

InAsP/InGaAsP/InP 应变材料的二维 倒空间衍射研究*

黄占超 吴惠桢[†] 劳燕锋 刘 成 曹 萌

(中国科学院上海微系统与信息技术研究所 信息与功能材料国家重点实验室, 上海 200050)

摘要: 采用 X 射线衍射三轴二维倒空间衍射图研究了 InP(100)衬底上分子束外生长的压应变 InAsP 材料和张应变 InGaAsP 材料. 实验测定了两种材料的(004)面、(224)面的倒空间衍射图, 得到了处于部分弛豫状态的 InGaAsP 在不同方向呈现不同的应变状态. 排除了外延层倾斜及应变对确定失配度的影响, 准确计算得到 InAsP 外延层体失配度为 1.446%, InGaAsP 外延层体失配度为 -0.5849%, 并且生长了高质量的应变补偿 8 阱多量子阱.

关键词: X 射线衍射; 倒空间 mapping; 应变; 量子阱

PACC: 6110M; 6885

中图分类号: TN304.2⁺6

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2006)S0-0058-06

1 引言

InAsP/InGaAsP 应变补偿量子阱因为有着较大的导带带阶, 在半导体激光器中, 可以提高发光效率, 降低器件的阈值电流, 所以近年来被广泛应用^[1~3]. 生长高质量的 InAsP/InGaAsP 应变补偿量子阱很重要的一点就是确定单层压应变 InAsP 和张应变 InGaAsP 的失配度, 使量子阱激射波长与理论计算相一致, 并降低量子阱的总失配度, 得到高质量的应变补偿量子阱. 高分辨率 X 射线衍射技术是目前研究材料晶体质量十分有效的方法. 通过 XRD 摇摆曲线可以获得外延材料的晶格弛豫、组份、偏向角、外延材料的倾斜等信息. 但通过摇摆曲线计算外延材料的失配度和组分时, 只有完全应变和完全弛豫两种模型, 因此计算部分弛豫外延材料的失配度时误差较大, 与摇摆曲线相比, X 射线衍射二维倒易空间图具有更加丰富的信息. 通过 X 射线衍射二维倒易空间衍射图中倒空间点的形状和分布, 可以将材料的 mosaic 结构展宽与应变、弛豫信息加以区分, 定性分析外延材料的晶体质量. 通过确定外延材料和衬底材料倒空间位置, 可以研究处于不同应变状态材料的垂直和平行于衬底表面的失配度, 计算其总体弛豫程度, 准确得到外延材料的失配度, 从而可以生长出高质量的应变补偿量子阱^[4~7].

本文采用高分辨率 X 射线衍射二维倒易空间衍射图研究了压应变 InAsP、张应变 InGaAsP 单层

材料的晶体质量及其应变分布, 计算了材料的水平与垂直失配度, 得到了压应变 InAsP 和张应变 InGaAsP 单层材料的体弛豫度和体失配度. 并根据得到的参数生长出了高质量的 InAsP/InGaAsP 应变补偿多量子阱.

2 实验原理

图 1(a)为 X 射线(004)面对称衍射外延层和衬底的二维倒易空间晶格点(RLP)分布示意图. 图中, Q_x 方向平行于衬底表面, Q_z 方向垂直于衬底表面, 中间的黑点表示衬底的倒易点, 其下面的点表示压应变材料的倒易点, 而上面的点表示张应变材料的倒易点. 如果材料由于位错产生 mosaic 结构, 那么外延材料倒易点将沿 Q_x 方向展宽; 如果存在应变梯度, 那么外延材料倒易点将沿 Q_z 方向展宽; α , β 角是由于偏向角或者位错导致外延材料与衬底表面有一定倾斜. 此角度用来校正非对称衍射外延材料与衬底的夹角, 计算材料的失配度. Δq_z 为外延层和衬底倒空间点的垂直距离, 可以计算外延层的垂直失配度.

对材料水平、垂直弛豫程度表征, 采用非对称(224)面衍射二维倒易空间图. 在图 1(b)中, 表示了(224)面非对称衍射压应变外延层和衬底 RLP 分布示意图.

