

СТОСОВНО ПИТАННЯ ПРО РОЗСІЯННЯ РЕНТГЕНІВСЬКИХ ПРОМЕНІВ ДИСЛОКАЦІЙНИМИ ПЕТЛЯМИ ВЕЛИКОГО РОЗМІРУ

В.П. КЛАДЬКО, М.Я. СКОРОХОД, Л.І. ДАЦЕНКО, О.Й. ГУДИМЕНКО,

Інститут фізики напівпровідників НАН України
(Просп. Науки, 45, Київ 03028; e-mail: kladko@isp.kiev.ua)

УДК 548.731

© 2002 р.

Наведено результати теоретичних і експериментальних досліджень дифузного розсіяння рентгенівських променів (ДРРП) дислокаційними петлями великого розміру (більшими ніж екстинкційна довжина) в сильно легованих кремнієм (до 10^{18} см^{-3}) кристалах GaAs. Вимірювання дифракційних кривих гойдання у випадку брегівської дифракції було проведено на трикристалічному дифрактометрі за схемою $(n, -n, +m)$. Проаналізовано хвости дифузних компонент як у зонах розсіяння Хуанга, так і Стокса — Вільсона, що дозволило отримати незалежні дані стосовно величин великих дислокаційних петель. Також була використана процедура підгонки розрахункових величин диференціальних інтенсивностей до отриманих експериментальних даних, що базується на статистичній динамічній теорії розсіяння РП. Крім того, була використана ідея про існування невідбиваючих зон у великих дислокаційних петлях для встановлення узгодження між експериментальними та розрахунковими величинами інтенсивностей.

Вступ

Для вивчення природи точкових дефектів та мікроефектів кулонівського типу в кристалах досить перспективним є аналіз поведінки хвостів кривих гойдання, де зосереджена дифузний компонента інтенсивності, що несе, як відомо, основну інформацію про дефекти [1]. В ряді останніх робіт, наприклад [2—6], ефективно використовували метод підгонки розрахункових кривих гойдання до експериментальних дифракційних максимумів, завдяки чому вдалося отримати значення ряду параметрів структурної досконалості кристалів (у тому числі, такі характеристики дефектів, як їх розмір та концентрація). Попередні теоретичні підходи [7—9] не дозволяють, однак, дослідити ДРРП від дефектів, розміри яких перевищують значення екстинкційної відстані Λ , оскільки для розрахунків використано ряд припущень, суттєвих для кількісного опису дефектної структури, а саме: рівність когерентних складових повної відбивної здатності (ПВЗ) та збіг кутів положень піків кривих дифракційного відбиття (КДВ) для досконалого та реального кристалів.

В цьому зв'язку в роботі [10] запропоновано новий теоретичний підхід, який дозволяє описувати

поведінку дифузної складової інтенсивності в області повного відбиття з урахуванням динамічних ефектів для дифузного розсіяння (приспосовання його до періодичності реального кристала). Цей метод отримав підтвердження в дослідженнях кристалів кремнію, що містять складний спектр дефектів [11]. Метою ж цієї роботи було отримання додаткових ілюстрацій можливості вказаного теоретичного підходу на прикладі бінарних кристалів GaAs, що містять великі дислокаційні петлі, та порівняння отриманих результатів з даними інших методів.

Предмет дослідження і методика експерименту

Для досліджень нами були вибрані малодислокаційні області монокристалів та плівки GaAs:Si (товщиною близько 5 мкм), сильно леговані Si (порядку 10^{18} см^{-3}). За даними рентгенівської топографії (метод Ланга) такі зразки не мали лінійних дислокацій, але містили дуже великі дислокаційні петлі (діаметром приблизно 70 мкм), однорідно роз-

