

PACS numbers: 07.85.Jy, 61.10.Nz, 61.72.Ff, 68.65.Ac, 68.65.Fg, 81.07.St, 81.15.Hi

Рентгенодифрактометрические исследования деформационного состояния гетероструктур InGaAsSbN/GaAs с квантовыми ямами

В. П. Кладько, Н. В. Слободян, Л. В. Борковская, А. Н. Ефанов

*Институт физики полупроводников им. В. Е. Лашкарёва НАН Украины,
просп. Науки, 45,
03028 Киев, Украина*

Используя анализ кривых дифракционного отражения и карт распределения интенсивности диффузно рассеянного рентгеновского излучения в обратном пространстве, полученных в симметричной 004 и несимметричной 113 и 224 дифракционных геометриях, проведены исследования многослойных напряженных InGaAs(N)/GaAs(100) структур с единичными квантовыми ямами, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Обнаружена азимутальная зависимость дифракционного эффекта, известного как «wiggles», и обсуждаются причины его возникновения. Они вызваны взаимным действием двух факторов: симметрии собственного тензора внешних напряжений и симметрии упругого модуля материала подложки, который приводит к изменению наклонов кристаллографических плоскостей с глубиной, как в потенциальной яме, так и на границах барьерного слоя. Последнее приводит к формированию анизотропного характера распределения деформаций, а также разориентаций решетки в многослойной структуре, вызывающих орторомбические отклонения от тетрагональной псевдоморфной деформации, характерной для гетеросистемы с планарными слоями. Обсуждаются другие возможные физические механизмы этого эффекта в напряженных структурах.

Використовуюючи аналіз кривих дифракційного відбиття та карт розподілу інтенсивності дифузно розсіяного рентгенівського випромінення в оберненім просторі, одержаних у симетричній 004 і несиметричній 113 і 224 дифракційних геометріях, виконано дослідження багатошарових напружених InGaAs(N)/GaAs(100) структур з одиничними квантовими ямами, вирощених методом молекулярно-пучкової епітаксії. Виявлено азимутальну залежність дифракційного ефекту, відомого як «wiggles», і обговорюються причини його виникнення. Вони викликані взаємною дією двох факторів: симетрії власного тензора зовнішніх на-

пруг і симетрії пружного модуля матеріалу підложжя, котрий призводить до зміни нахилів кристалографічних площин з глибиною як в потенціальної ямі, так і на межах бар'єрного шару. Останнє призводить до формування анізотропного характеру розподілу деформацій, а також розорієнтацій ґратниці в багат шаровій структурі, що викликає орторомбічні відхилення від тетрагональної псевдоморфної деформації, характерної для гетеросистеми з плоскими шарами. Обговорюються інші можливі фізичні механізми цього ефекту в напружених структурах.

Using the analysis of rocking curves and reciprocal-space maps (RSM) for symmetric 004 and asymmetric 113 and 224 diffraction geometries, multilayered stressed InGaAs(N)/GaAs(100) structures with single quantum wells are investigated. The samples are grown by molecular-beam epitaxy. The origin of the 'wiggles' effect is observed and explained. 'Wiggles' are generated by the mutual influence of two factors: the symmetry of the own tensor of external strains and the symmetry of modulus of the substrate elasticity, which leads to the change of crystallographic-planes' inclinations with depth in potential well and on the boundaries of interfaces with the barrier layer. The last leads to the formation of anisotropic character of strains' distribution and to the lattice misorientation in multilayered structure. This results in orthorhombic deviation from tetragonal pseudomorphic deformation, which is typical for heterostructures with planar layers. Other possible physical mechanisms of this effect in stressed structures are discussed.

Ключевые слова: рентгеновская дифракция, многослойные структуры, диффузное рассеяние.