压应变外延材料的 RLP 出现在衬底的 RLP 的下方. 根据外延层和衬底晶格点阵实空间的分布可

* 国家重点基础研究发展计划资助项目(批准号:2003CB314903)

[†] 通信作者. Email: hzhu@mail.sim.ac.cn

2005-11-08 收到

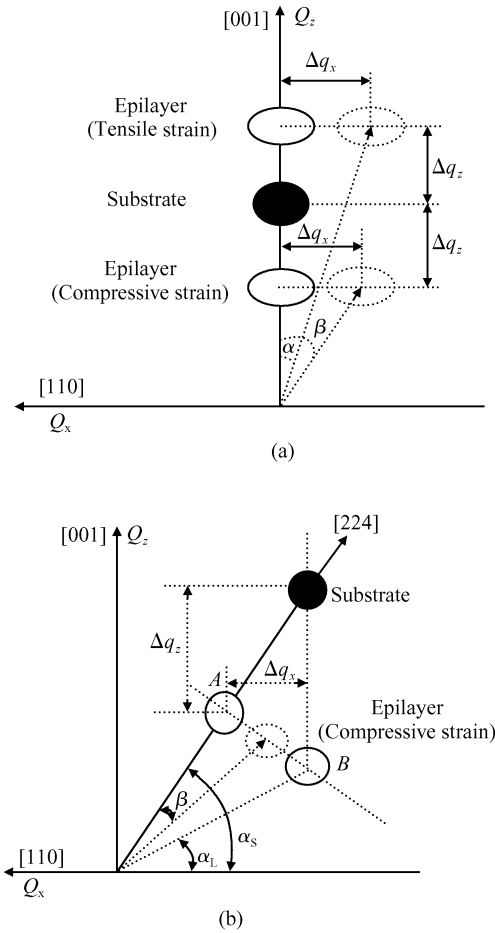


图1 (a) X射线(004)面对称衍射二维倒易空间晶格点阵分布示意图;(b) X射线(224)面非对称衍射二维倒易空间晶格点阵分布示意图

Fig.1 (a) Lattice Schematic diagram of X-ray(004) symmetrical diffraction in two-dimensional reciprocal-space;(b) Lattice schematic diagram of X-ray(004) asymmetrical diffraction in two-dimensional reciprocal-space

知,如果材料完全应变,则衬底 RLP 和外延材料的 RLP 垂直于 Q_x ,外延层 RLP 位于图中所示的 B 点,衬底和外延层在水平面内的晶格常数($a_{//}$)相同;如果外延材料完全弛豫,则衬底的 RLP 和外延层的 RLP 都在[224]方向上,外延层的 RLP 位于图中的 A 点,此时外延层在水平和垂直方向上的晶格常数为其实际的体晶格常数;如果外延材料处于部分弛豫状态,根据弛豫程度不同,则外延层 RLP 将沿直线 AB 分布,线段 AB 被称作弛豫线,其表征了外延材料弛豫程度的重要信息. Δq_x 是外延层和衬底 RLP 间的水平距离,根据外延层 RLP 的位置就可以计算出外延材料的水平失配度^[8].

3 实验

实验设备是高分辨率 X 射线衍射仪(HR XRD),倒空间二维 mapping 测试采用三轴模式.其入射 X 射线为 $CuK\alpha_1$ 线,用对称 Ge(220)面四晶单色器,发散角为 $12''$,探测器前采用 Ge(220)面三次反射分析仪,其接受角为 $12''$.倒空间 mapping 采用 $\omega/2\theta - \Delta\omega$ 联动扫描,根据 Bragg 衍射几何和 Ewald 球之间的关系,可以得到 $\omega, 2\theta$ 与倒空间散射矢量之间的关系, $Q_x = \frac{1}{\lambda} [\cos\omega - \cos(2\theta - \omega)]$, $Q_z = \frac{1}{\lambda} [\sin\omega + \sin(2\theta - \omega)]$. InAsP, InGaAsP 单层材料通过气态源分子束外延生长在 InP 衬底上, InAsP 厚度为 $0.8\mu m$, InGaAsP 厚度为 $1.0\mu m$.

