

## Измерение дифференциального и интегрального распределений диффузного рассеяния рентгеновских лучей от дефектов в тонких деформированных слоях

© Р.Н. Кютт

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 25 декабря 1996 г.)

Методы двух- и трехкристального дифрактометров были использованы для исследования структурного совершенства эпитаксиальной системы  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{Sb}_{1-y}\text{As}_y\text{-GaSb}$  ( $x = 0.9$ ,  $y = 0.8$ ) с толщиной пленки около  $1 \mu\text{m}$ . Показано, что рассеяние от образцов этой системы может быть разделено на когерентное и диффузное. Расположение узлов обратной решетки пленки и подложки на двумерном распределении интенсивности для асимметричных отражений показывает отсутствие релаксации упругих напряжений. Сетки дислокаций не образуется, а диффузное рассеяние обусловлено дефектами кулоновского типа. Из локализации диффузной интенсивности в обратном пространстве следует, что эти дефекты находятся в эпитаксиальной пленке. Для асимметричных отражений выявлен аномальный характер распределения диффузного рассеяния, вытянутого в направлении, параллельном поверхности, и расщепленного на два максимума. Предложены и реализованы схемы измерения интегрального распределения интенсивности дифракции вдоль поверхности и по нормали к ней и показаны ее возможности для изучения диффузного рассеяния от дефектов.

Рентгеновская дифрактометрия в последнее время широко используется для изучения структурных дефектов в различных гетероэпитаксиальных композициях [1–5]. При этом речь в основном идет о таких характерных нарушениях, как сетки дислокаций несоответствия и другие дислокационные ансамбли. Что касается трехмерно ограниченных дефектов, имеющих поля смещения кулоновского типа, то методика их исследования хорошо разработана лишь для объемных монокристаллов. Интенсивность рентгеновской дифракции от них может быть разделена на когерентную и диффузную компоненты. При этом основная информация о структуре дефектов, их типе, размерах, концентрации получается из анализа диффузного рассеяния (ДР) [6,7].

Экспериментально ДР наблюдалось и от дефектов, локализованных в тонких приповерхностных слоях, в частности, для ионно-легированных кристаллов после температурного отжига [8,9], а также для очень тонких эпитаксиальных пленок в начальной стадии образования дислокационных сеток [10,11].

Согласно общим представлениям, диффузное рассеяние от тонких слоев должно иметь особенности, не имеющие места для объемных монокристаллов. Во-первых, для нерелаксированных структур должна появиться анизотропия локальных полей деформации, обусловленная тангенциальными напряжениями в слое. Во-вторых, возможная релаксация на поверхности также может привести к перераспределению диффузной интенсивности [12]. В-третьих, при переходе от трехмерного кристалла к двумерному (при уменьшении толщины слоя) изменяется характер суммирования по ансамблю дефектов, что должно привести к изменению влияния полей смещений на интенсивность ДР. Поэтому экспериментальные исследования дефектов кулоновского типа должны представлять интерес для выявления характера ДР от тонких слоев.

В [13] было показано, что в пленках твердого раствора  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{Sb}_{1-y}\text{As}_y$  с составом, близким к  $\text{InAs}$  ( $x = 0.9$ ,  $y = 0.8$ ), даже при достаточно высоком уровне несоответствия  $((2-3) \cdot 10^{-3})$  образование дислокационной сетки для системы  $\text{GaInSbAs-GaSb}$  не характерно. Однако электронная микроскопия показывает наличие в них дефектов типа выделений, которые обусловлены частичным распадом твердого раствора. Поскольку в этой системе не происходит релаксация упругих напряжений, она является хорошим объектом для изучения ДР.

### 1. Методика

Эпитаксиальные пленки  $\text{InGaAsSb}$  на подложке  $\text{GaSb}$  были выращены методом жидкофазной эпитаксии, их толщина составляла величину порядка  $1 \mu\text{m}$ , поверхность была параллельной плоскостям (111).

