

06

Комплексное использование дифракционных методов при профилировании по глубине параметра кристаллической решетки и состава градиентных слоев InGaAs/GaAs

© М.В. Байдакова^{1,2}, Д.А. Кириленко^{1,2}, А.А. Ситникова¹,
М.А. Яговкина¹, Г.В. Климко¹, С.В. Сорокин¹,
И.В. Седова¹, С.В. Иванов¹, А.Е. Романов^{1,2}

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

² Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики (Университет ИТМО)
E-mail: baidakova@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 21 октября 2015 г.

Предложен метод диагностики толстых ($1\ \mu\text{m}$ и более) градиентных слоев с переменным составом и степенью релаксации по глубине слоя, основанный на анализе карт рассеянной рентгеновской интенсивности в обратном пространстве в сопоставлении с профилированием параметров кристаллической решетки по глубине методом электронной микродифракции. Информативность предложенной диагностики продемонстрирована на примере слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с линейным изменением x по глубине. Комплексное представление дифракционных данных в виде профилированной по глубине карты обратного пространства позволяет учесть дополнительную релаксацию, возникающую при утонении образцов для электронно-микроскопических исследований.

Получение зависимости параметров элементарной ячейки слоя (a) от глубины его залегания в структуре (профилирование параметра решетки по глубине) важно при решении ряда технологических задач, связанных, например, с созданием метаморфных малодефектных темплейтов с параметрами (a), промежуточными относительно значений a соединений A^3B^5 , обычно используемых в качестве метаморфных подложек. Применение концепции метаморфного роста позволяет значительно улучшить характеристики гетероструктур, выращиваемых на

рассогласованных подложках, а также расширить функциональные возможности для конструирования зонной структуры в целях разработки новых типов приборных гетероструктур.

Наиболее часто используемые методы измерений параметров решеток слоев основываются на анализе картины дифракции, представляющей собой отображение распределения интенсивности рассеяния электронов или рентгеновских лучей в обратном пространстве в координатах волновых векторов [1-4]. Следуя [2,4], введем лабораторную систему координат $x-z$ так, что на картине дифракции несоответствие в вертикальном параметре решетки проявляется в разделении вдоль оси q_z пиков в обратном пространстве, связанных со слоем и подложкой (Δq_z), а несоответствие в латеральном параметре решетки (Δq_x) измеряется вдоль q_x . Анализ картин дифракции позволяет определять безразмерное несоответствие параметров решеток слоя и подложки (m), выражаемое в терминах латерального (a^{\parallel}) и вертикального (a^{\perp}) параметров решеток слоя как

$$\Delta q_x/q_x = m^{\parallel} = (a^{\parallel} - a_s)/a_s, \quad \Delta q_z/q_z = m^{\perp} = (a^{\perp} - a_s)/a_s. \quad (1)$$

Здесь a_s — параметр решетки подложки (в нашем случае кубической).

Отметим, что ненулевое значение несоответствия латерального параметра решетки m^{\parallel} является прямым указанием на появление релаксации упругих напряжений в структуре. Релаксация R определяется как $R = (a^{\parallel} - a_s)/(a_l - a_s)$, где a_l — равновесный (ненапряженный) параметр (кубической) решетки слоя состава x . Введем параметр $\gamma = 1 - R$ и константу D_i , описывающую отношение вертикальной и латеральной деформаций частично когерентного слоя так, что $\gamma = (m^{\perp} - m^{\parallel})/(m^{\perp} + D_i m^{\parallel})$. В нашем случае кубической структуры D_i в направлении $[001]$ выражается через коэффициент Пуассона слоя ν : $D_{001} = -2\nu/(1 - \nu)$ [2,4]. Основываясь на законе Вегарда, для слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ запишем $x = (a_l - a_s)/\Delta a_{is}$ и $m^{\perp} = \{x\Delta a_{is}/a_s\}(1 + D_i\gamma)$, где $\Delta a_{is} = a_{\text{InAs}} - a_{\text{GaAs}}$. Таким образом, частично релаксированный слой отображается на дифракционной картине в виде отстоящего от пятна подложки рефлекса, определив координаты которого и используя соотношения (1), можно рассчитать R и x :

$$R = 1 - \gamma = 1 - (m^{\perp} - m^{\parallel})/(m^{\perp} + D_i m^{\parallel}), \quad x = m^{\perp*} a_s / (\Delta a_{is}^* (1 + D_i \gamma)). \quad (2)$$