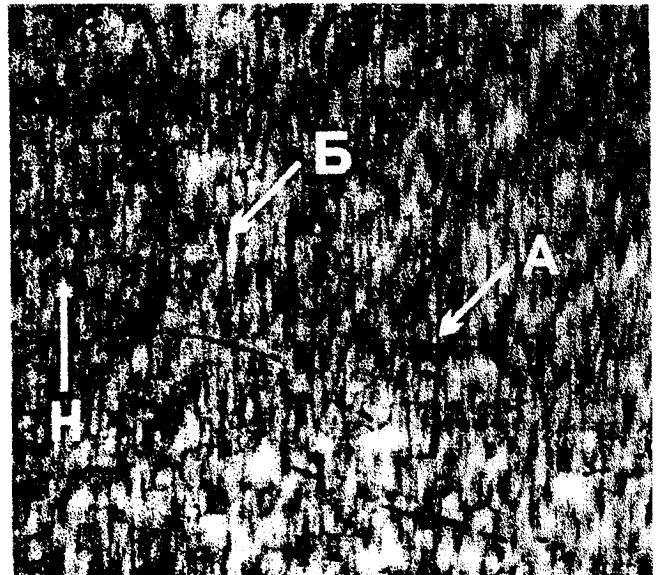


Рис. 1. Рентгенівська топограма зразка GaAs. MoK_α -випромінювання, рефлекс 220. Стрілками позначені: А і Б — дислокаційні петлі, Н — вектор дифракції. $\times 28$

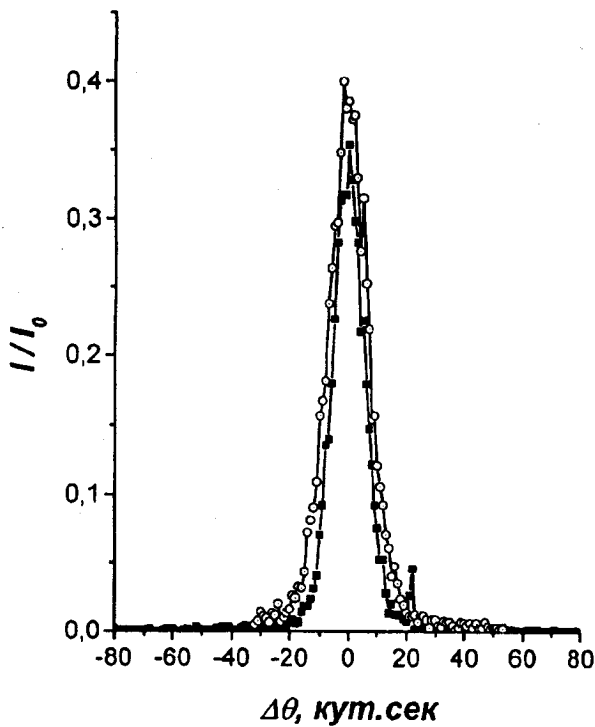


Рис. 2. Експериментальні криві дифракційного відбиття 400 для кристала GaAs, отримані в різних областях

поділені по об'єму (див. рис. 1). Зображення дислокаційних петель, що лежать у площинах {111}, при зйомці на симетричних відбиттях 220 проєктуються в $\sqrt{2}$ еліпси, орієнтовані в напрямках $\langle 110 \rangle$ (деякі відмічені стрілками на топограмі).

Для запису КДВ використовували трикристалну (з подвійним монохроматором) рентгенооптичну схему $(n, -n, m)$ в геометрії на відбиття, з вихідною щільною перед зразком розміром 50 мкм. Досліджували симетричні відбиття типу 400 з використанням $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ -випромінювання. Характерні КДВ для зразків GaAs : Si, півширина котрих не перевищувала 12 кутових секунд, наведено на рис. 2.

Теоретичний розрахунок форми кривих відбиття $I/I_0 = f(\Delta\vartheta)$, де I_0 — інтенсивність первинного монохроматичного пучка, проводили за формулами [10] з використанням геометричних параметрів дифракції та величини динамічного фактора Дебая — Валлера L подібних кристалів [12, 13]. Для розрахунку характеристик розсіяння враховували згортку реальних кривих відбиття від подвійного монохроматора та досліджуваного зразка. Підгонку розрахункових кривих з метою визначення L та коефіцієнта екстинкції μ_{ds} (або середнього радіуса r та концентрації петель) здійснювали за відомою методикою [14] шляхом мінімізації функціоналу до

середніх значень R_i^{exp} :

$$\Phi = \sum_{i=1}^n (R_i^{\text{exp}} - R_i^{\text{calc}})^2 / \sigma_i^2, \quad (1)$$

де R_i^{exp} і R_i^{calc} — експериментальні та розраховані значення відбивної здатності відповідно, σ_i — статистична помилка.