Измерения проводились методами дифференциальной трехкристальной и интегральной двухкристальной дифрактометрии с использованием  $\text{Cu } K_\alpha$ -излучения как в симметричной, так и асимметричной брэгговской геометрии. В качестве монохроматора и анализатора использовались совершенные монокристаллы  $\text{Si}$  и  $\text{Ge}$ .

На основе трехкристальных измерений при помощи последовательной серии кривых  $\omega$ -сканирования, измеряемых при разных угловых положениях анализатора [5], были построены контуры равной интенсивности в плоскости рассеяния.

В трехкристальной дифференциальной схеме дифрагированная интенсивность при каждой паре значений углов  $\alpha$  и  $\eta$  ( $\alpha$  и  $\eta$  — соответственно отклонения угловых положений образца и анализатора от брэгговского угла, в нашем случае от  $\vartheta_B$  для пленки) суммируется по небольшой области в обратном пространстве около точки наблюдения. Размеры этой области обусловлены

конечной шириной углового разрешения монохроматора и анализатора.

В настоящей работе при анализе ДР измерялось также его интегральное распределение, получаемое по двухкристальной схеме. Цель такого интегрирования — увеличение полезного сигнала при сохранении высокого разрешения в интересующем нас направлении за счет суммирования по всем остальным. В двухкристальной дифрактометрии это может быть сделано по всем направлениям падающего или отраженного пучка. Соответственно, в обратном пространстве проводится интегрирование интенсивности перпендикулярно волновым векторам  $\mathbf{k}_0$  или  $\mathbf{k}_h$ . В стандартной двухкристальной схеме с кристаллом-монохроматором счетчик с открытым окном фиксирует все направления отраженного луча. При измерении симметричного брэгговского рефлекса перпендикуляр к  $k_h$  составляет угол  $\vartheta_B$  с вектором обратной решетки  $\mathbf{H}$  и не совпадает с характерными направлениями кристаллической структуры. С другой стороны, характерные особенности в распределении интенсивности дифракции от поверхностных структур и от дефектов в них привязаны или к направлению нормали к поверхности  $\mathbf{n}$ , или к вектору обратной решетки  $\mathbf{H}$  [14]. Для суммирования интенсивности в направлениях, перпендикулярном или параллельном поверхности, нужно использовать асимметричную геометрию дифракции с близкими к ним векторами  $\mathbf{k}_0$  и  $\mathbf{k}_h$ .

В настоящей работе для изучения интегрального распределения диффузной интенсивности используется асимметричное брэгговское отражение 115 от образца. Углы  $\vartheta_B$  и  $\varphi$  для GaSb таковы, что углы падения и отражения равны 2 и 80°. При этом из двух возможных геометрий (скользящий угол падения или скользящий угол отражения) предпочтительней первая. Для нее измеряемая интенсивность значительно больше за счет большего рассеивающего объема пленки:  $i \sim S_0 t / \sin \psi_0$  ( $S_0$  — поперечное сечение падающего на образец пучка,  $t$  — толщина пленки,  $\psi_0$  — угол падения относительно поверхности). Тогда, используя всю расходимость падающего пучка, мы интегрируем распределение интенсивности вдоль нормали, а фиксируя все направления дифрагированного пучка, — вдоль поверхности.

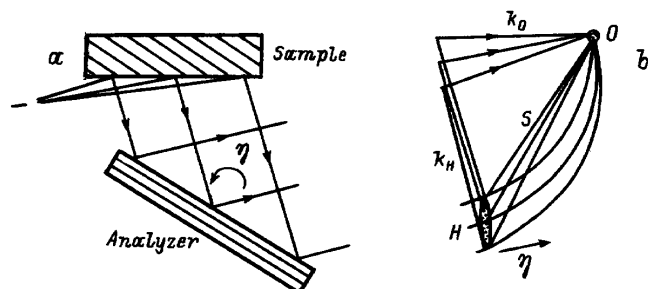


Рис. 1. Получение интегрального распределения интенсивности вдоль поверхности в асимметричной брэгговской геометрии. *a* — схема измерений, *b* — построение области наблюдения в обратном пространстве.