(Получено 26 декабря 2006 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время возрос интерес к длинноволновым лазерным диодам (1,3–1,55 мкм), представляющим интерес для производства новых оптоэлектронных приборов (квантово-размерных лазеров, фотодетекторов и др.) [1]. Во многих работах [1–6] продемонстрировано, что хорошей основой для получения таких диодов являются выращенные молекулярно-лучевой эпитаксией (МЛЭ) многослойные структуры с квантовыми ямами (КЯ) типа InGaAs, среди которых особенно перспективен InGaAsN/GaAs. Однако из-за большого предела растворимости этих материалов остаются пока трудности при получении излучения на длинах волн, больших 1,3 мкм. К тому же огромные трудности представляет получение соединений $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}_y\text{As}_{1-y}$ и $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ хорошего качества. Их структурное совершенство довольно быстро ухудшается с увеличением содержания N, которое приводит к быстрому увеличению локальной деформации и кластеризации в

деформированных слоях [7]. Для улучшения структурных характеристик КЯ в процессе роста используют Sb в качестве поверхностно-активного вещества [8].

Следует отметить, что в пленках полупроводниковых соединений III-V имеет место спонтанная поперечная модуляция состава, которая приводит к сильным изменениям оптоэлектрических свойств полупроводниковых материалов. Среди спонтанно упорядоченных наноструктур, характерных для соединений $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}_y\text{As}_{1-y}$ при высокой концентрации азота и индия, особо можно выделить как образование неоднородностей состава по индию и азоту, так и образование периодических структур плоских доменов [9]. Во всех таких системах соседние домены различаются постоянной кристаллической решетки и структурой поверхности, и, следовательно, доменные границы являются источниками дальнедействующих полей упругих напряжений.

Эти факторы усложняют, а порой делают невозможным интерпретацию и анализ рентгеновских дифракционных спектров, полученных от этих структур. Во многих работах [10–12] исследовались вещества подобного типа. Так, в работе [13] при исследовании комплексной лазерной структуры InGaAs/GaAs авторы наблюдали необычный дифракционный эффект осциллирующего распределения дифрагированной интенсивности в обратном пространстве, известный как «змейка» («wiggles»). Подобный эффект также отмечался и для других структур (SiGe, AlGaAs), как многослойных, так и однослойных. Однако попытки интерпретировать эти спектры и получить достоверные структурные параметры не увенчались успехом.

Описанные выше структурные особенности полупроводниковых материалов, а также их влияние на дифракцию рентгеновских лучей приводят к необходимости применения для исследований комплекса высокоразрешающих методов. Однако, даже несмотря на это, проблема объяснения дифракции от такого рода структур всё еще далека от завершения. Поэтому целью данной работы является исследование с помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии (ВРРД) влияния анизотропии деформационных полей и латерального распределения индия в КЯ и прилегающих к ней слоях на дифракционные спектры и двухмерные карты распределения интенсивности в обратном пространстве в структурах InGaAsSbN/GaAs (КОП — карты обратного пространства).

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБРАЗЦЫ

Структуры InGaAsSbN/GaAs с единичной КЯ были выращены методом МЛЭ на подложке из арсенида галлия. Температура роста КЯ изменялась в пределах 440–505°C. Содержание индия и сурь-

мы составляло, соответственно, 20–36 и 1%, а азота — 0,5–1%. Все образцы выращивались в одинаковых условиях роста [14].

Измерение кривых дифракционного отражения (КДО) проводилось на высокоразрешающем дифрактометре «X'Pert PRO MRD XL» с четырехкристальным Ge-монохроматором при использовании CuK_α -линии. Для построения карт обратного пространства был использован трехкристальный анализатор Ge(220), с угловой расходимостью $12''$. Для всех образцов измерялись карты обратного пространства в симметричной 004 и асимметричных 113 и 224 дифракционных геометриях (скользящие углы падения). КДО и КОП снимались для различных азимутальных направлений: плоскость дифракции изменялась с шагом 45° . Угол разориентации подложки GaAs в исследуемых структурах не превышал $0,35^\circ$. Кривые качания моделировались для отражения 004 для случая двух плоских волн методом [15], что вполне правомерно для планарной структуры.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Схема многослойной структуры с описанной КЯ представлена на рис. 1. Толщина КЯ — 6 нм, $x = 0,22$ (In). Толщина слоя значительно меньше критической толщины образования дислокаций несоответствия.