Паралельно проводили розрахунки середніх радіусів дефектів за формулами [1, 7, 15]. Суть цього підходу, як відомо, ґрунтується на уявленнях, що для різних областей оберненого простору кінетика інтенсивності ДРПП на дефектах повинна описуватися різними законами. У хуангівської області $I \sim q^{-2}$, де $q = H \Delta \vartheta \cos \vartheta = \sqrt{e}/r$ (у реальному просторі їй відповідає далека від дефекту область слабких спотворень кристалічної ґратки, яка викликана далекодійними кулонівськими полями зміщень), ефективним є аналіз мікрodefektів одного типу. Однак, для вивчення розподілу дефектів за розмірами, ефективнішими вважається асимптотичне дифузне розсіяння (область Стокса — Вільсона $I \sim q^{-4}$), оскільки воно визначається потужністю дефекту у першому ступені і є чутливішим до міжвузловинної природи точкових дефектів [16]. За положенням точки зміни характеру розсіяння r_0 може бути визначений розмір великих мікрodefektів, а також їх потужність C .

Якщо в кристалі є досить великі дефекти ($R \sim 1$ мкм), що дають внесок у дифузне розсіяння якраз поблизу дифракційного максимуму, то єдиною областю, де можливо провести аналіз дефектної структури, є асимптотичне дифузне розсіяння (АДР). Цій області розсіяння згідно з [1] задовольняють такі хвильові вектори q :

$$(C \cdot H)^{-1/2} \leq q \leq C \cdot H/r^3, \quad (2)$$

де C — потужність дефекту, H — вектор дифракції, r — розмір мікрodefektу. Зі збільшенням потужності дефекту (або його розмірів) ліва частина у (2) наближується до нуля, в результаті чого протяжність області хуангівського розсіяння може суттєво зменшуватися.

Результати експерименту та його обговорення

На рис. 3 наведено експериментальні КДВ (точки), а також розрахункові значення кривих гойдання та їхніх складових, отримані в результаті підгонки теоретичних величин диференціальних відбивних здатностей R_i інтенсивностей до експериментальних згідно з [10]. Очевидно, дифузна складова розсіяння (крива 3) має досить широку протяжність (до $40''$). Відносний внесок

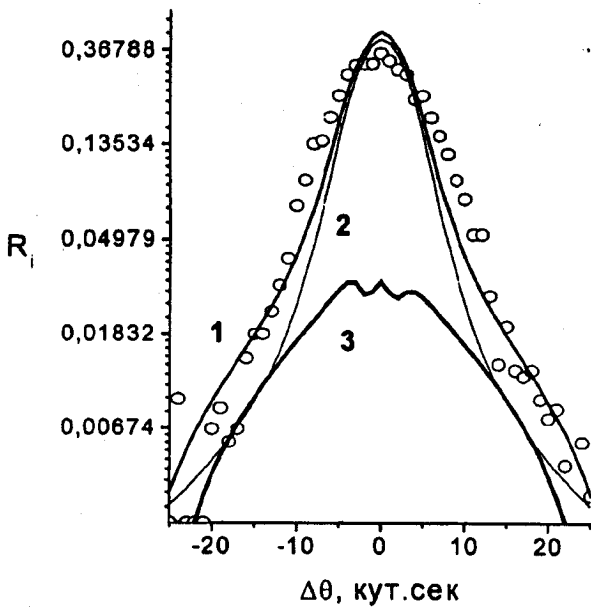


Рис. 3. Результати підгонки розрахункової КДВ до експериментальної та її складові: 1 — сумарна, 2 — когерентна, 3 — дифузна. Точки — експеримент. Значення параметра підгонки становить $R = 2,9\%$