Задачей данной работы являлась демонстрация возможности профилирования параметров решетки по глубине градиентных слоев и получения количественной информации об изменении x и R в них с помощью комплекса дифракционных методов, включающего в себя электронную микродифракцию (ЭМ) и рентгеновскую дифрактометрию (РД). Данный комплекс методов был выбран потому, что методом ЭМ можно непосредственно наблюдать изменение параметров решетки слоя по толщине с точностью до $\Delta a/a = 5 \cdot 10^{-4}$ и пространственным разрешением до 10 nm. Однако в случае напряженных структур на точность измерений оказывает влияние изменение напряжений, возникающее при получении тонких срезов образцов (около 100 nm), используемых в просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). В отличие от методов ПЭМ, метод РД является неразрушающим и при правильном выборе моды сканирования позволяет характеризовать напряжения и определять состав слоев с высокой точностью [4,5]. В комплексе методы ЭМ и РД обеспечивают получение полной и достоверной информации об изменениях с глубиной таких параметров слоя, как a^{\parallel} и a^{\perp} , x и R .

Предложенный диагностический подход апробирован на структуре $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (001), выращенной методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) [6]. На рис. 1, *a* приведена ПЭМ-микрофотография метаморфного буферного слоя (МБС) $1\mu\text{m-In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с линейным профилем изменения состава, зарощенным слоем $1\mu\text{m-In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ постоянного состава.

Картины ЭМ были получены с использованием просвечивающего электронного микроскопа Jeol JEM-2100F. Типичная картина ЭМ приведена на вставке на рис. 1, *a*. Анализировалась серия картин ЭМ от различных точек структуры, расположенных от подложки до поверхности, в них по расстоянию между отражениями (002) и (00 $\bar{2}$) было определено a^{\parallel} , а по расстоянию между отражениями (220) и ($\bar{2}\bar{2}0$) определено a^{\perp} . На основании этих данных были построены профили изменения несоответствия параметров решеток m^{\perp} и m^{\parallel} по глубине (m -профили) (рис. 1, *b*). Данные m -профили наглядно иллюстрируют увеличение параметра решетки с ростом содержания индия, включая скачок при переходе от МБС к верхнему слою, так называемую „обратную ступень“ [6], а также вариации R , проявляющейся в разности между двумя параметрами. С увеличением глубины залегания области слоя в структуре (t) m^{\parallel} -профиль идет горизонтально вдоль линии напряжений

