

Двухкристальная рентгеновская дифрактометрия в роли метода стоячих рентгеновских волн

А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов⁺, Э. М. Пашаев⁺, С. Н. Якунин⁺, Дж. Хорват*

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

⁺ Институт кристаллографии РАН, 117333 Москва, Россия

* Научно-исследовательский институт технической физики и материаловедения, H-1525 Будапешт, Венгрия

Поступила в редакцию 25 октября 2001 г.

Показано, что в совершенных многослойных системах можно с помощью одного только метода двухкристальной рентгеновской дифрактометрии фиксировать смещения атомных слоев (вызываемых инородными слоями), сравнимые и меньше межатомного расстояния. Ранее считалось, что фиксация таких малых смещений доступна лишь особым методам, типа метода стоячих рентгеновских волн. Измерения проводились на системе GaAs/InAs/GaAs, где инородным слоем являлся слой InAs, толщина которого не превышала 3 монослоев, а его структура имела островковый характер и по существу представляла собой набор отдельных квантовых точек. Проведенные измерения позволили определить смещение верхнего слоя GaAs по отношению к буферу GaAs с точностью менее 0.1 толщины атомного слоя.

PACS: 61.10.-i

В последние годы хорошо известный метод двухкристальной рентгеновской дифрактометрии (ДРД) претерпевает как бы второе рождение и превращается в мощный и эффективный метод анализа структуры, состава и качества тончайших слоев многослойных полупроводниковых систем, расположенных не только на поверхности исследуемой структуры, но и в ее глубине. В основе метода лежат измерения кривых дифракционного отражения при углах падения рентгеновского излучения, далеких от брэгговского пика (так называемый метод асимптотической брэгговской дифракции [1–3] или, как принято в иностранной литературе, truncated Bragg rods [4]). Основная проблема в реализации метода состоит в том, что необходимо отделить когерентную часть рассеяния от диффузной составляющей, и для решения этой проблемы был специально разработан метод трехкристальной рентгеновской дифрактометрии (ТРД) (см., например, [3]). Однако последний метод оказывается весьма трудоемким и требует существенно более длительных измерений, чем ДРД. Это обстоятельство затрудняет широкое использование метода ТРД в анализе реальных многослойных структур и требует разработки более эффективных подходов. Путь к решению данной проблемы связан не с разработкой специальной аппаратуры, а с резким улучшением в последние годы технологии роста ряда полупроводниковых многослойных систем. Реально выращиваемые структуры имеют довольно резкие границы между слоями, так что амплитуды дифракционного

рассеяния от отдельных слоев интерферируют между собой, и на кривых дифракционного отражения появляется большое количество явно выраженных осцилляций [5].

На рис.1а представлена схема двухкристального спектрометра, который позволяет измерять кривые дифракционного отражения (КДО) или так называемые кривые качания в широком угловом интервале отклонения от угла Брэгга. В отличие от стандартной схемы, здесь устанавливается дополнительная щель перед детектором, роль которой весьма существенна и заключается в том, чтобы ограничить по возможности попадание на детектор диффузно рассеянной составляющей рентгеновского излучения. При этом необходимо наряду с поворотом кристалла на угол θ обеспечить одновременный поворот детектора и щели S_d на угол 2θ так, чтобы дифракционно рассеянные лучи попадали в детектор. На рис.1б представлена измеренная в этой схеме КДО от плоскостей (004) структуры GaAs/InAs/GaAs, показанной на вставке этого рисунка. Действительно, на кривой КДО наблюдается более сотни осцилляций, что, исходя даже из самых общих соображений, позволяет надеяться на эффективное разделение когерентной и диффузной составляющих рассеяния в кривых КДО, а также получение обширной информации о параметрах многослойной системы. Наличие такого большого числа осцилляций свидетельствует прежде всего о хорошем качестве выращенной структуры. Слой InAs имеет очень малую толщину, не превышающую