Экспериментальные КДО от многослойной системы представлены на рис. 2. Отметим, что местоположение максимумов осцилляций на кривых отражения меняют как свое положение, так

Верхний слой GaAs 40 нм
Слой $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ 50 нм
Слой GaAs 40 нм
КЯ InGaAsNSb 6 нм
Слой GaAs 100 нм
Слой $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ 50 нм
Буферный слой GaAs
Подложка 100 <i>n</i> -GaAs

Рис. 1. Схематическое изображение исследуемых образцов.

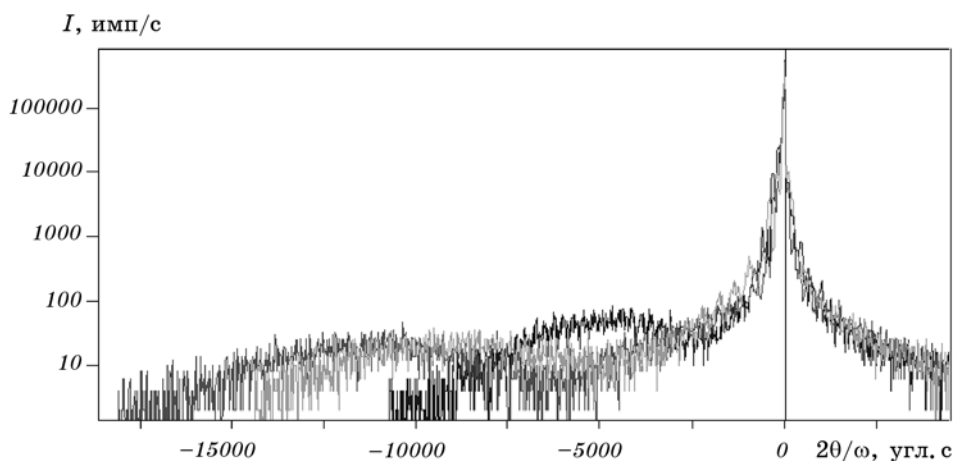


Рис. 2. Экспериментальные КДО 004 от многослойной системы InGaAsSbN/GaAs.

и интенсивность. Причиной этому может быть релаксация напряжений между слоями, вследствие чего граница раздела становится более шероховатой с появлением концентрационных доменов или дислокаций.

Попытка промоделировать КДО с помощью вариаций только упругих напряжений в слоях структур не привела к желаемому результату. Введение в расчетную модель разориентаций слоев структуры, вызванной доменами, вселило некоторую надежду на благополучный исход теоретической подгонки спектров.

Известно, что легирование азотом в трехкомпонентном $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ не только ведет к локальным структурным изменениям при замещении As, но и к возможным изменениям локальной структуры вокруг примесей In. Добавление атомов In в GaAs увеличивает постоянную решетки и запрещенную зону, тогда как внедрение атомов N в GaAs уменьшает и постоянную решетки, и запрещенную зону [16, 17]. Более того, введение In и N может дать увеличение деформаций сжатия и растяжения в тонких пленках $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$, осажденных на GaAs. Поэтому, возможно, что морфология гетерограницы раздела играет активную роль в формировании физических свойств такой многослойной структуры. При этом, несмотря на то, что добавление N в InGaAs уменьшает несоответствие решетки между InGaAsN и GaAs, возможен так называемый 3D-рост (островковый) слоя InGaAsN [9].