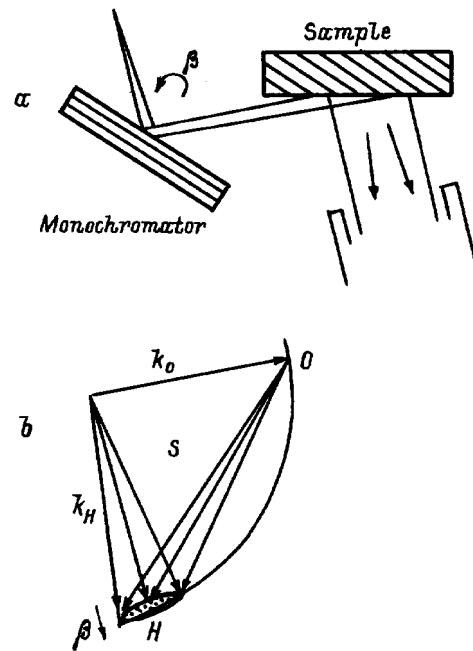


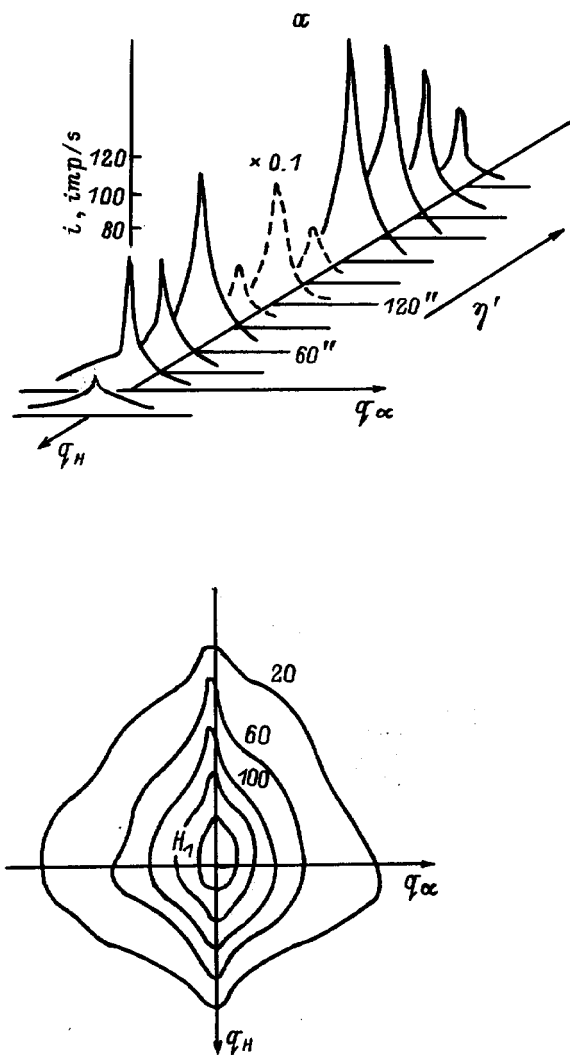
Рис. 2. Получение интегрального распределения интенсивности в направлении нормали к поверхности. *a* — схема измерений, *b* — построение области наблюдения в обратном пространстве.

В первом случае следует использовать схему, изображенную на рис. 1, *a*, в которой образец расположен на месте первого кристалла, а анализатор — на месте второго. Область наблюдения при фиксированных угловых положениях обоих кристаллов имеет вид полосы, вытянутой примерно по нормали к поверхности, как показано на рис. 1, *b*. При вращении анализатора ( $2\omega$ -мода сканирования) эта полоса смещается перпендикулярно  $\mathbf{k}_h$ , давая таким образом интегральное распределение интенсивности дифракции вдоль поверхности  $J(q_x)$ , где  $q_x$  — координата в плоскости рассеяния, параллельная поверхности и отсчитываемая от узла обратной решетки.

