH}_1 - \mathbf{OH}_2$ (рис. 1).

Самой распространенной и простой схемой наблюдения многоволновой дифракции является схема сканирования Реннингера. В ней образец настраивается на получение симметричного брэгговского отражения H_1 и затем, оставаясь в этих условиях, вращается вокруг вектора обратной решетки \mathbf{OH}_1 (или, что то же самое, вокруг нормали к поверхности). В качестве первичного берется запрещенное или очень слабое (квазизапрещенное) отражение. В этом случае при попадании на сферу Эвальда узла H_2 на диаграмме сканирования (зависимости интенсивности в направлении \mathbf{k}_h от азимутального угла φ) появляется трехволновой пик. Этот пик был назван Реннингером пиком окольного возбуждения, поскольку для третьего рефлекса $\mathbf{H}_2\mathbf{H}_1$ волна в направлении \mathbf{PH}_2 будет падающей, а в направлении $\mathbf{PH}_1 (= \mathbf{k}_h)$ — отраженной.

1.1. Положение трехволновых пиков на диаграмме Реннингера

Известно, что в силу гексагональной симметрии дифракционная картина Реннингера также высоко симметрична. Если взять за нулевой отсчет по азимуту такое положение образца, при котором направление $[11\bar{2}0]$ лежит в плоскости рассеяния, образованной векторами \mathbf{k}_0 и \mathbf{k}_h , то трехволновые пики всех возможных комбинаций лежат в интервале азимутальных углов $\varphi = 0\text{--}30^\circ$, в следующем угловом интервале $30\text{--}60^\circ$ они следуют в обратном порядке (зеркально отражаются). Затем дифракционная картина повторяется через каждые 60° .

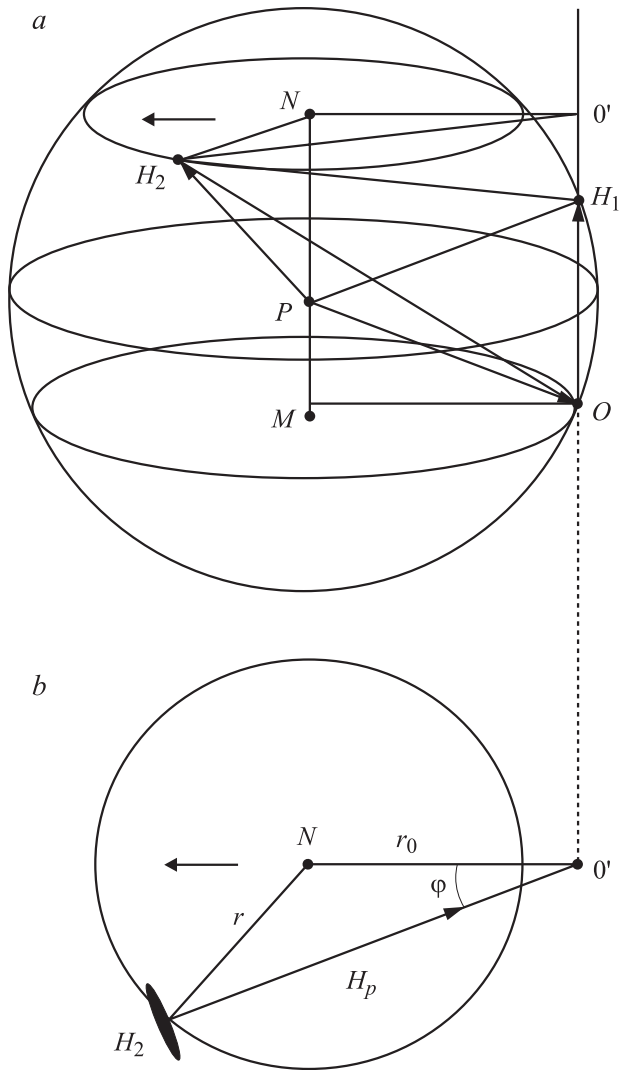


Рис. 1. Одновременное расположение трех узлов обратной решетки (O , H_1 и H_2) на сфере Эвальда при возникновении трехволновой дифракции (а) и сечение сферы Эвальда, перпендикулярное вектору \mathbf{OH}_1 и содержащее узел H_2 (б).