Далее с целью изучения как деформаций, так и разориентаций в лазерных структурах были получены двумерные карты распределения интенсивности вокруг узлов обратной решетки как симметричных 004, так и асимметричных 113 и 224. КОП для

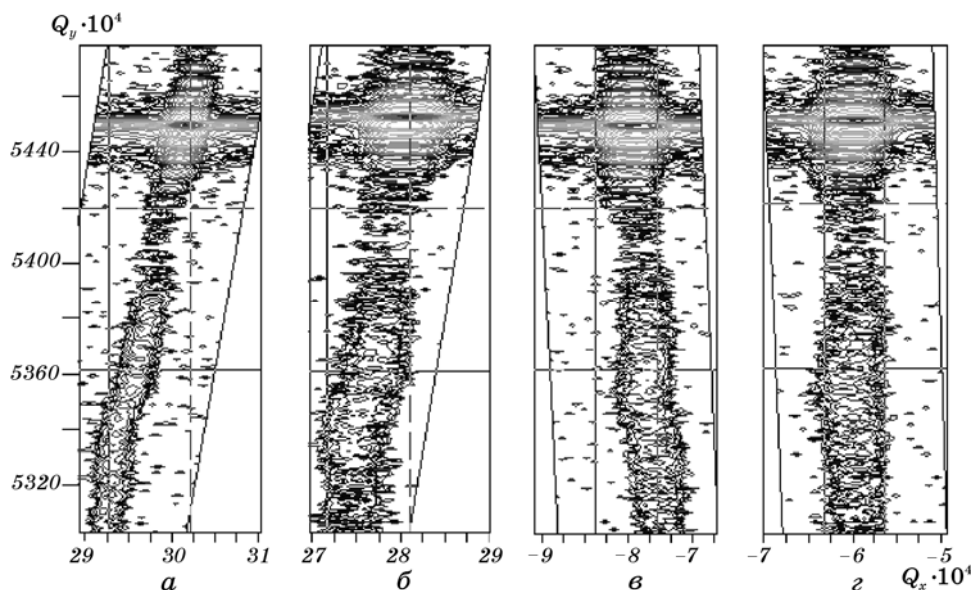


Рис. 3. Карты распределения интенсивности вокруг узла 004 для структуры InGaAsN для различных азимутальных направлений относительно [110]: 0 (а), 90 (б), 180 (в) и 270° (г).

узла 004 показали колебательное распределение интенсивности вдоль нормали к поверхности структуры («wiggles») (рис. 3).

Азимутальные исследования распределения интенсивности для этого узла показали наличие «wiggles» для различных кристаллографических направлений. Однако в азимутальном направлении [110] это распределение оказалось очень широким на ω -скане. Этот скан, полученный для пика подложки, имеет в некоторых образцах очень большую полуширину (рис. 4). Причем в некоторых случаях отчетливо наблюдается несколько максимумов, что свидетельствует о наличии нескольких разориентированных областей (блочная структура), отвечающих слоям арсенида галлия в структуре.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ КОП приводит к следующей модели деформаций и разориентаций в этих структурах. Наличие «wiggles» во всем интервале азимутальных углов свидетельствует о том, что разориентации не имеют ярко выраженного одного направления, т. е. имеют различную кристаллографическую привязку.

Известно, что во время эпитаксиального осаждения слоев

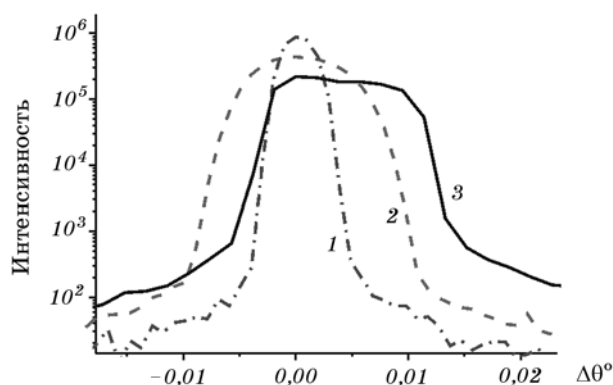


Рис. 4. Поперечные сканы вблизи узла 004 слоев GaAs для структур InGaAsN.