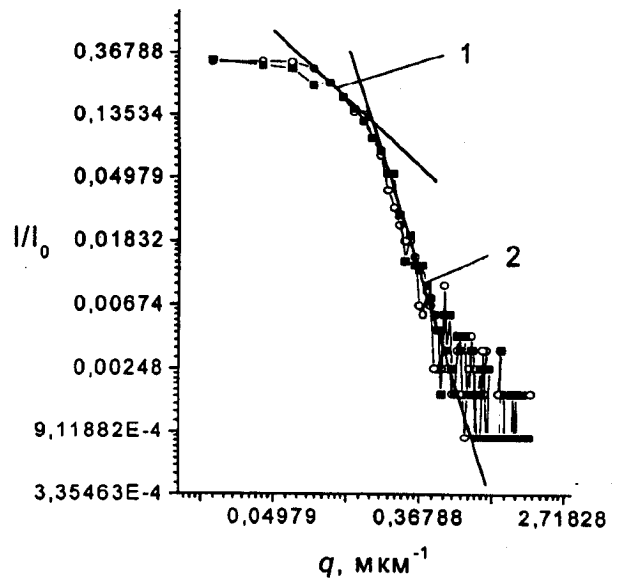


Рис. 4. Подвійна логарифмічна залежність відбивної здатності як функції параметра відхилення від точного бреггівського положення в оберненому просторі

дифузної складової у ПВЗ у наведеному на рис. 3 кутовому інтервалі, становить величину порядку 0,05. Величини характеристик кулонівських дефектів, одержані в результаті вказаної обробки КДВ за значеннями L і μ_{ds} , (радіус петель $r = 2,39$ мкм і концентрація $c \approx 10^4$ см⁻³) протирічають наведеним вище даним рентгенівської топографії. Разом з тим ці дані порівняно близькі до значень середніх розмірів петель, отриманих з аналізу взаємного розташування двох ділянок розсіяння (Хуангівської 1 і асимптотичної Стокса — Вільсона 2) подвійної логарифмічної залежності $\ln R_i = f(\ln q)$ (рис. 4). Абсциса точки перетину цих ділянок відповідає середньому радіусу петель більшого розміру — порядку 12 мкм. У цьому зв'язку варто зазначити, що про великі дислокаційні петлі в кристалах Si ($r \approx 2,2$ мкм) і GaAs ($r \approx 0,8$ мкм), знайдені з допомогою хуангівського дифузного розсіяння, повідомлялось раніше [5, 16, 17]. Степенева залежність за законом спаду q^{-3} для області 2 виникла внаслідок врахування розбіжності РП у вертикальній площині (перпендикулярно до площини розсіяння) [16]. В області оберненого простору, де основний внесок у розсіяння дає некогерентна складова, виміряна інтенсивність визначається формулою

$$I(p) = \int_{-\Delta q_y}^{\Delta q_y} I_{\text{кін}}(q) dq_y, \quad (3)$$

$$\Delta q_y = \varphi_{\text{max}} / \lambda, \quad (4)$$

де $p(q_x, q_y)$ — проекція вектора q на площину дифракції, φ_{max} — максимальний кут відхилення дифрагованих променів від площини дифракції, $I_{\text{кін}}(q)$ — інтенсивність, розрахована за кінематичною теорією розсіяння РП.

Відомо, що хоча кутова область існування хуангівського розсіяння має порівняно малу протяжність у нашому випадку, вона все ж дозволяє якісно судити про наявність та характер великих мікродефектів. Для надійнішого встановлення природи мікродефектів (вакансійна чи міжвузловинна) було побудовано експериментальні залежності в координатах $Iq^3 = f(q)$, які дозволяють проаналізувати поведінку дифузного розсіяння при значному віддаленні від дифракційного максимуму [18] (рис. 5). Очевидно, що в нашому випадку домінували кулонівські дефекти міжвузловинного типу (перевищення значень Iq^3 для $q > 0$ над відповідними величинами $q < 0$).

Великі дислокаційні петлі міжвузловинної природи утворились у наших зразках, імовірно, завдяки пересиченню міжвузловинних атомів бінарної сполуки GaAs та їх конденсації в умовах відсутності об'ємних стоків, які зазвичай пов'язують з лінійними дислокаціями.