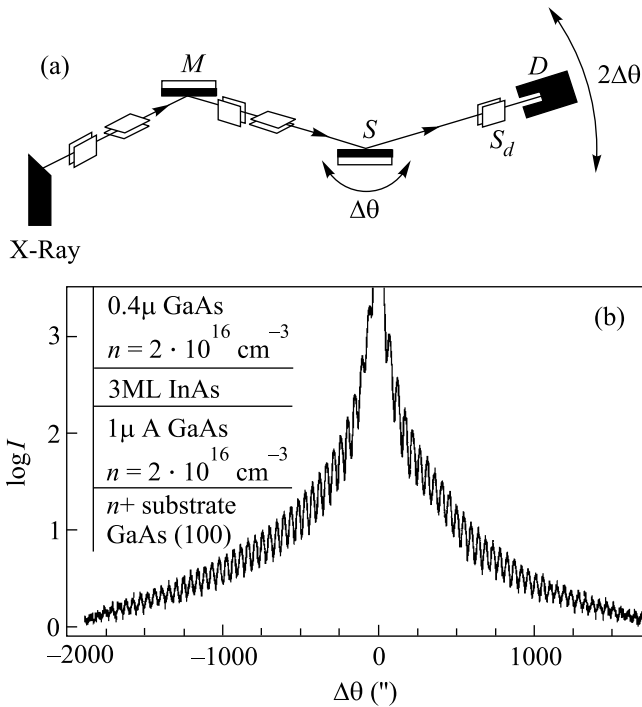


Рис.1. (а) Схема двухкристального рентгеновского дифрактометра: *M* – блок монохроматора, *S* – образец, *D* – детектор, *S_d* – щель перед детектором для уменьшения фоновой составляющей; (б) экспериментальная КДО (штрихи) от многослойной структуры GaAs/InAs/GaAs, показанной на вставке, и теоретическая кривая (сплошная линия), рассчитанная в модели с дополнительными субслоями. Величина $\Delta\theta$ указана в угловых секундах

трех монослоев. Такие слои, как известно, не растут однородными, а образуют островковые структуры (так называемые квантовые точки). И, тем не менее, как видно из экспериментальных данных на КДО (по наличию большого числа наблюдаемых осцилляций), напряжения, возникающие от таких слоев, довольно быстро “зарастают”. Роль слоя InAs заключается главным образом в том, что он сдвигает атомные слои верхнего слоя относительно нижнего на некоторую величину *u* порядка межатомного расстояния (рис.2). Вклад от этого слоя в дифракционное рассеяние довольно мал, и в первом приближении им можно пренебречь, в то время как вызываемый этим слоем сдвиг основных слоев приводит к дополнительной фазе

$$\Phi = K_h u \tag{1}$$

в амплитуде рассеяния верхнего слоя относительно нижнего (K_h – модуль вектора обратной решетки). Ранее полагалось, что извлечение такого рода информации доступно лишь особым методам типа метода стоячих рентгеновских волн, где наряду с КДО из-

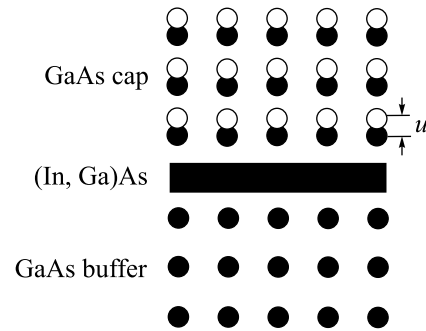


Рис.2. Трехслойная модель исследованной структуры

меряется одновременно угловая зависимость выхода фотоэлектронов или фотолюминесценции, сопровождающих дифракцию рентгеновских лучей (см., например, [3, 6]). Цель настоящей работы – показать, что малые смещения атомных слоев, вызываемые тончайшим инородным слоем, могут быть определены с помощью только одного метода двухкристальной рентгеновской дифрактометрии и с использованием довольно простого анализа.

В качестве первой модели для анализа естественным кажется использование трехслойной модели типа изображенной на рис.2 с однородными по толщине слоями и абсолютно резкими границами между ними. Нетрудно увидеть, что такая модель не может быть использована для анализа всей КДО. Действительно, выращиваемые слои не являются однородными, в них происходят небольшие изменения межплоскостного расстояния, а также степени их совершенства. И по этой причине такую модель нельзя использовать для анализа центральной части кривой в ближайшей окрестности брэгговского пика. В то же время, такая модель явно не подходит для анализа далеких крыльев КДО, так как дифракционное рассеяние в этих угловых областях в существенной степени зависит от структуры межслойных границ. При этом можно полагать, что существует некоторая область промежуточных углов, где предполагаемая модель рис.2 должна хорошо описывать форму КДО.