InGaAs–GaAs процесс формирования латеральных модуляций состава существенно меняет характер распределения упругих деформаций по сравнению с плоскими слоями. При этом реализуется анизотропный характер распределения деформаций относительно кристаллографических направлений типа $\langle 011 \rangle$, что обуславливает анизотропию структурных параметров (например, понижения структурной симметрии), которая наблюдается в планарных гетероструктурах. При наличии напряжений композиция сплава будет варьироваться вдоль направления волнистости, потому что большие атомы предпочтительно собираются, когда решетка расширена, а меньшие — когда решетка сжата.

Симметрия периодических структур плоских доменов (модуляций состава) определяется как симметрией тензора поверхностных натяжений, так и симметрией объемных упругих модулей подложки. Главные оси тензоров поверхностных натяжений GaAs и InAs — $[1\bar{1}0]$ и $[110]$, а объемные упругие свойства материалов определяются направлениями осей наилегчайшего сжатия $[100]$ и $[010]$. Таким образом, имеется переход от ориентации упругих доменов при субмонослойном покрытии по направлению $[1\bar{1}0]$, наблюдавшийся в работах [18, 19], к ориентации по направлениям $[100]$ и $[010]$ при покрытии 1,0–1,5 монослоев. Этот переход может быть интерпретирован как следствие возрастания вклада рассогласования параметров решеток в поле упругих напряжений по сравнению с вкладом, обусловленным скачком тензора поверхностных натяжений на границе двух фаз. Такое возрастание связано с увеличением объема осажденного InAs, т. е. происходит плавное закручивание кристаллографических плоскостей решетки от направления $[1\bar{1}0]$ к направлению $[100]$ в более близких к поверхности КЯ областях, вызванное наличием областей с отличным составом. То, что эти преобразования происходят в яме

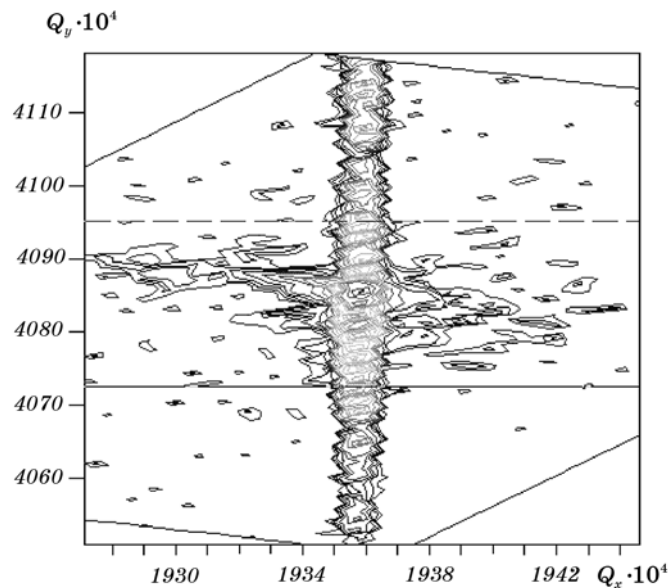


Рис. 5. Карта распределения интенсивности вокруг узла 113 для структур InGaAsSbN.

и близлежащих интерфейсах подтверждает и поведение распределения интенсивности на асимметричных рефлексах (рис. 5). Эффект «wiggles» не наблюдается ни для 224, ни для 113 рефлексов. Численные расчеты также подтвердили, что область ямы не вносит вклад в асимметричную дифракцию, а определяется она в основном верхним слоем.

Поскольку домены не наблюдаются в структурах с составом индия 0,2, то можно сделать вывод о том, что стимулятором этих формирований является значение концентрации атомов In. Подтверждением этому являются результаты работ, полученные на многослойных структурах InGaAs/GaAs с содержанием индия порядка 0,25–0,28, где наблюдается латеральное упорядочение (латеральные модуляции состава) [20].