Для расчета угловых положений трехволновых пиков возьмем за основу рис. 1. Сделаем два сечения сферы Эвальда, перпендикулярные вектору обратной решетки \mathbf{OH}_1 — одно, содержащее узел O с центром в точке M , и второе, проходящее через узел H_2 с центром в точке N . Радиус первого сечения обозначим через r_0 , второго — через r . Рассмотрим две проекции вектора обратной решетки \mathbf{OH}_2 — параллельную поверхности H_p и нормальную H_n . $H_p = OH_2 \cos \varphi$, $H_n = OH_2 \sin \varphi$, где φ — угол между векторами \mathbf{OH}_1 и \mathbf{OH}_2 . Из треугольника MPO следует, что $r_0 = k \cos \theta_B$. Расстояние между центрами $PN = H_n - H_1/2$, где H_1 есть длина вектора \mathbf{OH}_1 . Значение r можно найти из треугольника PNH_2 :

$$r = \sqrt{k^2 - (H_n - H_1/2)^2}. \quad (1)$$

Таблица 1. Угловые положения трехволновых пиков на диаграмме Реннингера для GaN (расчетные значения). $\text{CuK}\alpha$ -излучение, первичный рефлекс 0001. Нулевой угол соответствует азимутальному положению 11 $\bar{2}$ 0

Пик	Комбинация	φ , deg
MP-1	(02 $\bar{2}$ 3)/(0 $\bar{2}$ 2 $\bar{2}$)	6.48
MP-2	(3 $\bar{1}$ $\bar{2}$ 0)/(3 $\bar{1}$ 21)	7.37
MP-3	(01 $\bar{1}$ 3)/(0 $\bar{1}$ 1 $\bar{2}$)	10.35
MP-4	(12 $\bar{3}$ 3)/(1 $\bar{2}$ 3 $\bar{2}$)	11.04
MP-5	(1 $\bar{1}$ 00)/(1 $\bar{1}$ 01)	16.38
MP-6	(02 $\bar{2}$ 2)/(0 $\bar{2}$ 2 $\bar{1}$)	19.91
MP-7	(02 $\bar{2}$ 1)/(0 $\bar{2}$ 20)	25.66
MP-8	(1 $\bar{1}$ 0 $\bar{1}$)/(1 $\bar{1}$ 02)	26.23
MP-9	(3 $\bar{1}$ $\bar{2}$ 2)/(3 $\bar{1}$ 23)	27.17
MP-10	(3 $\bar{2}$ $\bar{1}$ 0)/(3211)	29.15

Теперь рассмотрим треугольник H_2NO' . В нем $NH_2 = r$, $NO' = r_0$ и $O'H_2 = H_p$. Тогда угол азимутального поворота, на который надо повернуть кристалл, чтобы вывести узел H_2 на сферу Эвальда, определяется как

$$\cos \varphi = \frac{r_0^2 + H_p^2 - r^2}{2r_0H_p}. \quad (2)$$

Здесь угол φ отсчитывается от положения, при котором параллельная проекция вектора обратной решетки OH_2 лежит в плоскости рассеяния (указано стрелкой на рис. 1). Если теперь все углы отсчитывать от единого азимутального положения ([11 $\bar{2}$ 0] в плоскости рассеяния), то рассчитанные таким образом азимутальные угловые положения всех возможных трехволновых пиков для GaN (для одного интервала в 30°) примут значения, приведенные в табл. 1. При расчете использовались следующие значения параметров решетки GaN: $c = 5.1851 \text{ \AA}$, $a = 3.189 \text{ \AA}$.

1.2. Зависимость от параметров решетки

Из формул (1) и (2) видно, что угловое положение пиков на диаграмме Реннингера зависит от параметров решетки a и c . При этом те комбинации, для которых вектор обратной решетки имеет большую Лауэ-составляющую H_p , должны быть более чувствительны к изменению параметра a , а те, которые имеют большую нормальную составляющую H_n , — к параметру c . Кроме того, в эксперименте точное измерение абсолютного значения угла φ затруднено, гораздо точнее можно измерить относительные значения, особенно разницу в угловых положениях двух близко отстоящих трехволновых пиков. В связи с этим наилучшим вариантом для определения параметра a является измерение угла между двумя соседними (зеркально отраженными через линию $\varphi = 30^\circ$) трехволновыми пиками MP-10 (комбинация (3 $\bar{2}$ $\bar{1}$ 0)/(3211)). Для введенных табличных значений параметров GaN оно равно 1.69° (см. табл. 1). При погрешности определения центра пиков Реннингера в 0.01° параметр элементарной ячейки a определяется с точностью до $(3-5) \cdot 10^{-4}$.

Для определения параметра c удобно использовать угловое расстояние между трехволновыми пиками MP-9 и MP-10. Комбинация (3 $\bar{1}$ $\bar{2}$ 2)/(3123) обладает наибольшей чувствительностью к параметру c , а (3 $\bar{2}$ $\bar{1}$ 0)/(3211) — наименьшей. Правда, точность определения c здесь получается хуже, чем при определении a , — при погрешности измерения угла φ в 0.01° $\delta c = 8 \cdot 10^{-4}$.