Для трехслойной системы с резкими границами в случае идеальной коллимации падающего пучка нетрудно получить следующее довольно простое выражение для коэффициента дифракционного отражения $R(\Delta\theta)$, справедливое для широкой области углов вдали от брэгговского пика [3]:

$$R(\Delta\theta) = \left| \frac{1 - \exp(i\Delta q L)}{\Delta\theta} f_c + \frac{\exp(i\Delta q L + i\Phi)}{\Delta\theta} f_s \right|^2 + R_b, \tag{2}$$

где $\Delta q = -(2\pi/\lambda) \cdot 2 \cos \theta_B \Delta\theta$ – переданный импульс за вычетом вектора обратной решетки, λ – длина вол-

ны рентгеновского излучения, $\Delta\theta$ – отклонение от точного угла Брэгга θ_B , L – толщина верхнего слоя, f_c и f_s – статические факторы Дебая – Валлера для верхнего и буферного слоев, соответственно, Φ – фаза, определяемая формулой (1), и R_b – вклад диффузного фона.

Введем приведенную интенсивность отражения, определяемую согласно следующему выражению:

$$\tilde{I}(\Delta\theta) = [R(\Delta\theta) - R_b] \cdot (\Delta\theta)^2. \quad (3)$$

Эта величина была введена в работе [1] (см. также монографию [3]). Нетрудно увидеть из формулы (2), что для приведенной интенсивности (3) можно получить довольно простое выражение:

$$\tilde{I}(\Delta\theta) = B - A \sin(\Delta q L + \varphi), \quad (4)$$

где величины A и B выражаются через исходные параметры Φ , f_c и f_s :

$$A = 2f_c \sqrt{(f_c - f_s)^2 + 4f_s f_c \sin^2(\Phi/2)}, \quad (5)$$

$$B = f_c^2 + (f_c - f_s)^2 + 4f_s f_c \sin^2(\Phi/2), \quad (6)$$

$$\tan \varphi = \frac{f_c - f_s \cos \Phi}{f_s \sin \Phi}. \quad (7)$$

Как видно из формулы (4), приведенная интенсивность $\tilde{I}(\Delta\theta)$ представляет собой сумму константы и синусоиды, период которой определяется толщиной верхнего слоя L , а ее амплитуда – фазой Φ и факторами f_c и f_s . Обычно подложка и буферный слой вырабатываются с достаточно высокой степенью совершенства, так что факторы f_c и f_s близки к единице. В этом случае

$$A \approx 4 \sin(\Phi/2), \quad B \approx 1 + 4 \sin^2(\Phi/2), \quad \varphi \approx \Phi/2. \quad (8)$$

То есть в этом случае амплитуда и фаза синусоиды (4), а также ее средняя линия непосредственно определяются искомой фазой Φ . Мы специально привели простые формулы (8), чтобы продемонстрировать возможность определения фазы Φ в ряде случаев простейшим способом, не требующим какого-либо сложного математического анализа.

Вернемся теперь к экспериментальным данным, представленным на рис.1б. На рис.3а представлена приведенная интенсивность отражения для левой части этой кривой. Видно, что в области углов приблизительно от -700 до -100 угл. с характером осцилляций сильно напоминает обычную синусоиду. На рис.3б как раз и представлена экспериментальная кривая в этой области углов, и, кроме того, на нее

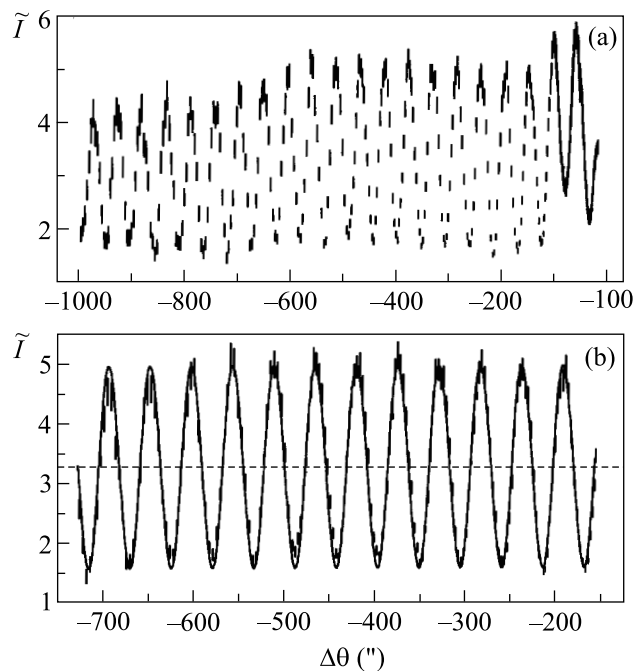


Рис.3. Приведенная интенсивность дифракционного отражения (штрихи) в широком угловом интервале (а) и в области фазовой информации (б), где сплошной линией показана кривая, рассчитанная по формуле (4)