4 结果与讨论

首先我们研究了不同方位角(Phi)下, InAsP, InGaAsP 外延层 ω 及其 $\omega/2\theta$ 扫描半高宽(FWHM)的变化.如图 2 所示,0 度被认为[110]方向,其他角度则是不同的 Phi 角.从图 2 中可以看出,不同入射方向下 InAsP 的 ω 及 $\omega/2\theta$ 扫描 FWHM 变化小于 10%. 这些变化不大,主要是由于材料中存在位错所导致,各个方向的弛豫程度相似,在测量 mapping 时,我们只测量[110]方位角. InGaAsP 在不同方位角下, ω 及 $\omega/2\theta$ 扫描 FWHM 的变化很大,[110]方向入射 (Phi = 0) FWHM 的变动为 -30%,而在 $[\bar{1}10]$ 或者 $[1\bar{1}0]$ (Phi = $\pm 90^\circ$) 入射方向附近 FWHM 的变动为 30%. 这可能是外延材料中的应力没有完全释放,导致材料沿不同方向有不同的弛豫程度.所以对 InGaAsP 测量 mapping 时,我们测量了[110]和 $[\bar{1}10]$ 两个方向,分析材料应变弛豫状况,计算其失配度.

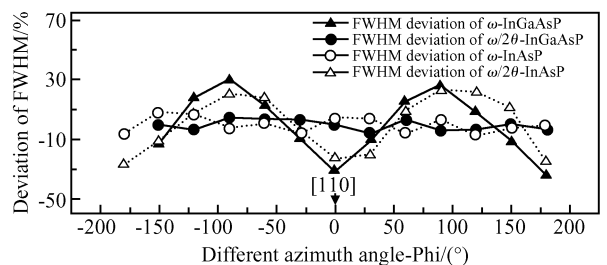


图2 不同方位角下, InAsP, InGaAsP 外延层 ω 及其 $\omega/2\theta$ 扫描半高宽(FWHM)的变化
Fig.2 Variation of FWHM of ω and $\omega/2\theta$ scans with azimuth angle

按上面所述实验步骤,首先测试 InAsP mapping. 图 3(a)为压应变 InAsP 材料(004)面对称衍射倒空间图, X 射线[110]方向入射. 图中上面的点为衬底 InP 的 RLP, InAsP RLP 在 InP 下面. 我们可以看到衬底的 RLP 呈圆形, 没有发生扭曲变形. 但 InAsP RLP 在平行于衬底表面的[110]方向上发生了很大的展宽, 其半峰宽为 1278s, 而在垂直于衬底方向上, 其半峰宽只有 121s. 这说明 InAsP 外延层由于存在很高的位错密度, 位错网络产生的 mosaic 结构使 RLP 在平行于表面的方向发生了极大展宽. 而在垂直于衬底方向上, 其半峰宽较小并且

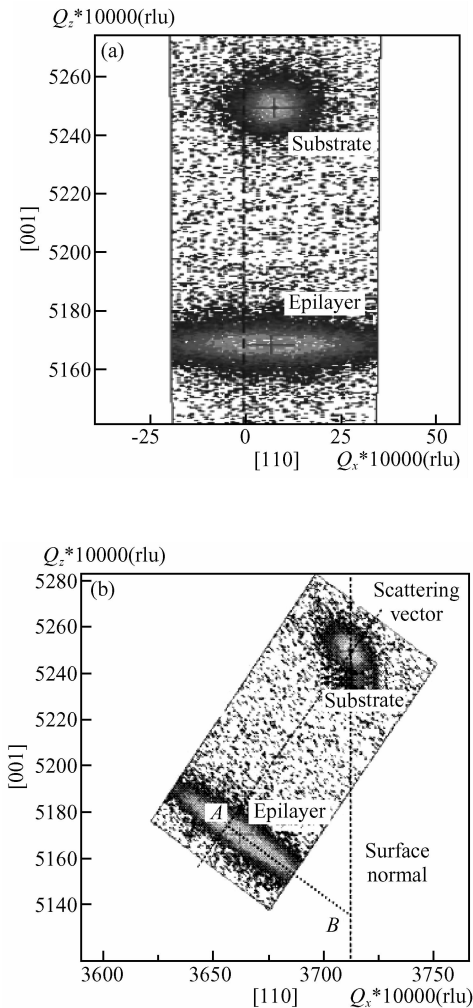


图 3 (a)压应变 InAsP(004)面对称衍射 RLP 分布图; (b)压应变 InAsP(224)面非对称衍射 RLP 分布图

Fig.3 (a) RLP distribution map of (004) symmetrical diffraction of compressive-strain InAsP; (b) RLP distribution map of (224) asymmetrical diffraction of compressive-strain InAsP

