

03,13

Рентгенодифракционное определение степени упорядочения твердого раствора в эпитаксиальных слоях AlGaN

© Р.Н. Кютт^{1,2}, С.В. Иванов¹

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: r.kyutt@vail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 21 мая 2014 г.)

По схеме Реннингера измерена трехволновая дифракция в эпитаксиальных слоях твердого раствора $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Из сравнения с аналогичными диаграммами, измеренными ранее для слоев GaN и AlN, следует, что кривые для твердого раствора показывают заметно большую интенсивность в области азимутальных углов вне трехволновых пиков. Это указывает на существование двухволнового брэгговского отражения 0001, запрещенного для вюрцитных структур. Показано, что его появление связано с частичным упорядочением твердого раствора в слоях $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Из полученных экспериментально значений структурного фактора $F(0001)$ для слоев с разной концентрацией Al следует, что степень упорядочения (избыток Al в одной из катионных плоскостей AlGa и недостаток в другой) для данной серии образцов практически не зависит от состава слоя твердого раствора.

Трехволновая дифракция, измеряемая по методу Реннингера, базируется обычно на первичном запрещенном отражении с нулевым структурным фактором. Диаграмма Реннингера представляет собой серию трехволновых пиков, угловое положение которых определяется азимутальным углом поворота образца. В работах последних лет [1–5] были экспериментально измерены диаграммы Реннингера для эпитаксиальных слоев АІІ-нитридов (GaN, AlN и твердого раствора AlGaN). В настоящей работе проведен сравнительный анализ этих диаграмм и обнаружено наличие ненулевого запрещенного отражения.

Экспериментальные измерения были проведены на двухкристальном дифрактометре с использованием CuK_α -излучения. Монохроматором служил кристалл Ge в симметричном брэгговском отражении 111, первичная интенсивность (после монохроматора) составляла $4 \cdot 10^6$ imp/s. Измерялись кривые как азимутального φ -сканирования (диаграммы Реннингера), так и θ -сканирования около φ -положения трехкристальных пиков.

Эпитаксиальные слои АІІ-нитридов были выращены на *c*-сапфире методом МВЕ и MOVPE. Для образцов с $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ концентрация Al варьировалась от $x = 0.065$ до 0.41.

На рис. 1 показаны участки диаграмм Реннингера около самого интенсивного трехволнового пика $(10\bar{1}0)/(\bar{1}011)$ для трех образцов с пленками GaN, AlN и AlGaN. Разная интенсивность самих трехволновых пиков вызвана в основном различной толщиной слоев. Однако самое главное заключается в другом. Вне пиков фоновая интенсивность для слоя твердого раствора в 1.5 раза больше, чем для слоев AlN и GaN. Поскольку физических оснований для простого повышения фона в данном случае нет, можно сделать вывод, что эта интенсивность обусловлена двухволновым отражением 0001.

Это подтверждается кривыми θ -сканирования, которые были измерены как в положении трехволнового пика $(10\bar{1}0)/(\bar{1}011)$, так и при углах φ , далеких от этого положения ($3\text{--}4^\circ$) (рис. 2, *a, b*). Видно, что в положении фона также наблюдается четкий θ -пик, который и принадлежит дифракционному отражению 0001, запрещенному для структур типа вюрцита.

Отметим, что угловая ширина θ -пика в азимутальном положении трехволнового максимума значительно больше. Большее уширение трехволновых θ -пиков по сравнению с двухволновыми имеет место практически для всех трехволновых комбинаций в большинстве эпитаксиальных слоев АІІ-нитридов и частично объясняется траекторией пересечения узла обратной решетки вторичного отражения сферы Эвальда (см. рис. 5 в работе [5]).

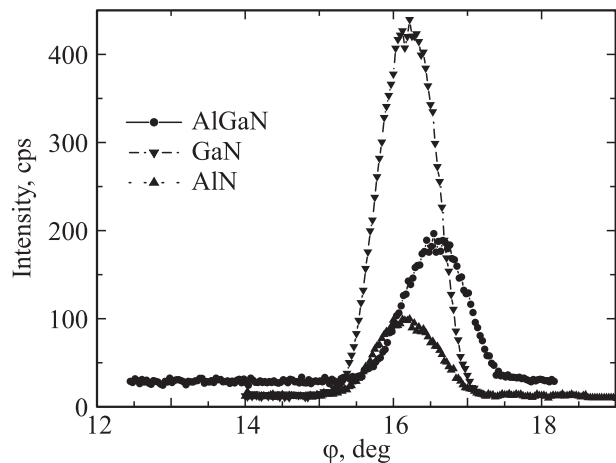


Рис. 1. Участок диаграммы Реннингера около самого интенсивного трехволнового рефлекса $(10\bar{1}0)/(\bar{1}011)$ для слоев GaN, AlN и $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$.