1.3. Эксперимент

Объектами исследования были 9 структур с пленками GaN, выращенными на c -границе сапфира, разной толщины и разного структурного совершенства. Эти образцы были ранее детально изучены методами обычной двухволновой дифрактометрии. В табл. 2 приведены угловые полуширины пиков, полученных в разной геометрии дифракции для нескольких характерных рефлексов.

В качестве первичного было взято запрещенное для вюрцитных структур отражение 0001. Для каждого из образцов измерялись диаграммы Реннингера (φ -сканирование) в грубом (c шагом по φ 0.5° в угловом интервале 120°) и прецизионном вариантах (c шагом 0.03° в угловом интервале в 30°). Для каждого из наблюдаемых на диаграмме Реннингера трехволновых пиков измерялись также кривые θ -сканирования (вращение образца при неизменном азимутальном положении). Измерения проводились на $\text{CuK}\alpha$ -излучении в двухкристальном режиме дифрактометра, в качестве монохроматора использовался монокристалл Ge в отражении 111. Первичная интенсивность (после монохроматора) достигала значения $I_0 = 4 \cdot 10^6$ cps.

Поскольку пики на диаграмме Реннингера имели довольно сложную форму, а кривые θ -сканирования представляли собой единый пик симметричной формы, то интегральная интенсивность трехволновых рефлексов рассчитывалась как площадь под кривой φ -сканирования, умноженная на полуширину соответствующего пика θ -моды. Таким образом, размерность интегральной интенсивности в нашем случае есть cps · deg².

Таблица 2. Уширение дифракционных пиков двухволновой дифракции

№	Толщина, μm	FWHM (0002)-Брэгг θ -сканирование, arc sec	FWHM (1 $\bar{1}$ 00)-Лауэ θ -2 θ -сканирование, arc sec	FWHM (1 $\bar{1}$ 00)-Лауэ θ -сканирование, arc sec	FWHM скользящее отражение, arc sec
1	4	360	76	120	840
2	70	170	86	66	480
3	21	375	53	120	480
4	40	530	102	460	
5	40	790	81	785	1440
6	50	710	190	815	710
7	120	690	120	810	2700
8	180	810	119	890	3200
9	400 (free-st)	200			900