Встановлені в роботі розбіжності результатів стосовно середніх розмірів петель, отриманих методами диференціальної рентгенівської дифрактометрії, з

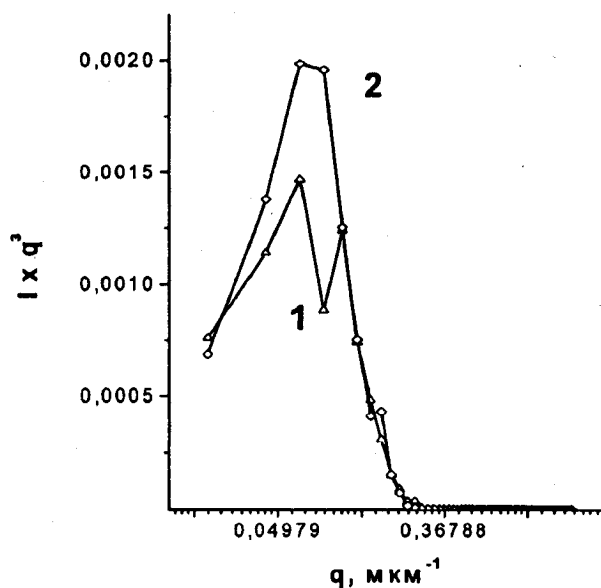


Рис. 5. Експериментальні залежності $Iq^3 = f(q)$ для лівої $q < 0$ (1) і правої $q > 0$ (2) частин КДВ

даними рентгенівської топографії можна пояснити такими можливими причинами. По-перше, розміри великих дислокаційних петель згідно з топографічними даними значно перевищують навіть розміри опромінованої площі кристала при дифрактометричних вимірюваннях, яка перевищує Λ^2 . По-друге, цілком імовірно, що досліджені кристали даної бінарної сполуки мали цілий спектр дефектів з меншими розмірами і підвищеною концентрацією (їх не видно на топограмі). Саме такі петлі забезпечили наявність протяжних дифузних хвостів в області АДР.

Крім отриманих даних про розміри мікрodefектів, слід сказати декілька слів і про вплив на картину розсіяння РП в наших кристалах параметрів структурної досконалості: статичного фактора Дебая — Валлера і коефіцієнта екстинкції μ_{ds} . З цією метою порівнювали результати, отримані для об'ємних зразків GaAs та плівок GaAs:Si/GaAs з приблизно однаковою концентрацією легуючої домішки кремнію. З рис. 6 (крива 2) випливає, що пікова інтенсивність у масивному GaAs, що містить великі дислокаційні петлі, значно нижча, ніж у плівці (крива 1). За даними [19] такі плівкові системи містили дефекти типу кластерів з характерними розмірами порядку кількох мікрметрів. Як видно з процедури підгонки форми КДВ, в об'ємному зразку дифракційний параметр, що враховує екстинкцію відбитих променів, має набагато більше значення, ніж в тонкій плівці [19]. Удаване збільшення екстинкції в масивному кристалі GaAs, яке могло привести до зменшення пікової та інтегральної інтенсивностей, у порівнянні з плівкою, може бути

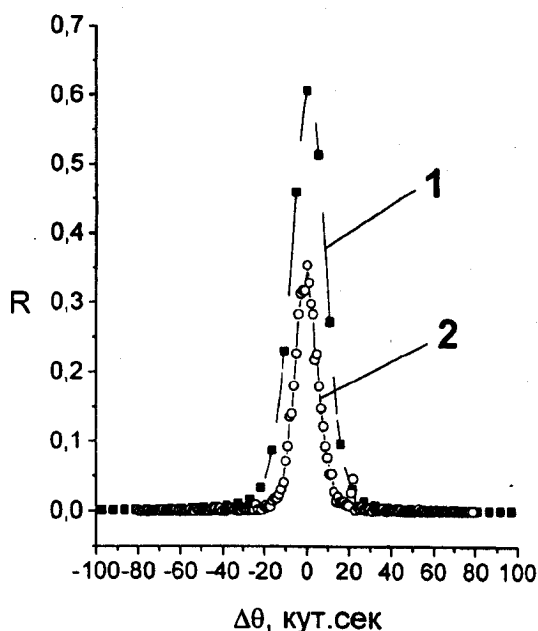


Рис. 6. Порівняння форми КДВ для епітаксіального шару GaAs:Si (1) та масивного зразка GaAs (2)