Зависимость интегральной интенсивности от координаты  $q_z$  (вдоль нормали  $\mathbf{n}$ ) получается в стандартной двухкристальной схеме с первым кристаллом — монохроматором и вторым — образцом (рис. 2, *a*), где детектор с широко открытым окном фиксирует все направления отраженного пучка. Сканирование осуществляется или посредством вращения монохроматора (по углу  $\beta$ ) (рис. 2, *a*), или образца. Область наблюдения вытянута вдоль поверхности (рис. 2, *b*), в процессе измерения она смещается параллельно  $\mathbf{n}$  или перпендикулярно  $\mathbf{H}$ .

## 2. Результаты

Из стандартных двухкристальных кривых отражения были получены значения разности в межплоскостных расстояниях пленки и подложки  $\Delta d/d$  от  $+1.1 \cdot 10^{-3}$  до  $+3 \cdot 10^{-3}$ . Трехкристальные измерения для симметрично-



**Рис. 3.** Трехкристальные кривые  $\omega$ -сканирования, измеренные при разных угловых положениях анализатора (a), и распределения интенсивности в плоскости рассеяния (b) для эпитаксиальной системы GaInSbAs–GaSb. Отражение 111, Cu  $K_{\alpha}$ -излучение.  $q_H$  и  $q_{\alpha}$  — оси, соответственно параллельная и перпендикулярная вектору дифракции  $H$ .

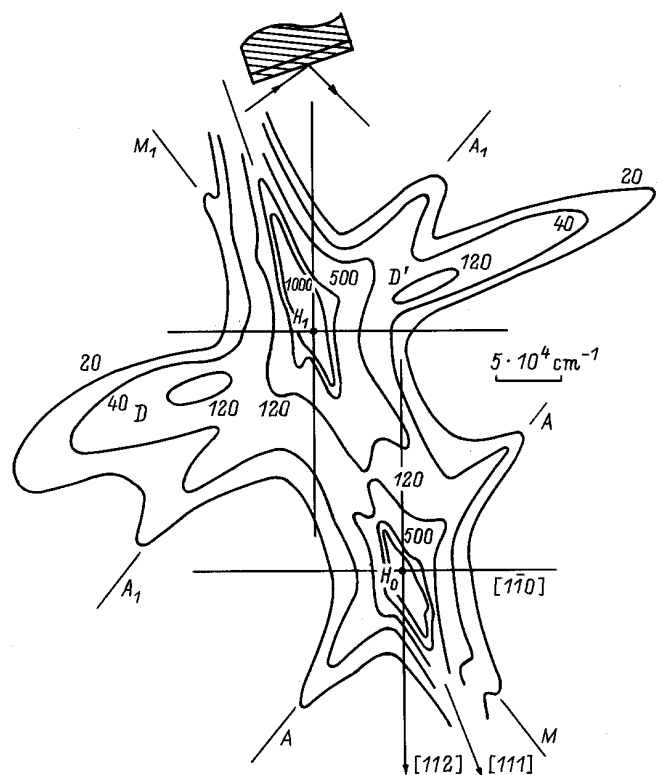
го рефлекса 111 показывают наличие как когерентного, так и диффузного рассеяния. На рис. 3, a показана серия кривых  $\omega$ -сканирования при разных угловых положениях анализатора, а на рис. 3, b приведено построенное распределение в плоскости рассеяния. Отсюда видно, что, во-первых, когерентное рассеяние идет не только от подложки, но и от пленки (наличие узких пиков на  $\omega$ -кривых), а во-вторых, диффузная интенсивность имеет максимальные значения около узла  $H_1$  пленки, т. е. вызывающие его дефекты находятся в эпитаксиальном слое.