RLP 对称, 则不存在应变梯度. 由于测试时衬底不能完全与测试平台平行, 在图 3(a)中, 衬底 RLP 的中心偏离了倒空间原点处的法线, 而且由于外延层

中的位错作用和衬底并非完全正晶向, 外延层的 RLP 与衬底 RLP 存在一小的夹角, 其夹角为 0.01° . 此夹角将用来校正(224)面衍射时, 外延层和衬底的角度差, 从而准确计算失配度.

图 3(b)是(224)面非对称衍射倒空间图. 可以明显看出, InAsP 外延层在垂直于散射矢量方向上, 同样发生了 mosaic 展宽. InAsP RLP 的中心位于弛豫线 AB 上并靠近散射矢量, 从而说明 InAsP 外延层接近完全弛豫. 根据 InAsP(004)对称衍射和(224)非对称衍射 RLP 的位置, 计算 InAsP 的水平方向和垂直方向的失配度. 倒空间中, 外延层水平和垂直失配通过(1)和(2)式进行计算^[9].

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\perp} = -\frac{\Delta q_{\perp}^{004}}{4/a_0 + \Delta q_{\perp}^{004}} \quad (1)$$

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\parallel} = -\frac{\Delta q_{\parallel}^{224}}{\sqrt{8}/a_0 + \Delta q_{\parallel}^{224}} \quad (2)$$

(1)式为外延层垂直于衬底表面的失配度; (2)式为外延层平行于衬底表面的失配度; a_0 为衬底晶格常数. 在(224)面衍射中, 减去外延层倾斜 0.01° 对失配计算的影响, 衬底和外延层与(004)面所成角度为 54.739° 和 54.689° . 根据上式计算得到 InAsP 外延层垂直失配度为 1.545%, 水平失配度为 1.357%. 然后根据(3)和(4)式计算 InAsP 的体失配度 f 和弛豫度 R .

$$f = \frac{a_{\text{layer}} - a_{\text{sub}}}{a_{\text{sub}}} = \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\perp} + \frac{\nu}{1 + \nu} \left[\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{[1\bar{1}0]} + \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{[110]} \right] \quad (3)$$

$$R_{(110)} = \left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{(110)} / f \quad (4)$$

ν 为外延层的泊松比, 假设 InAsP[110]和[1 $\bar{1}$ 0]方向的应变相同, 根据(3)式, 对 InAs $_x$ P $_{1-x}$ 来说, $x = \frac{fa_{\text{InP}}}{a_{\text{InAs}} - a_{\text{InP}}}$, ν 也是与材料组分有关的变量, 所以通过迭代就可以得到材料的组分. 但对于四元系 InGaAsP 只能确定其失配度, 组分的计算需要结合其他方法.

图 3 中我们得到 InAsP 体失配为 1.446%, [110]方向上的弛豫度为 93.84%, 接近完全弛豫, As 的含量为 44.62%. 这与通过摇摆曲线得到的 As 组分差别达到 7.62%.

根据以上的分析, 然后测试 InGaAsP 在[110]方向上的(004)和(224)面的倒空间 mapping, 见图 4. 在图 4(a)中, 衬底和外延层的 RLP 都偏离了倒空间原点处的法线, 外延层的 RLP 水平方向的 FWHM 为 266s, 比 InAsP 水平方向 FWHM 1278s 小了很多, 而在垂直方向上其 FWHM 为 351s, 比 InAsP 垂直方向的 FWHM 121s 大. 从图中可以明

显看到,外延层的 RLP 在垂直方向上拉长,有一个向上的很大延伸,说明实空间张应变的 InGaAsP 垂直方向的晶格常数在衬底界面较小,远离界面逐渐增大,从 InP 与 InGaAsP 的界面到外延层表面存在