пояснене припущенням про появу недифрагуючих ділянок на великих дислокаційних петлях в опромінюваній області ($5 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2$) при запису КДВ. Про недифрагуючі ділянки в кристалах CdTe з преципітатами компонент повідомлено, наприклад в [20]. Враховуючи середній розмір великих петель $r = 30 \div 100 \text{ мкм}$ та концентрацію $c = 5,3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$, можна за топограмою (рис. 1) оцінити "втрату" інтенсивності у відбитому пучку за рахунок недифрагуючих зон. Ця оцінка дає середнє значення внеску цих зон, який дорівнює приблизно 0,3. Тоді відношення площі, вільної від петель, до загальної площі, опроміненої РП, становить 0,7, що відповідає відношенню пікових інтенсивностей кривих 1 і 2 (рис. 6), яке дорівнює 0,6.

Висновки

Комплексні дифракційні дослідження природи і характеристик мікрodefектів у бездислокаційному кристалі арсеніду галію показали, що одними великими дислокаційними петлями міжвузловинної природи, розмір яких порівняний з екстинкційною довжиною, експериментальні результати про характер дифузного розсіяння пояснити не можна. Для отримання задовільного узгодження експериментальних та розрахункових значень інтенсивностей за теорією, що враховує динамічну поведінку дифузної компоненти в області бреггівського максимуму виникла потреба врахувати вплив недифрагуючих зон кристала в області залягання великих

дислокаційних петель. Необхідне також врахування петель значно меншого розміру, які дають помітний внесок в інтенсивність дифузного розсіяння у стокс-вільсонівської області дифракційного максимуму.

З виконаних досліджень випливає, що аналіз хуангівського розсіяння поблизу вузла оберненої ґратки для великих дефектів дуже утруднений. Для вивчення таких мікродфектів доцільно використовувати область асимптотичного розсіяння, котра прилягає до хуангівської. Присутність на КДВ хуангівської області розсіяння для дефектів з розмірами, що значно перевищують екстинкційну довжину, свідчить про високу роздільну здатність експериментальної установки.

1. *Кривоглаз М.А.* Дифракция рентгеновских лучей и нейтронов в неидеальных кристаллах. — Киев.: Наук. думка. 1983.
2. *Li M., Moller M.O., Res H.R., Landwehr G.* // J. Phys. D: Appl. Phys. — 1997. — 30. — P. 3296—3300.
3. *Staley T.W., Matij R.J.* // J. Appl. Cryst. — 1997. — 30. — P. 368—382.
4. *Borowski J., Gronkowski J., Zielinska-Rohozinska E., Slupinski T.* // J. Phys. D: Appl. Phys. — 1998. — 31. — P. 1883—1887.
5. *Молодкін В.В., Олиховський С.И., Кисловський Е.Н. и др.* // Металлофизика и нов. технологии. — 1997. — 19, №12. — С. 25—35.
6. *Kladko V.P., Datsenko L.I., Olikhovskii S.I. et al.* // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2001. — 34, N10A. — P. 87—92.
7. *Dederichs P.H.* // Phys. Rev. B. — 1971. — 4, N4. — P. 1041—1050.
8. *Larson B.C., Schmarz W.G.* // Ibid. — 1974. — 10, N6. — P. 2307—2314.
9. *Peisl H.* // J. Appl. Cryst. — 1975. — 8. — P. 143—149.
10. *Molodkin V.B., Olikhovskii S.I., Kislovskii E.N. et al.* // Phys. status solidi (b). — 2001. — 227, N2. — P. 429—447.
11. *Kislovskii E.N., Molodkin V.B., Olikhovskii S.I.* // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2001. — 34, N10A. — P. 93—96.
12. *Fukamachi T., Hosoya S., Kawamura T., Okunuki M.* X-ray intensity measurements on large crystals by energy-dispersive diffractometry. — Tokyo, 1976. — (Preprint/The Institute for Solid State Physics. The University of Tokyo; N760).
13. *Pietsch U.* // Phys. status solidi (a). — 1985. — 87. — P. 151—156.
14. *Кладько В.П., Олиховський С.И., Даценко Л.И.* // Металлофизика и нов. технологии. — 2000. — 22, №6. — С. 20—27.
15. *Thomas J.T., Baldwin T.O., Dederichs P.H.* // Phys. Rev. B. — 1971. — 3. — P. 1167—1173.
16. *Бублик В.Т., Щербачев К.Д.* // Кристаллография. — 1995. — 40, вып. 1. — С. 122—127.
17. *Patel J.* // J. Appl. Cryst. — 1975. — 8, N2. — P. 186—192.
18. *Trinkaus H., Spalt H., Peisl H.* // Phys. status solidi (a). — 1970. — 2, N1. — P. K97—K100.
19. *Klad'ko V.P., Datsenko L.I., Bak-Misiuk J. et al.* // Alloys and Compounds. — 2001. — 328, N1—2. — P. 218—221.
20. *Кладько В.П., Гурьев А.Н., Даценко Л.И. и др.* // Кристаллография. — 1987. — 32, вып. 5. — P. 1202—1205.