Запрещенные отражения в эпитаксиальных пленках $Al_xGa_{1-x}N$

Номер образца	$x(Al)$	$w(0002)$, ''	$w(\theta)$, ''	$w(\theta)$ (на фоне), ''	$R_i(0002)$	Толщина слоев исходя из значений $R_i(0002)$, μm	$R_i(0001)$	$F(0001)$	$\delta(Al)$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
1057	0.33	720	4500	1370	$6 \cdot 10^{-5}$	0.4	$5.6 \cdot 10^{-9}$	0.25	0.008
1016	0.41	1290	3800	2230	$3.6 \cdot 10^{-5}$	0.25	$8.8 \cdot 10^{-9}$	0.40	0.013
1058	0.06	870	4420	878	$5.1 \cdot 10^{-4}$	5	$4.3 \cdot 10^{-8}$	0.23	0.008

Примечание. w — угловые полуширины дифракционных пиков θ -сканирования: двухволнового симметричного брэгговского отражения 0002 (столбец 3), трехволновой комбинации $(10\bar{1}0)/(1011)$ (столбец 4) и измеренного на фоновой интенсивности (столбец 5).

Что касается пика запрещенного отражения, то он ни по ширине, ни по форме не отличается от обычных дифракционных максимумов θ -сканирования для симметричных двухволновых брэгговских отражений. Причиной такого уширения являются локальные развороты кристаллографических плоскостей вокруг осей, парал-

лельных поверхности, обусловленные прямолинейными прорастающими винтовыми дислокациями [6].

В свою очередь появление запрещенного 0001-отражения свидетельствует о частичном упорядочении твердого раствора $Al_xGa_{1-x}N$. В общем виде структурный фактор для неупорядоченного твердого раствора $Al_xGa_{1-x}N$ с вюрцитной структурой для отражения с индексами Миллера $hk.l$ будет равен

$$F = \left[1 + \exp(\pi il) \exp\left(\frac{2}{3} \pi i(h - k)\right) \right] \times \left[f_{AlGa} + f_N \exp\left(\frac{3}{4} \pi il\right) \right].$$

В такой записи все катионные плоскости AlGa одинаковы по составу

$$f_{AlGa} = f_{Al}x + f_{Ga}(1 - x),$$

и отражение 0001 является запрещенным ($F = 0$).

При частичном упорядочении для катионных плоскостей AlGa в вюрцитной элементарной ячейке AB (по терминам плотной упаковки) плоскости A и B не будут эквивалентны по составу, одна из них испытывает дефицит Al ($-\delta x$), а другая — его избыток δx . В этом случае структурный фактор 0001-отражения будет равен

$$F(0001) = f_A - f_B = (f_{Ga} - f_{Al})2\delta x.$$

Таким образом, наличие запрещенного отражения 0001 должно свидетельствовать о частичном упорядочении твердого раствора $Al_xGa_{1-x}N$. Если рассматривать элементарную ячейку такой структуры, то это значит, что соседние атомные плоскости AlGa уже не являются одинаковыми, но в одной из них имеет место излишек Al по сравнению с его средним значением x , а в другой — такой же недостаток.

Для количественного вычисления излишка Al в одной из атомных плоскостей в работе было использовано отношение интегральных интенсивностей двух брэгговских симметричных рефлексов: 0002 и 0001. Поскольку полуширина двухкристалльных пиков от исследованных слоев приближалась к $1000''$, интенсивность дифракции