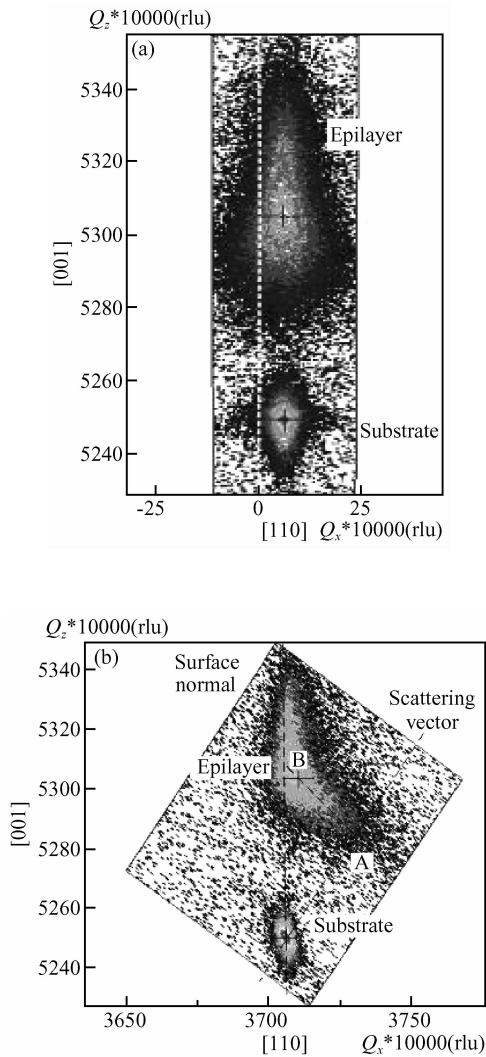


图4 (a)[110]方向张应变 InGaAsP(004)面对称衍射 RLP 分布图;(b)[110]方向张应变 InGaAsP(224)面非对称衍射 RLP 分布图

Fig.4 (a) RLP distribution map of (004) symmetrical diffraction of tensile-strain InGaAsP in [110] direction;(b) RLP distribution map of (224) asymmetrical diffraction of tensile-strain InGaAsP in [110] direction

应变梯度.而衬底 RLP 则向下也有一个延伸,这正好说明了外延层的应力对衬底也有很大的作用力,致使衬底表面在垂直方向上的晶格常数变大.在图4(b)中我们看到,外延层 RLP 发生了很大变形,呈现出一个三角形状.InGaAsP RLP 靠近衬底表面的法线,远离开散矢量的方向,在垂直方向上拉长,并且沿着弛豫线的方向上也有拉长.这又说明 In-

GaAsP 外延层中存在着应变梯度,从靠近衬底的界面处向上逐渐弛豫,材料总体上还是处于一个应变状态.根据(1)和(2)式,我们得到在[110]方向上, InGaAsP 外延层的垂直失配 $(\Delta a/a)_{\perp} = -1.0286\%$,水平失配 $(\Delta a/a)_{\parallel} = -0.0794\%$,材料几乎处于完全应变.

为了能够更加清楚的表征 InGaAsP 的晶体质量,我们又测试了 $[1\bar{1}0]$ 方向(004)和(224)面的倒空间 mapping,见图5.图5中 InGaAsP 外延层的