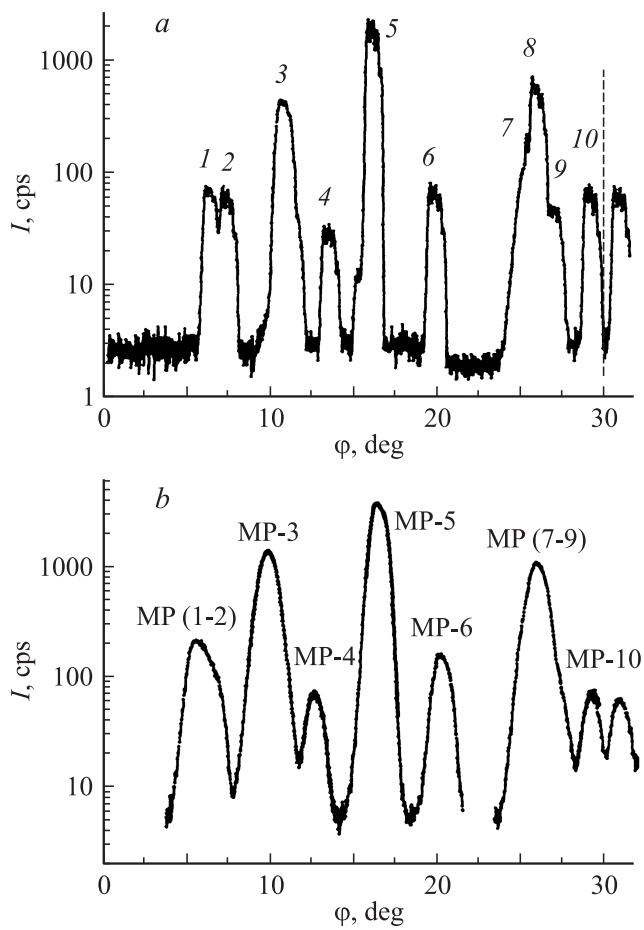


Рис. 2. Диаграммы Реннинера от слоев GaN образца 3 толщиной $20\ \mu\text{m}$ (a) и образца 8 (b) ($180\ \mu\text{m}$), измеренные в интервале углов $\varphi = 0\text{--}32^\circ$. Угол $\varphi = 0$ соответствует азимутальному положению с вектором $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ в плоскости рассеяния. Первичное запрещенное отражение 0001. Номера пиков соответствуют трехволновым комбинациям, приведенным в табл. 1.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 2 представлены диаграммы Реннинера от двух GaN-слоев толщиной 20 и $180\ \mu\text{m}$ (образцы № 3 и 8). В интервале углов $0\text{--}30^\circ$ хорошо просматриваются все 10 трехволновых пиков, приведенных в табл. 1. Их угловое положение соответствует расчету, кроме пика, обозначенного на рис. 2 как MP-4. Его положение не соответствует комбинации $(12\bar{3}3)/(\bar{1}23\bar{2})$, которая должна дать максимум при угле, меньшем на 2° (как по нашему расчету, так и по таблице, приведенной в [18]). Полуширина трехволновых пиков φ -сканирования в общем отражает общую степень совершенства слоев. Наиболее узкие пики наблюдаются для образцов с наименьшей плотностью дислокаций.

2.1. Интегральная интенсивность пиков Реннинера

На диаграммах Реннинера от слоев GaN независимо от их толщины самым интенсивным является пик, принадлежащий комбинации $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$, затем следуют рефлексы MP-3 и MP-8 в наших обозначениях. Остальные комбинации показывают заметно меньшую интенсивность. Вообще говоря, это качественно соответствует расчетам, выполненным в [18] на основе кинематической теории.

С ухудшением структурного качества слоев (если оценивать их по угловой ширине φ - и θ -сканирования) интенсивность трехволновых максимумов уменьшается. Поэтому правильнее, очевидно, рассматривать не пиковую, а интегральную интенсивность (проинтегрированную как по θ , так и по φ) и соотносить ее с интегральной интенсивностью самого сильного рефлекса MP-5.

Очевидно, что разные трехволновые комбинации имеют разную глубину выхода, и их интенсивности по-разному зависят от толщины слоя. Чтобы составить более или менее объективную картину, в табл. 3 представлены полученные экспериментальные значения относительных интенсивностей для нескольких образцов с толстыми эпитаксиальными слоями, где толщина значительно превышает глубину проникновения, определяемую фотоэлектрическим поглощением. Из таблицы видно, что абсолютные значения интегральной интенсивности (приведены только для самого интенсивного рефлекса MP-5) равны, в пределах погрешности, для разных по структурному совершенству слоев. Это указывает на то, что дифракция в них удовлетворяет кинематическому пределу (их структурное несовершенство таково, что дифракция в них носит кинематический характер). Исключение составляет образец отделенной от подложки пленки (free standing) № 9. Здесь наблюдается уменьшение абсолютных значений интегральной интенсивности трехволновых рефлексов. Этот образец является лучшим по структурному совершенству и, очевидно, для него рассеяние уже не носит чисто кинематического характера, и в силу вступают динамические эффекты (первичная экстинкция). Правда, возможно и влияние вторичной экстинкции.

Таблица 3. Относительная интегральная интенсивность трехволновых рефлексов от толстых слоев GaN

№		$J - 5^*$	1	2	3	4	5	6	8	10
6	$50\ \mu\text{m}$	3000	0.045	0.056	0.31	0.011	1	0.041	0.31	0.034
7	$120\ \mu\text{m}$	2700	0.033	0.068	0.29	0.017	1	0.05	0.32	0.034
8	$180\ \mu\text{m}$	3580	0.07	0.19	0.14	1	0.033	0.26	0.02	
9	Free-st	1330	0.035	0.049	0.21	0.034	1	0.29	0.015	
	Теория		0.22	0.56	0.11	1	0.22	0.56	0.11	

* Абсолютная интегральная интенсивность для трехволнового рефлекса MP-5, cps · deg²

Что касается отношения интегральных интенсивностей разных трехволновых комбинаций, то они также получаются примерно равными для всех толстых пленок, за исключением образца № 9. Однако, как видно из табл. 3, конкретные значения относительных интенсивностей получились заметно меньшими, чем значения, рассчитанные в [18] (последняя строка в табл. 3).

2.2. Влияние микроструктуры пленок

Пики φ -сканирования. Полуширина и расщепление

Дислокации в исследованных слоях GaN приводят к уширению пиков φ -сканирования на диаграммах Реннингера, их полуширина зависит как от степени совершенства (плотности дислокаций), так и от типа трехволновой комбинации.