наложена кривая, рассчитанная в соответствии с формулой (4). Видно, что эта простая зависимость очень хорошо описывает экспериментальные данные. Таким образом, существенная часть кривой отражения (около 200 экспериментальных точек) “работает” на фазовую информацию. Параметры синусоиды легко определяются и равны $L = 412$ нм, $A = 1.7$, $B = 3.3$ и $\varphi = 1.4$, и по этим данным с помощью формул (4)–(7) нетрудно восстановить фазу Φ , а также факторы f_c и f_s , определяющие совершенство верхнего и буферного слоев.

Однако следует принять во внимание, что в эксперименте измеряется не сама кривая отражения от образца, а ее свертка с кривой отражения от кристалла-монокроматора, то есть величина

$$\bar{R}(\Delta\theta) = \int_{-\theta_s}^{\theta_s} R(\Delta\theta - \theta) R_m(\theta) d\theta, \quad (9)$$

где $R_m(\theta)$ – кривая отражения от кристалла-монокроматора, а θ_s определяется системой щелей в соответствии с простыми геометрическими построениями. Приведенные нами экспериментальные

данные относятся не к величине, определяемой формулой (3), а к величине

$$\bar{I}(\Delta\theta) = [\bar{R}(\Delta\theta) - R_b] \cdot (\Delta\theta)^2. \quad (10)$$

Для определенной таким образом приведенной интенсивности мы уже не имеем простых аналитических выражений типа (4)–(7). В этом случае следует использовать метод подгонки в соответствии с процедурой, описанной в [5]. Проведенный же выше упрощенный анализ по формулам (4)–(7) указывает лишь на возможность хорошего описания экспериментальных данных в области углов $-700 \div -150$ угл. с в рамках простейшей трехслойной модели. На рис.4 приведена измеренная КДО в логарифмическом масштабе

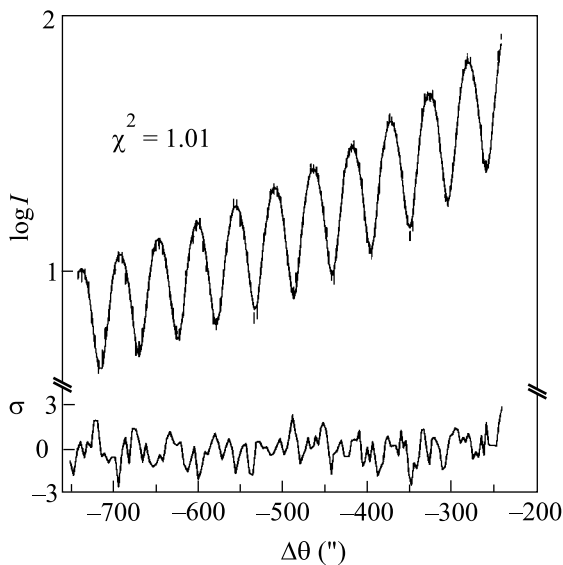


Рис.4. Экспериментальная КДО (штрихи) в угловой области фазовой информации и теоретическая кривая (сплошная линия), рассчитанная в трехслойной модели ($\chi^2 = 1.01$). Приведена также кривая отклонений (σ) расчетной КДО от экспериментальной в единицах стандартных отклонений

для данного интервала углов. На этом же рисунке сплошной линией изображена расчетная кривая для трехслойной модели, дающая наилучшее согласие с экспериментальными данными. Величина χ^2 , определяющая критерий согласия, очень близка к единице и равна 1.01, что свидетельствует о хорошем качестве подгонки. Кроме того, на рис.4 приведена кривая отклонений расчетной КДО от экспериментальной:

$$\sigma(\Delta\theta) = [I_{\text{calc}}(\Delta\theta) - I_{\text{exp}}(\Delta\theta)]/s(\Delta\theta), \quad (11)$$