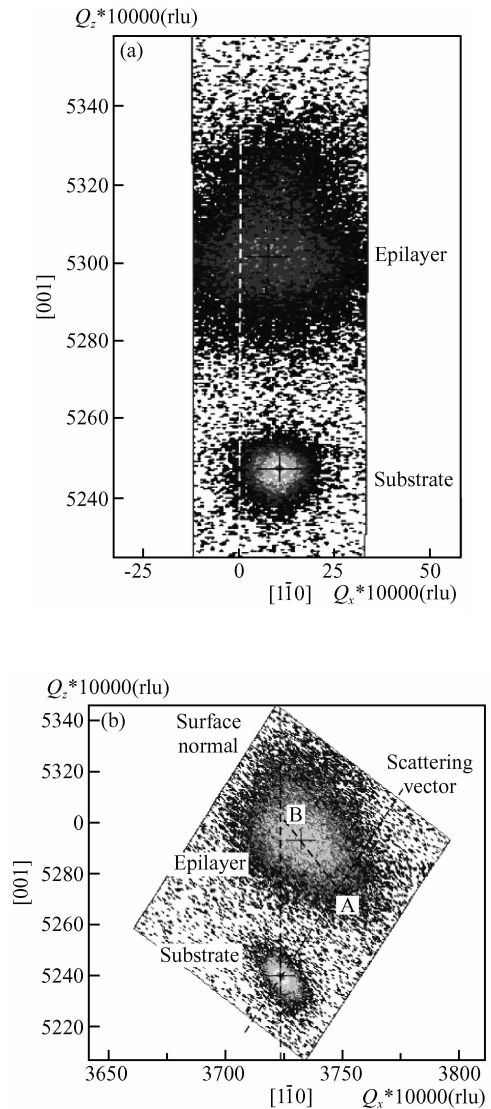


图5 (a)[1 $\bar{1}0$]方向张应变 InGaAsP(004)面对称衍射 RLP 分布图;(b)[1 $\bar{1}0$]方向张应变 InGaAsP(224)面非对称衍射 RLP 分布图

Fig.5 (a) RLP distribution map of (004) symmetrical diffraction of tensile-strain InGaAsP in [1 $\bar{1}0$] direction;(b) RLP distribution map of (224) asymmetrical diffraction of tensile-strain InGaAsP in [1 $\bar{1}0$] direction

RLP 与图 4 中有很大的不同,图(a)中,外延层和衬底的 RLP 在垂直方向上没有明显的拉伸,但在水平方向上发生了很大的展宽,其水平方向的 FWHM 为 507s,比图 4(a)中,水平方向的 266s 大,但是比 InAsP 水平方向的 FWHM1314s 小了很多,从而也可以初步判断此方向材料的弛豫度处于 InAsP 和 InGaAsP[110]方向弛豫度之间.

在图 5(b)中,外延层的 RLP 沿着弛豫线拉长,但在垂直于表面的方向没有明显拉伸,此方向上材料的应变梯度也不明显. RLP 不再靠近表面法线,从而说明外延层处于部分弛豫状态. 根据(1)和(2)式,我们得到在 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向上,InGaAsP 外延层的垂直失配 $(\Delta a/a)_{\perp} = -1.0167\%$,水平失配 $(\Delta a/a)_{\parallel} = -0.2506\%$. 与 $[110]$ 方向的垂直失配度相比,两者只有 0.0119% 的差别,但是水平失配度 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向比 $[110]$ 方向大了 0.1712%. 这说明材料处于一种应变弛豫状态,但是沿不同方向,材料的应变不同. 这可能是在相同的应力作用下,沿不同方向材料的弹性系数不同,从而导致了不同的应变分布以及位错分布,也就出现了上面所说不同入射方向不同 mapping 的情况. 如果材料完全弛豫,那么各个方向

全部弛豫,外延材料表现出来的是一种体材料的特性,每个方向就具有相同的失配度.

结合图 4,图 5 和(3),(4)式,InGaAsP 的体失配度为 -0.5849% , $[110]$ 方向的弛豫度为 13.6%, $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向的弛豫度为 42.8%. 与通过摇摆曲线应变模型得到的失配度相比,误差达到 6.2%.

得到单层材料的准确失配度后,根据设计我们生长了应变补偿 InAsP/InGaAsP 多量子阱($\times 8$),阱层 InAsP 的厚度为 9nm,垒层 InGaAsP 厚度为 10nm. 为了更好地分析量子阱中水平方向、垂直方向的应变及其弛豫,界面的粗糙度,我们测定了量子阱的 XRD mapping,见图 6. 从图中我们可以看到,除了衬底 RLP 外,我们还可以看到很多卫星峰,并且卫星峰之间出现了小的衍射峰. 图中衬底峰和卫星峰在 ω 方向上有许多小点,这主要是由于量子阱界面不平整所致. 但衬底峰和卫星峰在 ω 方向的 FWHM 均小于 10s,在 $\omega/2\theta$ 方向的平均 FWHM 为 60s. RLP 在 ω 方向没有位错产生的 mosaic 展宽,但是明显沿 $\omega/2\theta$ 方向展宽. 这些说明外延材料的应变在生长方向上有一定梯度, MQW 中具有很低的位错密度,应变补偿降低了 MQW 的位错密度^[10].