Для некоторых образцов они расщепляются на несколько пиков, особенно это заметно для образцов с толстыми пленками. Это расщепление обусловлено, конечно, крупноблочной структурой слоев, где блоки развернуты друг относительно друга вокруг нормали к поверхности. Угол разворота варьируется в разных образцах в рамках $0.2-0.3^\circ$. Очевидно, что такое расщепление за счет разворота блоков должно быть одинаковым для всех трехволновых рефлексов, что, в общем-то, и наблюдается в эксперименте (см. рис. 2 в [21]). Пики от разных блоков иногда трудно отделить от соседних близкорасположенных разных рефлексов. Именно такая ситуация имеет место в угловой области $\varphi = 25-30^\circ$. Для того чтобы разделить эти эффекты, нужно сравнить дифракционную картину Реннингера по обе стороны от линии зеркального отражения $\varphi = 30^\circ$. На рис. 3 приведен пример такой увеличенной дифрактограммы. Пики, относящиеся к разным рефлексам, должны зеркально отражаться от этой линии (последовательность

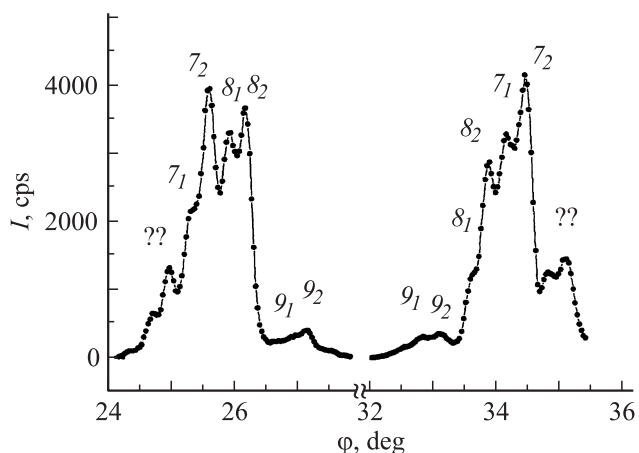


Рис. 3. Участок кривой φ -сканирования в области углов $\varphi = 25-36^\circ$ (для образца 1). Пики, относящиеся к разным трехволновым комбинациям, обозначены как n , а принадлежащие к разным блокам — через n_1, n_2 .

их расположения изменяется на противоположную). Пики, относящиеся к разным блокам, должны быть расположены в той же последовательности. На рис. 3 разные трехволновые комбинации обозначены как порядковые номера n , а относящиеся к одному рефлексу — разными индексами n_1, n_2 .

На увеличенных диаграммах для некоторых образцов наблюдается еще один рефлекс, не подпадающий ни под один из расчетных (обозначен знаком вопроса на рис. 3).

Расщепление пиков, а иногда и их асимметричная форма, затрудняют сравнение угловой ширины разных рефлексов. Но все же можно заключить, что она мало меняется от рефлекса к рефлексу. Хотя можно заметить, что пики, расположенные в области $0-10^\circ$, являются более широкими. В частности, для образца № 3 полуширина пиков Реннингера (для отдельных блоков) трех первых рефлексов колеблется в области $0.26-0.40^\circ$, а остальных — в пределах $0.18-0.22^\circ$. Поэтому на диаграммах Реннингера для рефлексов 1–3 пики от отдельных блоков не разделяются. Отметим, что должно иметь место также дисперсионное уширение пиков φ -сканирования [22]. Его значения, вычисленные по схеме, данной в [22], находятся в пределах от 0.008 до 0.07° для разных рефлексов и не могут сильно влиять на отмеченную выше разницу.

Разумеется, угловая ширина пиков φ -сканирования зависит от дефектной структуры. Даже для пленок с крупноблочной структурой видно, что для одних образцов пики от разных блоков хорошо разрешаются, а для других они сливаются в один. Очевидно, что полуширина трехволновых пиков в этом случае зависит от дислокационной структуры внутри отдельных блоков. Решающее влияние на ширину пиков Реннингера имеет растяжение узла обратной решетки вторичного рефлекса перпендикулярно параллельной проекции его дифракционного вектора (схематически показано на рис. 1, b). Это уширение вызывается углом кручения локальных областей вокруг нормали к поверхности.

Для лучших по структурному совершенству слоев полуширина пиков от отдельных блоков равна $0.2-0.3^\circ$. Самый узкий измеренный нами пик имел полуширину 0.15° .

Полуширина дифракционных максимумов θ -сканирования

Для кривых θ -сканирования также наблюдаются свои закономерности. Разумеется, они также заметно уширены по сравнению с θ -пиками, измеряемыми для совершенных монокристаллов. Но полуширина пиков сильно (в несколько раз) меняется от рефлекса к рефлексу. Самыми широкими из них являются пики, относящиеся к трехволновым комбинациям, для которых вектор обратной решетки \mathbf{OH}_2 параллелен поверхности (Лауэ-отражение), в наших обозначениях это трехволновые рефлексы MP-2, MP-5, MP-10. Поскольку Лауэ-рефлексы