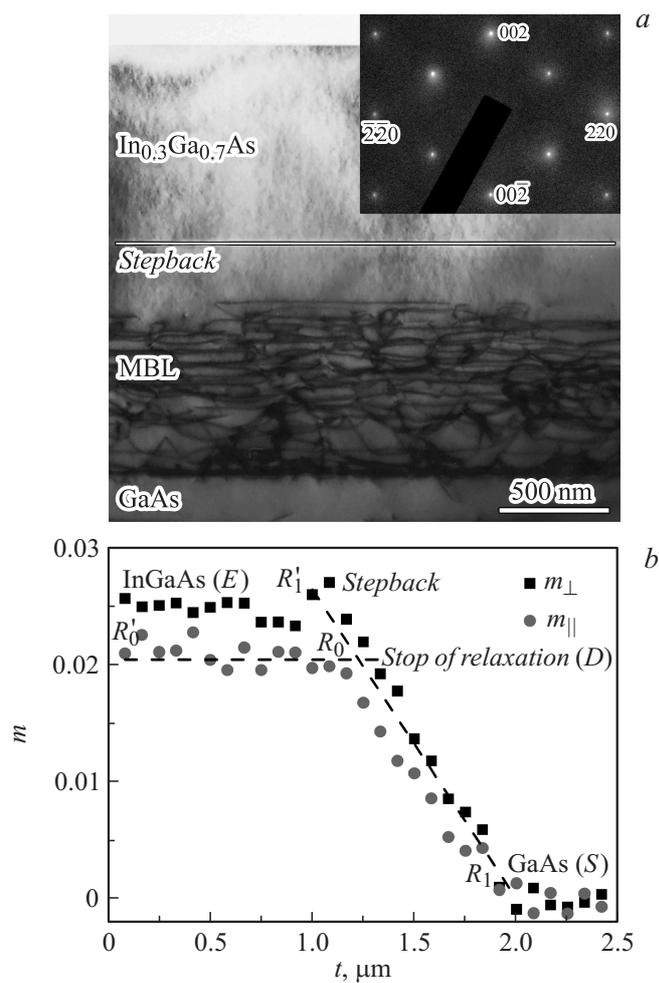


Рис. 1. Изображение поперечного сечения, полученное методом ПЭМ с использованием рефлекса $g = (002)$ с характерной картины ЭМ, представленной на вставке (a), и m -профили (b) для структуры с МБС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. На графике (b) показаны линии напряжений для участков слоя переменного состава x : для $R = 0$ (R_0R_0') и $R = 1$ (SR_1R_1').

для $R = 0$, а затем демонстрирует плавное уменьшение значения m^{\parallel} , следуя вдоль линии для $R = 1$. Точка перелома, отмеченная на рис. 1, b как D , соответствует локальному участку МБС на границе дефектной и бездефектной напряженной области [7].

Картина дифракции рентгеновских лучей, или карта обратного пространства (reciprocal space map — RSM), в координатах волновых векторов q_x и q_z в области асимметричного отражения (224) подложки GaAs в геометрии „скользящего падения“ была получена на рентгеновском дифрактометре D8 Discover (Bruker-AXS, Германия). Построение RSM проводилось с использованием программного пакета Leptos фирмы Bruker. Подробный анализ RSM с описанием всех особенностей, обычно наблюдаемых при использовании трехкристальной геометрии, дан, например, в [3,4,6].

На RSM (рис. 2) пик S в верхнем левом углу карты, представленный набором вложенных друг в друга практически сферических линий равной интенсивности, отвечает максимуму подложки. Остальные, менее интенсивные пики отвечают максимумам от МБС (C, D) и верхнего слоя (E) соответственно. Появление на RSM нескольких пиков от МБС мы связываем с реализацией в нем ступенчатого механизма релаксации [6,7].

Определение из RSM локального состава x в МБС и R этого слоя относительно подложки удобно проводить геометрически, строя так называемый „треугольник релаксаций“ [1,2]. Это построение основывается на том, что координаты (q_x, q_z) рефлекса полностью релаксированного или решеточно-согласованного (когерентного) с подложкой слоя известного состава x могут быть вычислены из выражений (1), (2), так как в первом случае $a^{\parallel} = a_l$ и $R = 1$, тогда как для слоя, когерентного к подложке, $a^{\parallel} = a_s$, $R = 0$ и $m^{\parallel} = 0$. На рис. 2 линия SR_1 представляет положения максимумов от свободно стоящих слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с $R = 1$ при последовательном увеличении концентрации In в них (параметра x), а линия SR_0 — для слоев с $R = 0$, когерентных к подложке GaAs. Линия, соединяющая на осях SR_0 и SR_1 точки с равными концентрациями, называется „линией релаксации“. На рис. 2 показана „линия релаксации“, для $x = 0.083$, завершающая построение „треугольника релаксаций“ $SR_0C R_{1c}$ для области C . Релаксация R определяется отношением длин отрезков $|R_{0c}C|/|R_{0c}R_{1c}|$, составляющим ≈ 0.6 в данном случае.