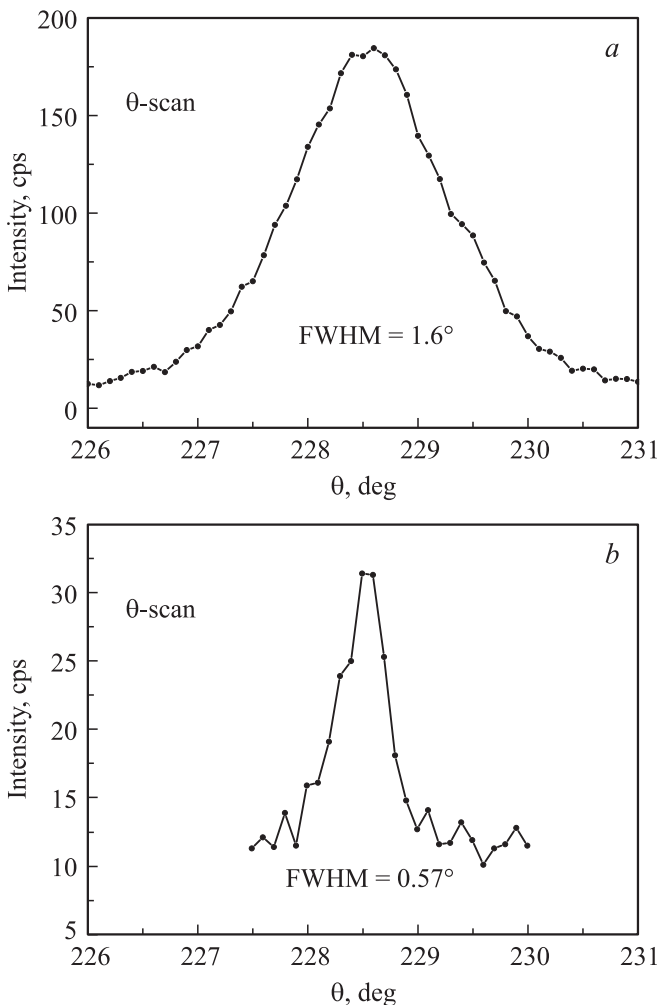


Рис. 2. Пики θ -сканирования для слоя $Al_xGa_{1-x}N$ при азимутальном положении на трехволновом пике (a) и вдали от него (b).

можно выразить в ее кинематическом пределе и выражение для интегральной интенсивности R_i записать в виде

$$R_i = (e^2/mc^2)^2 |F|^2 e^{-2M} \frac{\lambda^3}{v^2 \sin(2\theta)} \frac{1}{2\mu} (1 - e^{-2\mu t / \sin \theta}).$$

Здесь F — структурный фактор, t — толщина слоя, θ — брэгговский угол, μ — коэффициент поглощения, v — объем элементарной ячейки. Из этих параметров F , θ и μ являются функцией состава x . Из отношения $R_i(0001)/R_i(0002)$ получаем отношение структурных факторов $F(0001)/F(0002)$ и, так как $F(0002)$ не зависит от степени упорядочения, определяем структурный фактор запрещенного отражения 0001.

Тогда возникает вопрос: зависит ли этот недостаток (излишек) от средней концентрации Al в твердом растворе или является величиной постоянной? В таблице приведены полученные рентгенодифракционные данные для трех образцов с пленками $Al_xGa_{1-x}N$ разного состава. Видно, что, хотя угловая полуширина θ -пика, измеренного вдали от трехкристалльных условий, т.е. от запрещенного отражения, и больше, чем для разрешенного отражения 0002, она значительно меньше величины, полученной для самого трехволнового пика. Кроме того, для образцов 1057 и 1016 она частично объясняется малой толщиной слоев (вкладом размерного уширения). Что касается разной интенсивности, то она вполне может быть объяснена различной толщиной слоев.

В последнем столбце таблицы приведены вычисленные из экспериментальных данных значения величины δx , т.е. избытка и недостатка Al в соседних атомных слоях. Из таблицы следует, что она примерно равна для всех трех образцов и составляет величину около 1%, т.е. практически не зависит от состава слоя (содержания $x(Al)$). Это довольно неожиданный результат, который, разумеется, нуждается в подтверждении при измерениях для серий образцов, выращенных другими методами.

Таким образом, с помощью измерений трехволновой дифракции показано существование ненулевого отражения 0001 для эпитаксиальных слоев $Al_xGa_{1-x}N$, запрещенного в структурах типа вюрцита, что указывает на частичное упорядочение твердого раствора. Вычисленные из экспериментальных данных значения степени упорядочения (избытка-недостатка Al) показывают его независимость от состава слоя $Al_xGa_{1-x}N$ (т.е. от содержания Al в твердом растворе).

Список литературы

- [1] J. Bläsing, A. Krost. Phys. Status Solidi A **201**, R17 (2004).
- [2] Р.Н. Кютт. Письма в ЖТФ **36**, 15, 14 (2010).
- [3] Р.Н. Кютт. ЖТФ **81**, 5, 81 (2011).
- [4] R.N. Kyutt, M.P. Scheglov. Phys. Status Solidi C **10**, 476 (2013).
- [5] R.N. Kyutt, M.P. Scheglov. J. Appl. Cryst. **46**, 861 (2013).
- [6] V.V. Ratnikov, R.N. Kyutt, T.V. Shubina, T. Pashkova, B. Monemar. J. Phys. D **34**, A30 (2001).