Для этого же отражения посредством кривых  $2\omega$ -сканирования при разных угловых положениях  $\alpha$  образца была измерена интегральная интенсивность диффузного пика и построена ее зависимость от угла  $\alpha$ . Эта

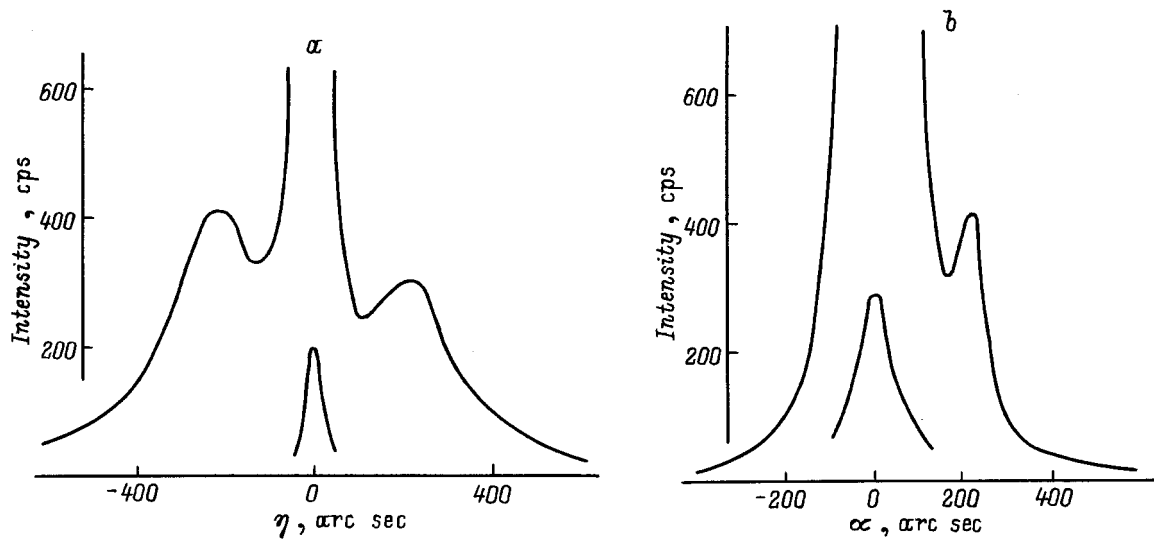
зависимость аналогична той, что должна иметь место для дефектов с кулоновским полем смещений [7]: интенсивность уменьшается как  $1/\alpha^2$  вдали от центра отражения с переходом к более медленному изменению в области близких углов.

Более интересная и нестандартная картина получается при переходе к асимметричным отражениям. На рис. 4 приведено распределение интенсивности в обратном пространстве, полученное из трехкристальных измерений отражения 224 для одного из образцов. Видно, что основная доля интенсивности локализована около двух узлов  $H_0$  и  $H_1$ , отвечающих брэгговским положениям подложки и пленки. Эти узлы находятся на линии, параллельной нормали к поверхности, что указывает на отсутствие релаксации в данной гетероструктуре (тангенциальное несоответствие межплоскостных расстояний  $(\Delta d/d)_{\parallel} = 0$ ). Контуры, вытянутые вдоль этого направления, — линии когерентной интенсивности. Стержни на распределении, обозначенные на рис. 4 как  $M-M$  и  $A-A$ , относятся к так называемым псевдопикам, обусловленным "хвостами" отражений монохроматора и анализатора [15].

Однако наряду с этими идентифицированными участками на карте контуров в плоскости рассеяния наблюдается интенсивность, которая, очевидно, и отвечает ДР. Но в отличие от 111-отражения (рис. 3, b), она вытянута в направлении, примерно параллельном поверхности образца, и имеет максимум не в узле  $H_1$  пленки, а



**Рис. 4.** Распределение интенсивности в плоскости рассеяния для асимметричного брэгговского отражения 224 со скользящим углом падения.



**Рис. 5.** Интегральное распределение интенсивности дифракции параллельно поверхности (*a*) и по нормали к ней (*b*) для образца эпитаксиальной системы GaInSbAs–GaSb, измеренное по схемам, приведенным на рис. 1, *a* и 2, *a* соответственно. Отражение 115, Cu  $K_{\alpha}$ -излучение.