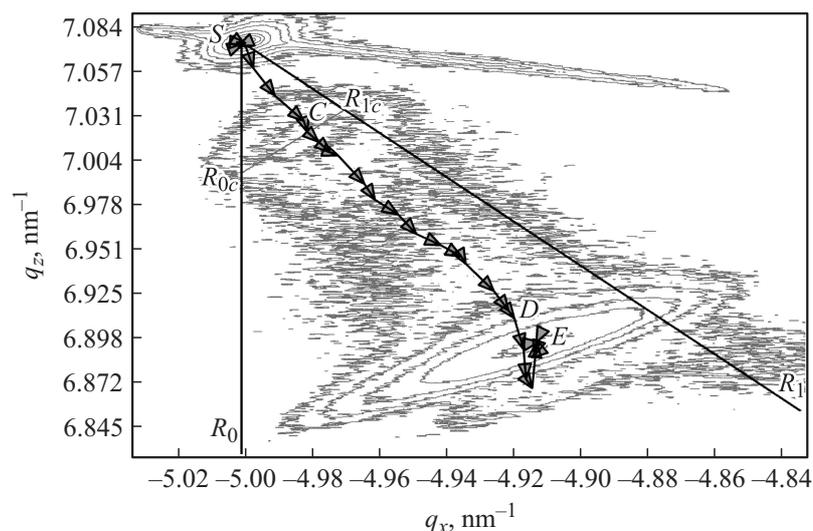


Рис. 2. DpRSM-карта вокруг узла (224) GaAs для структуры с рис. 1, *a*. На ней RSM представлена изолиниями равной интенсивности, *m*-профиль с шагом 50 nm показан стрелками, ориентированными в направлении увеличения толщины пленки. Треугольник SR_0R_{1c} — „треугольник релаксации“ для области *C* ($x = 0.083$). Обозначение линий напряжений и областей *S*, *D* и *E* соответствует приведенным на рис. 1, *b*. Для наглядности DpRSM часть точек *m*-профиля вблизи подложки *S* и слоя *E* не приводится.

Для сопоставления дифракционных данных ЭМ и РД отобразим ход *m*-профилей на RSM. Поскольку RSM является двумерной картиной, на ней точкой с определенными из *m*-профилей координатами (q_{xi} , q_{zi}) можно отобразить область МБС с локальным составом x_i , залегающего на глубине t_i (рис. 2). Полученная в результате такого построения профилированная по глубине карта обратного пространства (depth profiled RSM — DpRSM) для структуры с $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ приведена на рис. 2. Из рис. 2 видно, что *m*-профиль проходит практически параллельно оси SR_1 начиная с точки *C*, что характерно для частично релаксированного МБС с плавным профилем изменения состава. В окрестности точки *D* ход *m*-профиля изменяется: профиль идет параллельно оси SR_0 , что указывает на изменение релаксации в приповерхностной области МБС

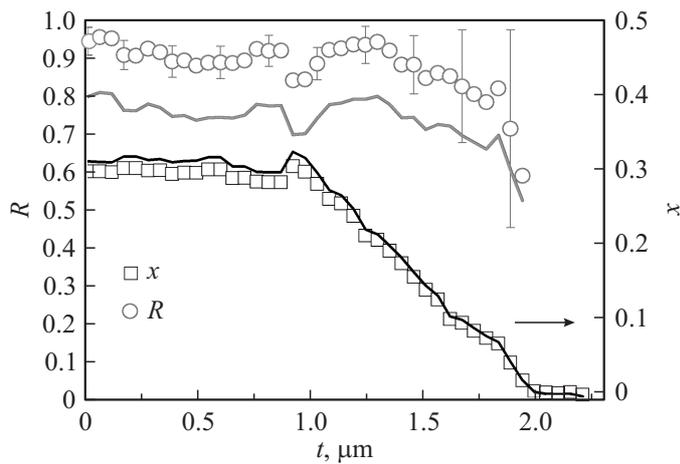


Рис. 3. Зависимости концентрации x и релаксации R от положения слоя по глубине t для структуры с рис. 1, a , полученные путем расчета по формулам (1), (2) из данных m -профилей (\square и \circ) и из DpRSM-карты путем геометрических построений (сплошные линии).