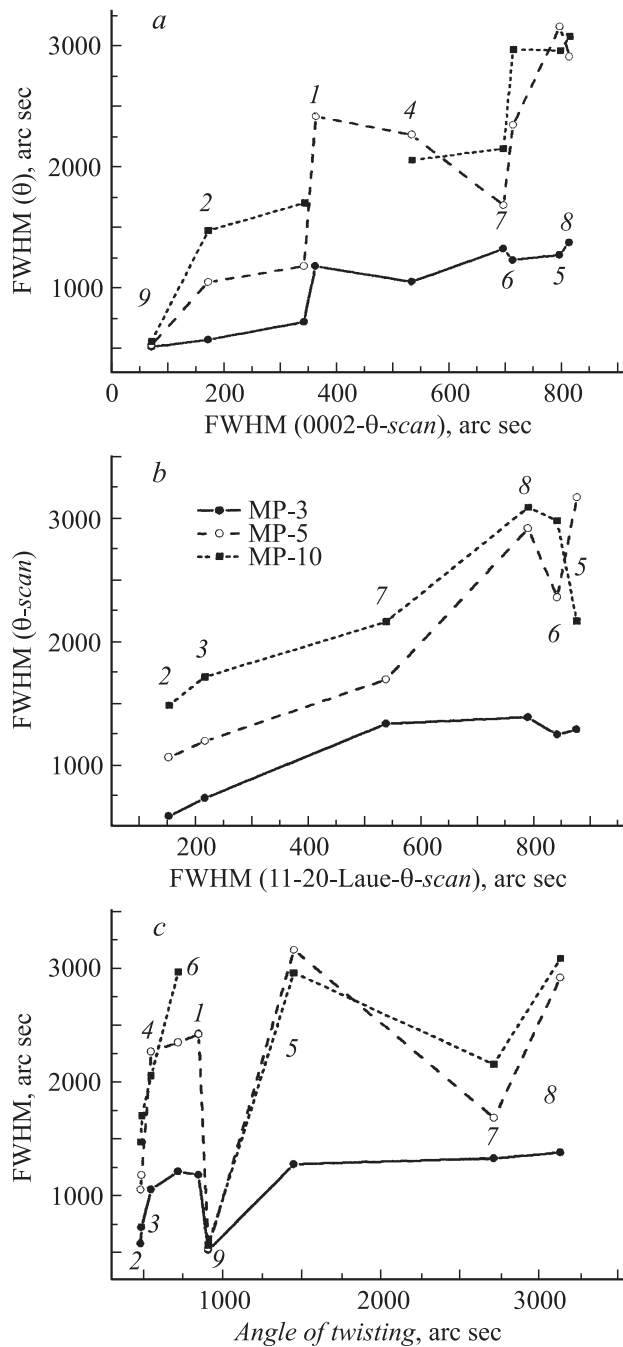


Рис. 4. Зависимость угловой ширины пиков θ -сканирования для трехволновых комбинаций $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$ (сплошные кружки), $(1\bar{1}00)/(\bar{1}101)$ (пустые кружки) и $(3\bar{2}10)/(3\bar{2}11)$ (сплошные квадраты) от уширения двухволновых дифракционных θ -моды симметричного брэгговского отражения 0002 (a); θ -моды симметричного Лауэ-отражения $11\bar{2}0$ (b) и угла разворота вокруг нормали к поверхности (c).

чувствительны к краевым прорастающим и горизонтальным дислокациям [16], то, скорее всего, они и являются ответственными за дополнительное уширение соответствующих пиков θ -моды. А самый узкий θ -пик наблюдается для комбинации $(01\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$, в которой вектор \mathbf{OH}_2 имеет большую составляющую, нормальную к поверхности, и малую, параллельную ей.