локализована вокруг двух центров ( $D_1$  и  $D_2$  на рис. 4), находящихся с  $H_1$  примерно на одной линии, направленной перпендикулярно нормали  $\mathbf{n}$ . Это становится более очевидным при рассмотрении контуров, полученных для других геометрий образца (224 с  $\psi_0 > \psi_h$  и 115 с  $\psi_0 < \psi_h$ ), которые здесь не приводятся. При фиксированной системе осей в обратном пространстве  $q_h \parallel H$  и  $q_{\alpha} \parallel H$ , привязанной к вектору дифракции, эта линия поворачивается при переходе от одного отражения к другому вместе с нормалью к поверхности образца, оставаясь примерно перпендикулярной  $\mathbf{n}$ . Расстояние между двумя центрами локализации практически одинаково для отражений 115 и 224:  $\Delta q_x = (1.3-1.4) \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$ . Один из этих центров немного ближе к узлу  $H_1$ , и интенсивность вокруг него больше.

Такой анизотропный характер распределения диффузной интенсивности наглядно виден из кривых интегрального распределения. На рис. 5 представлены кривые, полученные для того же образца на асимметричном отражении 115 со скользящим углом падения ( $\psi_0 < \psi_h$ ) по схемам, приведенным на рис. 1, *a* и 2, *a* соответственно. Они показывают присутствие как когерентных пиков, так и диффузных хвостов. При этом на рис. 5, *a* виден один когерентный пик, а на рис. 5, *b* — два, что естественно, так как узлы  $H_0$  подложки и  $H_1$  пленки для нерелаксированной системы находятся на одной нормали к поверхности, а по схеме, показанной на рис. 1, *a*, мы измеряем интенсивность, проинтегрированную вдоль  $\mathbf{n}$ . Как и следует из дифференциального распределения, ДР спадает заметно медленнее на распределении интенсивности параллельно поверхности (рис. 5, *a*), причем на соответствующей кривой видны два четких максимума диффузной интенсивности.

Исследованные образцы давали разную степень интенсивности ДР. Последнюю можно характеризовать

величиной  $\Delta V$ , представляющей собой суммарный избыток единицы объема кристалла, обусловленный дефектами. Значение  $\Delta V$  определяется из интегрального ДР в асимптотической области, где интенсивность его пропорциональна  $1/\alpha^2$  [7]. С использованием измерений на отражении 111 для исследованных четырех образцов были получены следующие значения:  $\Delta V = 4.9 \cdot 10^{-4}$ ,  $1.4 \cdot 10^{-4}$ ,  $0.9 \cdot 10^{-4}$  и  $0.3 \cdot 10^{-4}$ . Очевидно, эта величина определяется как концентрацией, так и размером дефектов.

Приведенные выше распределения интенсивности в асимметричной геометрии относятся к образцу с наименьшим значением  $\Delta V$ . При переходе к более дефектным образцам не только увеличивается интенсивность ДР, но и усиливается асимметрия в его распределении вплоть до того, что для кристалла с наибольшим  $\Delta V$  оно оказывается локализованным только около одного из двух вышеуказанных центров.

Таким образом, измерения в асимметричной геометрии показали специфическую форму распределения ДР, растянутого параллельно поверхности и расщепленного на два узла. Обнаруженный аномальный характер распределения диффузной интенсивности не может быть связан с преломлением. Последнее, как известно, зависит от угла падения и отражения. Наш эксперимент, однако, показывает примерно одинаковое расстояние между центрами  $D$  и  $D'$  для асимметричных рефлексов 224 (соответствующие углы равны 18.7 и 57.5°) и 115 (2 и 80°).