и когерентность объемного слоя $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ к этой части МБС. Особенно наглядно ход m -профиля отражает скачок содержания индия x в области $D-E$, характерный при формировании „обратной ступени“. То, что максимум E располагается внутри „треугольника релаксации“, свидетельствует о неполной релаксации слоя $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ относительно подложки и наличии в нем остаточных напряжений, индуцируемых МБС.

Отметим, что количество соединяющих точки m -профиля отрезков при переходе от одного участка МБС к другому (рис. 2) определяет глубину залегания отмеченных на DpRSM-карте областей, тогда как их длина отражает изменение значений x и R . Так, из рис. 2 видно, что области C соответствует частично релаксированный участок МБС толщиной 300–400 нм. Построение „треугольников релаксации“ для участков МБС около максимума C позволяет определить, что локальная концентрация x при переходе от подложки к области C скачком достигает значения $x \approx 0.07$ и далее плавно нарастает так, что ее среднее значение составляет $x \approx 0.083$. Между этой областью и подложкой

не наблюдается каких-либо переходных участков МБС, что хорошо соответствует первой технологически задаваемой ступени изменения состава твердого раствора.

На рис. 3 для исследованной структуры с МБС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ представлены зависимости параметров x и R от глубины залегания слоя t , полученные из анализа DpRSM, в сравнении с данными, полученными прямыми вычислениями по формулам (2) из данных ЭМ. Как видно из рис. 3, вид зависимостей подобен, но при малых изменениях релаксации данные, получаемые расчетным путем, имеют большие ошибки. Более того, при использовании данных только метода ЭМ полученные значения R оказываются завышенными из-за релаксации, возникающей в тонких образцах, используемых для ПЭМ. Отметим, что в результате расчетные значения x для верхнего слоя оказываются заниженными более чем на 0.02 относительно истинных величин.

Подводя итог, отметим, что пример диагностики путем построения DpRSM-карты метаморфного буферного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с линейным изменением состава x по глубине демонстрирует наглядность предложенного метода, достоверность полученных результатов. Поскольку предложенный метод базируется на хорошо разработанных методах РД и ЭМ, то пути повышения точности определения параметров x и R известны [4,5]. Применимость предложенного диагностического метода не ограничивается структурами с кубической решеткой, а информативность может быть гораздо шире, если, например, учитывать диффузное рассеяние, отображаемое на RSM.

Работа выполнена на оборудовании федерального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург).

Список литературы

- [1] *Pietsch U., Holy V., Baumbach T.* High-Resolution X-ray Scattering. From Thin films to Lateral nanostructures. N. Y.: Springer-Verlag, 2004. 408 p.
- [2] *Heinke H., Moller M.O., Hommel D.* et al. // *J. Crystal Growth.* 1994. V. 135. P. 41.
- [3] *Hirsh P.B., Howie A., Nicolson R.B.* et al. *Electron microscopy of thin crystals.* London: Butterworths, 1965. 574 p.

- [4] Боуэн Д.К., Таннер Б.К. Высокора разрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография. / Пер. с англ. И.Л. Шульпина и Т.С. Аргунова. Санкт-Петербург: Наука, 2002. 274 с.
- [5] Fewster P.F. X-ray scattering from semiconductors. 2^{ed} ed. London: Imperial College press, 2003. 299 p.
- [6] Сорокин С.В., Клишко Г.В., Седова И.В. et al. Молекулярно-пучковая эпитаксия метаморфных буферных слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с линейным градиентом состава / 10 Belarusian-Russian Workshop „Semiconductor Lasers and Systems“. Minsk, Belarus, 2015. Минск: Изд-во „Ковчег“, 2015. P. 196.
- [7] Kirilenko D., Sitnikova A., Sorokin S.V. et al. Correlation of strain evolution with dislocations distribution in metamorphic $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ heterostructures observed by combination of diffraction techniques / Proc. Microscopy Conference 2015. Germany: Gottingen, 2015.