Одержано 18.12.01

К ВОПРОСУ О ДИФфуЗНОМ РАССЕЯНИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ ДИСЛОКАЦИОННЫМИ ПЕТЛЯМИ БОЛЬШОГО РАЗМЕРА

Кладько В.П., Скороход М.Я., Даценко Л.И., Гудыменко А.И.

Резюме

В работе приведены результаты теоретических и экспериментальных исследований диффузного рассеяния рентгеновских лучей

дислокационными петлями большого размера (больше экстинкционной длины) в сильно легированных кремнием (до 10^{18} см^{-3}) кристаллах GaAs. Измерения дифракционных кривых качания в случае брэгговской дифракции были проведены на трехкристальном дифрактометре по схеме $(n, -n, +m)$. Были проанализированы хвосты диффузных компонент как в хуанговской, так и в стокс-вильсоновской зонах рассеяния, что позволило получить независимые данные относительно величин больших дислокационных петель. Средний размер больших петель по данным рентгеновской топографии составляет $r = 30 \div 100 \text{ мкм}$ при концентрации $c = 5,3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$. Использовалась также процедура подгонки расчетных величин дифференциальных интенсивностей к полученным экспериментальным данным, базирующаяся на статистической динамической теории рассеяния РЛ. Полученные этим методом значения размеров и концентрации дислокационных петель составляют: $r = 2,39 \text{ мкм}$ и $c \approx 10^4 \text{ см}^{-3}$. Кроме того, использовалась идея о существовании недифрагирующих зон в больших дислокационных петлях для установления согласования между экспериментальными и расчетными величинами интенсивностей. Присутствие на кривых дифракционного отражения хуанговской области рассеяния для дефектов с размерами, значительно превышающими экстинкционную длину, свидетельствует о высокой разрешающей способности экспериментальной установки.

CONCERNING THE SUBJECT OF X-RAY SCATTERING BY LARGE DISLOCATION LOOPS

V.P. Klad'ko, M.Ya. Skorokhod, L.I. Datsenko, O.I. Gudymenko

Institute of Semiconductor Physics, Nat. Acad. Sci. of Ukraine
(45, Nauky Prosp., Kyiv 03028, Ukraine)

S u m m a r y

The effect of large dislocation loops (exceeding the extinction distance) on X-ray diffuse scattering in GaAs crystals heavily (up to 10^{18} cm^{-3}) doped by silicon is investigated both theoretically and experimentally. Measurements of Bragg rocking diffraction curves are carried out by a three-crystal diffractometer adjusted in the $(n, -n, +m)$ case. In addition, the tails of diffuse components of the intensity in the Huang as well as in the Stocks — Wilson regions are analyzed, which allowed us to obtain the independent data concerning the radii r of large dislocation loops ($r = 12 \text{ }\mu\text{m}$). Their dimensions happened to be somewhat smaller as comparing with the data obtained by the Lang diffraction topographical method. This method gave the average radius of loops $r = 30 \div 100 \text{ }\mu\text{m}$ and their approximate concentration $c = 5.3 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$. The fitting procedure based on the Molodkin statistical dynamical theory describing X-ray scattering by large dislocation loops is used to adjust the calculated values of the differential intensities to experimental data. This approach gave the following values of microdefects: $r = 2.39 \text{ }\mu\text{m}$ and $c = 10^4 \text{ cm}^{-3}$. The idea of the existence of nonreflective regions on large dislocation loops is used to obtain a qualitative agreement between the experimental and calculated values of the intensities.