Дефекты, вызывающие ДР, представляют собой, по электронно-микроскопическим данным, выделения другой фазы в твердом растворе InGaAsSb. Поскольку ДР локализовано вокруг узла, соответствующего среднему составу эпитаксиальной пленки, можно заключить, что оно обусловлено полями смещений вокруг выделений,

а не самими выделениями. Последние в таком случае могут рассматриваться как поры. Вносящие малый вклад в рассеяние по сравнению со смещениями окружающих атомов (согласно анализу, проведенному в соответствии с [16]).

Напомним, что ДР от изотропных дефектов в изотропном кристалле имеет распределение в виде двух окружностей, разделенных линией нулевой интенсивности, перпендикулярной вектору дифракции  $\mathbf{H}$  [6]. При этом, однако, интенсивность растет при приближении к узлу обратной решетки независимо от направления сканирования. Эти закономерности сохраняются и для кубического кристалла, хотя анизотропия несколько искажает симметричный характер распределения. Тем не менее оно остается привязанным к направлению  $H$  [6].

Анизотропия в распределении ДР может быть связана тогда с анизотропией полей смещений вокруг дефектов. В нашем случае явное растяжение изодиффузных контуров вдоль поверхности должно соответствовать тетрагональному характеру деформации. Другими словами, для дипольного тензора напряжений, создаваемых одним дефектом, компонента  $P_{xx}$  в тангенциальном напряжении должна быть больше, чем  $P_{zz}$  в нормальном. Это может быть связано с соответствующей формой самих выделений. Однако такая анизотропия должна иметь место и для дефектов сферической формы. Поскольку в результате когерентного сопряжения с подложкой ( $(\Delta d/d)_{\parallel} = 0$ ) пленка с большим параметром решетки находится в сжатом состоянии, искажения от дефектов не будут одинаковыми в нормальном и тангенциальном направлениях. В частности, выделения, имеющие больший параметр решетки по сравнению со средним по пленке, будут создавать большие деформации параллельно поверхности, чем перпендикулярно ей.

Однако эти рассуждения не объясняют расщепления диффузного распределения. Из наших данных следует, что два центра локализации ДР находятся на линии, параллельной поверхности, и расстояние между ними примерно одинаково для отражений 511 и 422, т.е. оно не связано ни с направлением, ни с величиной тангенциальной проекции вектора  $\mathbf{H}$  (последняя существенно отличается для указанных рефлексов). Появление двух диффузных максимумов ранее наблюдалось экспериментально [10] и подтверждается теоретически для сеток  $60^\circ$  дислокаций малой плотности, где оно вызвано наличием по-разному ориентированных искаженных областей в пленке для дислокаций с разным знаком проекции вектора Бюргерса  $b_z$ . Однако это расщепление должно происходить в направлении  $H$ , что противоречит нашим данным. Кроме того, электронная микроскопия не выявила присутствия дислокаций несоответствия в наших образцах. Расщепление ДР наблюдалось и для металлических сплавов, при этом оно связывалось с образованием обогащенных и обедненных одним из элементов зон в процессе старения. Однако и в этом случае оно должно изменяться вместе с направлением дифракционного вектора.

Появление двух максимумов-сателлитов на распределении интенсивности в направлении, параллельном поверхности, может быть связано с периодической структурой в этом направлении, что наблюдается для тангенциальных наноструктур [17,18]. Но тогда расстояние между максимумами определяется периодом этой структуры, и они должны были бы фиксироваться также и для рефлекса 111. При этом на соответствующих кривых  $\omega$ -сканирования оно должно быть больше, чем на интегральных кривых, приведенных на рис. 5, а для рефлекса 115.

Вероятно, необычный характер распределения ДР связан как со структурой образующихся дефектов, так и с анизотропией деформационных полей в нерелаксированной эпитаксиальной пленке, но только теоретические расчеты ДР с учетом всех влияющих на поля смещения факторов позволят дать ясный ответ на этот вопрос.