Чтобы установить связь между уширением кривых двухволновой и трехволновой дифракции, на рис. 4 приведены зависимости полуширины пиков θ -моды трех характерных трехволновых комбинаций от параметров двухволновой дифракции. В качестве последних выбраны: уширение θ -пиков брэгговского отражения 0002, которое обусловлено влиянием вертикальных винтовых дислокаций и горизонтальных дислокаций; полуширина пиков θ -моды симметричного Лауэ-рефлекса $11\bar{2}0$ (с основным вкладом горизонтальных фрагментов дислокаций) и угол разворота локальных областей вокруг нормали к поверхности (twisting), который создается в основном малоугловыми границами из вертикальных краевых прорастающих дислокаций. Из рис. 4, c видно, что влияние угла twisting на уширение θ -сканов всех трехволновых комбинаций мал. На это указывают как скачок значений FWHM для образцов 2–4 и практическое равенство их для образцов 5, 7, 8. С другой стороны, зависимости θ -моды брэгговского и Лауэ-рефлексов (рис. 4, a, b) носят более монотонный характер. Но поскольку в ряду исследованных образцов вместе с ростом полуширины брэгговского рефлекса увеличивалась и полуширина лауэвского, то нельзя разделить вклады того или другого уширения в угловую ширину θ -пиков трехволновых комбинаций. Следует напомнить, что, согласно мозаичной модели кристалла, уширения, обусловленные локальными разворотами блоков вокруг оси, перпендикулярной плоскости рассеяния (tilting), должны быть одинаковы для брэгговских и Лауэ-рефлексов. Это и наблюдается обычно при хаотическом характере распределения дислокаций (в нашем случае для образцов 5, 7 и 8). Однако для направленных семейств прямолинейных дислокаций узлы обратной решетки имеют форму дисков, перпендикулярных линиям дислокаций. В частности, для типичного для пленок A^{III} -нитридов присутствия вертикальных прорастающих дислокаций узлы уширены в направлении, параллельном поверхности, и такие дислокации вообще не влияют на пики θ -моды в симметричной Лауэ-геометрии. Правда, остается еще вклад $\theta-2\theta$ -моды от краевых прорастающих дислокаций, но, как показывает эксперимент, это уширение, вызванное дилатационными полями смещений вокруг дислокаций, заметно меньше, чем уширение, вызванное локальными разворотами. Трехволновая комбинация возникает когда оба узла обратной решетки (и первичного, и вторичного рефлексов) находятся на сфере Эвальда. Поэтому вполне возможно (особенно для вторичного рефлекса с большой Лауэ-составляющей), что при θ -сканировании узел H_2 уйдет со сферы Эвальда раньше, чем узел H_1 . Тогда определяющим будет влияние уширения Лауэ-рефлекса.

Если сравнивать полуширины θ -пиков разных трехволновых комбинаций, то окажется, что для самого совершенного образца № 9 (отслоенная пленка) они практически одинаковы (разница меньше 10%). Это указывает на то, что влияние инструментальных факторов

(дисперсионное уширение, вертикальная расхлываемость) одинаково для всех трехволновых пиков. Из рис. 4 видно, что трехволновые комбинации и $(1\bar{1}00)/(1\bar{1}01)$ — МР-5, $(3\bar{2}\bar{1}0)/(3\bar{2}11)$ — МР-10, а также $(3\bar{1}\bar{2}0)/(3\bar{1}21)$ — МР-2 являются наиболее чувствительными к плотности дислокационных ансамблей, а наименьшей чувствительностью обладает комбинация $(0\bar{1}\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$.

Форма дифракционных пиков θ -сканирования

Форма пиков θ -сканирования зависит как от степени совершенства пленки (ее дислокационной структуры), так и от типа трехволнового рефлекса. Анализ, сделанный на основе аппроксимации функцией Войта, показывает следующее. Для наиболее совершенных слоев (с наименьшей плотностью всех семейств дислокаций) практически все трехволновые комбинации характеризуются гауссовой формой пиков θ -сканирования. С увеличением дефектности возрастает доля лоренцевой составляющей, и для самых несовершенных из исследованных образцов (№ 5 и 8) она становится доминирующей. Что касается зависимости от типа рефлекса, то наибольший вклад лоренцевой составляющей наблюдается для пиков МР-8 (комбинация $(1\bar{1}0\bar{1})/(1\bar{1}02)$) и МР-10 ($(3\bar{2}\bar{1}0)/(3\bar{2}11)$). С другой стороны, гауссова форма остается преобладающей для трехволновых рефлексов $(0\bar{1}\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$ (МР-3) и $(1\bar{1}00)/(1\bar{1}01)$ (МР-5). И если для наиболее узкого рефлекса МР-3 это более или менее объяснимо — влияние дефектов здесь минимально (см. выше), то для наиболее интенсивного и широкого пика МР-5 это выглядит странно. Возможное объяснение состоит в том, что краевые прорастающие дислокации, вносящие наибольший вклад в уширение этого трехволнового рефлекса, не дают лоренцевой составляющей.

Заключение

Таким образом, в работе проведено детальное изучение трехволновой дифракции в различных как по толщине, так и по структурному совершенству эпитаксиальных пленках GaN. Предварительно эти образцы были исследованы методом двухволновой дифракции и определены параметры их дефектной структуры. В трехволновом варианте были измерены диаграммы Реннингера на первичном запрещенном для вюрцитной структуры отражении 0001 и проанализированы интенсивность и угловая ширина трехволновых пиков как φ -, так и θ -сканирования. Для некоторых образцов наблюдалось расщепление пиков на диаграмме Реннингера (φ -сканирование), вызванное существованием в слоях крупных блоков, развернутых вокруг нормали к поверхности. Ухудшение структурного совершенства (увеличение плотности семейств дислокаций) приводит к уширению дифракционных пиков обеих мод сканирования. Наиболее чувствительной к плотности дислокаций