где $I_{\text{calc}}(\Delta\theta)$ и $I_{\text{exp}}(\Delta\theta)$ – расчетная и измеренная интенсивности дифракционного отражения, а $s(\Delta\theta)$ –

погрешность измерений. Качество подгонки считается хорошим, если величина σ распределена в интервале $-3 \div 3$ [7], что в нашем случае превосходно выполняется. В первой колонке таблицы приведены соответствующие значения параметров слоев и сред-

Структурные параметры слоев и параметры синусоиды (4)

Модель рис.4		Модель рис.3b
$L = 411.9(2)$ нм		$L = 412.4(2)$ нм
$f_c = 0.77(2)$	$A = 2.5(1)$	$A = 1.65(2)$
$f_s = 1.00(2)$	$B = 3.43(4)$	$B = 3.32(1)$
$\Phi = 0.90(8)\pi$	$\varphi = 1.4(1)$	$\varphi = 1.46(2)$

неквадратичные ошибки в их определении, во второй колонке – рассчитанные с использованием этих данных по формулам (5)–(7) значения параметров синусоиды (4), а в третьей колонке – значения параметров синусоиды (4), восстановленные из приведенных экспериментальных данных рис.3b. Видно, что параметры L , B и φ синусоиды (4) для двух вариантов подгонки хорошо совпадают, тогда как параметры A сильно отличаются. Это различие как раз и связано с необходимостью усреднения по кривой отражения кристалла-монокроматора (9), что прежде всего приводит к уменьшению амплитуды осцилляций на результирующей кривой отражения.

Как следует из полученных данных, фаза Φ определяется с довольно высокой точностью (порядка 10%), а соответствующий этой фазе сдвиг верхнего слоя относительно буфера $u = 0.1a$ (a – параметр кристаллической решетки), а именно, составляет величину $0.56(5)$ Å. Таким образом, метод ДРД позволяет фиксировать сам по себе, без привлечения дополнительных фазово-чувствительных методов (например, метода стоячих рентгеновских волн), малые смещения отдельных слоев в сложных многокомпонентных системах. Отметим также, что данный пример показывает, что значимость специальных фазово-чувствительных методов в структурном анализе может быть сильно завышена. Как правило, такие методы обладают слабой светосилой по сравнению с обычными методами типа ДРД, которые рассматриваются как не дающие возможности прямого определения фаз. Однако, как показал проведенный выше анализ, набор хорошей статистики в методе ДРД позволяет также извлечь и фазовую информацию. Более того, основная цель данной работы – продемонстрировать, что в ряде случаев возможно и прямое определение фаз на основе только, напри-

мер, метода двухкристальной рентгеновской дифрактометрии.

Отметим, что анализ всей совокупности экспериментальных данных, представленных на рис.1b, естественно, не может быть проведен в рамках простейшей трехслойной модели рис.2 и требует существенного усложнения модели за счет введения дополнительных субслоев вблизи соответствующих границ раздела. Такой анализ может быть проведен в рамках подхода, развитого в [5]. Так, на рис.1b сплошной линией показана кривая, рассчитанная в модели структуры с более чем 10-ю дополнительными субслоями. Подробные результаты такого анализа будут опубликованы отдельно.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 00-02-17716) и Министерства промышленности, науки и технологий РФ (подпрограмма “Перспективные технологии и устройства микро- и на-

ноэлектроники”, государственный контракт # 204-8-(00)-П).

1. С. С. Якимов, В. А. Чапманов, А. М. Афанасьев и др., Письма в ЖЭТФ **39**, 3 (1984).
2. А. М. Afanas'ev, P. A. Alexandrov, R. M. Imamov et al., Acta Cryst. **A41**, 227 (1985).
3. А. М. Афанасьев, П. А. Александров, Р. М. Имамов, Рентгенодифракционная диагностика субмикронных слоев, М.: Наука, 1989.
4. I. K. Robinson, Phys. Rev. **B33**, 3830 (1986).
5. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Р. М. Имамов и др., Кристаллография **42**, 514 (1997); **43**, 926 (1998); **45**, 715 (2000).
6. М. В. Ковальчук, В. Г. Кон, УФН **149**, 69 (1986).
7. В. Идье, Д. Драйард, Ф. Джеймс и др., Статистические методы в экспериментальной физике, М.: Атомиздат, 1976.