Анализ интенсивности диффузного рассеяния для разных отражений убедительно показывает преимущества измерений в асимметричном отражении со скольльзящим углом падения, поскольку именно такая геометрия дифракции для образца позволяет максимально увеличить фиксируемый сигнал. Последнее особенно важно при слабом ДР и тонких слоях. Переход к интегральной схеме измерения приводит к еще большему увеличению измеряемой интенсивности по сравнению с дифференциальной схемой. Напомним, что интенсивность дифракции в максимуме отражения слоя пропорциональна  $t^2$  и сильно уменьшается при переходе к очень тонким слоям как за счет уменьшения рассеивающего объема, так и за счет растяжения контуров распределения интенсивности вдоль нормали  $n$ . Это делает фиксируемый сигнал очень слабым как в дифференциальной трехкристальной схеме, так и на двухкристальных кривых в симметричной брэгговской геометрии. С другой стороны, падающий непосредственно на образец расходящийся пучок по схеме, приводимой на рис. 1, а, позволяет захватить всю область углов, в которой происходит отражение от тонкого слоя. Таким образом, измеряемая интенсивность становится пропорциональной только первой степени толщины и появляется возможность измерения рассеяния и изучения степени структурного совершенства очень тонких слоев в несколько нанометров.

Таким образом, в работе получены следующие основные результаты: 1) показано, что для эпитаксиальной системы GaInSbAs–GaSb интенсивность дифракции может быть разделена на когерентную и диффузную; 2) по локализации ДР определено, что вызывающие его дефекты находятся в эпитаксиальном слое; 3) обнаружен аномальный характер распределения диффузной интенсивности с преимущественным направлением вдоль поверхности и расщеплением на два подузла; 4) реализованы способы измерения интегрального распределения ДР и показаны его преимущества.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант 96-02-16907а).

**Список литературы**

- [1] P.H. Кютт, Т.С. Аргунова. ФТТ **31**, 1, 40 (1989).
- [2] P.F. Fewster. J. Appl. Cryst. **24**, 2, 178 (1991).
- [3] V. Holy, J. Kubena, E. Abramov, K. Lischka, A. Pezek, E. Koppensteiner. J. Appl. Phys. **74**, 3, 1736 (1993).
- [4] P.F. Fewster, N.L. Andrew. J. Appl. Phys. **74**, 3121 (1993).
- [5] R.N. Kyutt, S.S. Ruvimov, T.S. Argunova. J. Appl. Cryst. **28**, 6, 700 (1995).
- [6] P.H. Dederichs. J. Phys. F: Metal Phys. **3**, 3, 471 (1973).
- [7] B.C. Larsson. J. Appl. Cryst. **8**, 150 (1975).
- [8] P. Zaumseil, U. Winter, F. Cembali, M. Servidori, Z. Sourek. Phys. Stat. Sol. (a) **100**, 1, 95 (1987).
- [9] P. Zaumseil, U. Winter. Phys. Stat. Sol. (a) **120**, 1, 67 (1980).
- [10] P. Kidd, P.F. Fewster, N.L. Andrew. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, 4A, 133 (1995).
- [11] M.S. Gorski, M. Meshkinpous, D.C. Streit, T.R. Block. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, 4A, A92 (1995).
- [12] А.Ю. Белов, В.М. Каганер. Металлофизика **9**, 4, 79 (1987).
- [13] Т.С. Аргунова, А.Н. Баранов, С.С. Рувимов, Л.М. Сорокин. ФТТ **31**, 8, 158 (1989).
- [14] P.H. Кютт, Л.М. Сорокин, Т.С. Аргунова, С.С. Рувимов. ФТТ **36**, 2700 (1994).
- [15] A. Iida, K. Kohra. Phys. Stat. Sol. (a) **51**, 2, 533 (1979).
- [16] М.А. Кривоглаз. Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов реальными кристаллами. Наука, М. (1967).
- [17] L. Tapfer, P. Sciacovelly, L. DeCaro. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, 4A, 179 (1995).
- [18] A.A. Darhuber, E. Koppensteiner, G. Bauer, P.D. Wang, C.M.S. Torres, M.C. Holland. J. Phys. D: Appl. Phys. **28**, 4A, 195 (1995).