5. ВЫВОДЫ

Структурная анизотропия влияет на дифракцию рентгеновских лучей, что позволяет использовать рентгеновскую высокоразрешающую дифрактометрию для исследования анизотропии упругой деформации.

Изучение структур с когерентно напряженной InGaAs(N) единичной КЯ методами ВРРД доказывает, что введение сурьмы

приводит к улучшению границ раздела в гетеропереходе даже в N-содержащих потенциальных ямах, выращенных при относительно высоких температурах. Однако это не может предотвратить образование расширенных дефектов, которые видны на картах ВРРД как интерференционные колебания в направлении нормали к поверхности (100), известные как «wiggles». Этот эффект наблюдается во всех изучаемых структурах и предполагается, что она вызвана действием двух факторов: симметрии собственного тензора внешнего напряжения и симметрии упругого модуля материала подложки, который приводит к изменению наклонов кристаллографических плоскостей с глубиной как в потенциальной яме, так и в границе барьерного слоя.

Последнее приводит к формированию анизотропного характера распределения деформаций, а также разориентаций решетки в многослойной структуре, что вызывает орторомбические отклонения от тетрагональной псевдоморфной деформации, характерной для гетеросистемы с плоскими слоями.

Работа выполнена в рамках проекта МОН Украины М/175-2007 «Диагностика наноразмерных структур и разработка на их базе основ технологии изготовления приборов обработки информации нового поколения» и частично поддержана проектом УНТЦ № 3085.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. V. M. Ustinov and A. E. Zhukov, *Semicond. Sci. Technol.*, **15**: R41 (2000).
2. S. G. Sprutte, M. C. Larson, W. Eampler et al., *J. Cryst. Growth*, **227**: 506 (2001).
3. M. Pessa, C. S. Peng, T. Jouhti et al., *Microelectron. Eng.*, **69**: 195 (2003).
4. M. Kondow and T. Kitatani, *Semicond. Sci. Technol.*, **17**: 746 (2002).
5. J.-M. Chauveau, A. Trampert, M.-A. Pinaults et al., *J. Cryst. Growth*, **251**: 383 (2003).
6. Z. Pan, L. H. Li, W. Zhang et al., *Appl. Phys. Lett.*, **77**: 1280 (2000).
7. J.-M. Chauveau, A. Trampert, M.-A. Pinaults et al., *J. Cryst. Growth*, **251**: 383 (2003).
8. L. Borkovska, O. Yefanov, O. Gudymenko et al., *Thin Solid Films*, **515**: 786 (2006).
9. N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, V. A. Shchukin et al., *Semiconductors*, **32**: 343 (1998).
10. С. В. Евстигнеев, Р. М. Имамов, А. А. Ломов и др., *ФТП*, **34**: 719 (2000).
11. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов, А. А. Ломов, *Кристаллография*, **45**: 3 (2000).
12. N. Q. Thinh, I. A. Buyanova, W. M. Chen et al., *Appl. Phys. Lett.*, **79**: 3089 (2001).
13. P. F. Fewster, *Semicond. Sci. Technol.*, **8**: 1915 (1993).
14. L. Borkovska, N. Korsunska, V. Kladko et al., *Mater. Sci. Eng.*, **27**: 665 (2007).

15. А. Н. Ефанов, В. П. Кладько, *Металлофиз. новейшие технол.*, **28**, № 2: 227 (2006).
16. I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, *J. Appl. Phys.*, **89**: 5815 (2001).
17. J. C. Harmand, G. Ungaro, L. Largeau, and G. Le Roux, *Appl. Phys. Lett.*, **77**: 2482 (2000).
18. J. W. Sahn, *Trans. Met. Soc.*, **242**: 166 (1968).
19. А. Г. Хачатурян, *Теория фазовых превращений и структура твердых растворов* (Москва: Наука: 1974).
20. Y. I. Mazur, Z. M. Wang, G. J. Salamo et al., *J. Appl. Phys.*, **99**: 023517 (2006).