оказывается угловая ширина пиков θ -сканирования для трехволновых комбинаций $(3\bar{1}\bar{2}0)/(3\bar{1}21)$, $(1\bar{1}00)/(1\bar{1}01)$ и $(3\bar{2}\bar{1}0)/(3\bar{2}11)$ с чистой Лауэ-составляющей векторов обратной решетки вторичного отражения, а наименьшее воздействие структурные дефекты оказывают на полуширину θ -пиков для комбинации $(0\bar{1}\bar{1}3)/(0\bar{1}1\bar{2})$ с большой брэгговской составляющей для вторичного отражения. Сравнение параметров картин трехволновой и двухволновой дифракции показывает, что уширение пиков θ -моды трехволновых комбинаций не зависит от угла разворота вокруг нормали (twisting), но их полуширина растет с ростом полуширины θ -пиков симметричного брэгговского и лауэвского рефлексов в двухволновом варианте. К сожалению, из имеющихся данных нельзя сделать однозначного вывода о том, какие именно ансамбли дислокаций (вертикальные краевые, винтовые или горизонтальные дислокации) вносят наибольший или наименьший вклад в уширение тех или иных трехволновых рефлексов. Для этой цели требуется более широкий набор образцов с разными структурными характеристиками.

Автор выражает благодарность Ю.В. Жилиеву за предоставление образцов и Т.М. Антоновой за помощь в подготовке статьи.

Список литературы

- [1] *Renninger M.* // Z. Phys. 1937. Bd 106. S. 141.
- [2] *Cole H., Chambers F.W., Dunn H.M.* // Acta Cryst. 1962. Vol. 15. P. 138.
- [3] *Kottwitz D.A.* // Acta Cryst. 1968. Vol. A24. P. 117.
- [4] *Prager P.R.* // Acta Cryst. 1971. Vol. A27. P. 563.
- [5] *Chang S.L.* // Appl. Phys. Lett. 1980. Vol. 37. P. 819.
- [6] *Rossmann E.* // Acta Cryst. 2002. Vol. A58. P. 473.
- [7] *Rossmann E.* // J. Appl. Cryst. 2000. Vol. 33. P. 323.
- [8] *Sasaki J.M., Cardoso L.P., Campos C., Roberts K.J., Clark G.F., Pantos E., Sacilotti M.A.* // J. Appl. Phys. 1996. Vol. 79. P. 3492.
- [9] *Korytar D., Ferrary C., Bochnicek Z.* // J. Appl. Cryst. 1998. Vol. 31. P. 570.
- [10] *Freitas R.O., Lamas T.E., Quivy A.A., Morelhaio S.L.* // Phys. Status Solidi A. 2007. Vol. 204. P. 2548.
- [11] *Lei T., Ludwig K.F., Jr, Moustakas T.D.* // J. Appl. Phys. 1993. Vol. 74. P. 4430.
- [12] *Heying B., Wu X.H., Keller S., Li Y., Kaponek D., Keller B.P., DenBaars S.P., Speck J.S.* // Appl. Phys. 1996. Vol. 68. P. 643.
- [13] *Metzger T., Hopler R., Born E., Anbacher O., Stutzmann M., Stommer R., Schuster M., Gobel H., Christiansen S., Albrecht M., Strunk H.P.* // Phil. Mag. 1998. Vol. A77. P. 1013.
- [14] *Кюмм П.Н., Ратников В.В., Мосина Г.Н., Щеглов М.П.* // ФТТ. 1999. Т. 41. С. 30.
- [15] *Heinke H., Kirchner V., Selke H., Chierchia R., Ebel R., Einfeldt S., Hommel D.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. Vol. 34. P. A25.
- [16] *Ratnikov V.V., Kyutt R.N., Shubina T.V., Pashkova T., Monemar B.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. Vol. 34. P. A30.
- [17] *Sricant V., Speck J.S., Clarke D.R.* // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 82. P. 4286.

- [18] *Blasing J., Krost A.* // Phys. Status Solidi A. 2004. Vol. 201. P. 17.
- [19] *Blasing J., Krost A., Hertkorn J.* et al. // J. Appl. Phys. 2009. Vol. 105. P. 033 504.
- [20] *Ahe M. von der, Cho Y.S., Kaluza N.* et al. // Proc. 9th Biennial Conf. on High Resolution X-ray Diffraction and Imaging. Linz, Austria. 2008. P. 96.
- [21] *Кюмм Р.Н.* // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. Вып. 15. С. 14–20.
- [22] *Rossmannith E.* // Acta Cryst. 2007. Vol. A63. P. 251.