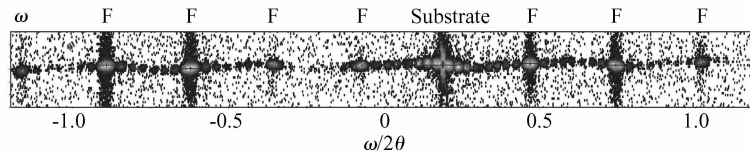


图 6 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向,InAsP/InGaAsP 应变补偿多量子阱($\times 8$)XRD 倒空间 mapping

Fig. 6 XRD mapping of InAsP/InGaAsP compressive-tensile multi-quantum wells ($\times 8$) in reciprocal-space in $[\bar{1}\bar{1}0]$ direction

5 结论

通过倒易空间二维 mapping,直观分析了 InP (100)衬底上分子束外延生长的压应变 InAsP 和张应变 InGaAsP 材料的晶体质量,在部分弛豫外延层中应变不均匀分布. 通过分析 mapping,得到了 InAsP 的体失配度为 1.446%, $[110]$ 方向的弛豫度为 93.84%; InGaAsP 的体失配度为 -0.5849% , $[110]$ 方向的弛豫度为 13.6%, $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向的弛豫度为 42.8%,从而纠正了通过 XRD 摇摆曲线测量失配度的误差. 根据确定的参数生长出了符合设计波长的高质量低位错密度的应变补偿多量子阱结构.

参考文献

[1] Miller B, Koren U, Young M G, et al. Strain-compensated strained-layer superlattices for 1.5 μm wavelength lasers. *Ap-*

pl Phys Lett,1991,58:1952

- [2] Chung H Y, Stareev G, Joos J, et al. Gas source MBE growth of 1.3 μm -InAsP/InGaAsP quantum wells GRINSCHE laser showing low threshold current density and high output power. *J Cryst Growth*,1999,201/202:909
- [3] Zhang Y G, Chen J X, Chen Y Q, et al. Characteristics of strain compensated 1.3 μm InAsP/InGaAsP ridge waveguide laser diodes grown by gas source MBE. *J Cryst Growth*,2001,227/228:329
- [4] Fewster P F. X-ray scattering from semiconductors. London: Imperial College Press,2000
- [5] Fewster P F. X-ray diffraction from low-dimensional structures. *Semiconductor Science and Technology*,1993,8:1915
- [6] Václav Holy, et al. High-resolution X-ray scattering from thin films and multilayers. Berlin:Springer-Verlag,1999
- [7] Van der Sluis P. Determination of strain in epitaxial semiconductor layers by high-resolution X-ray diffraction. *J Phys D:Appl Phys*,1993,26:A188
- [8] Heinke H, Möuer M O, Hommel D, et al. Relaxation and mosaicity properties in epitaxial layers studied by high resolution X-ray diffraction. *J Cryst Growth*,1994,135:41
- [9] Chauveau J M, Androussi Y, Lefebvre A, et al. Indium con-

tent measurements in metamorphic high electron mobility transistor structures by combination of X-ray reciprocal space mapping and transmission electron microscopy. *J Appl Phys*, 2003, 93(7): 4219

[10] Huang Z C, Wu H Z, Lao Y F, et al. GSMBE growth and characterizations of AlInP/InGaAsP strain-compensated multiple-layer heterostructures. *J Cryst Growth*, 2005, 281: 255

XRD Reciprocal Space Mapping of InAsP/InGaAsP/InP Strain Epilayers*

Huang Zhanchao, Wu Huizhen[†], Lao Yanfeng, Liu Cheng, and Cao Meng

(State Key Laboratory of Functional Materials for Informatics, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, China Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

Abstract: The strain state of compressed InAsP and tensile InGaAsP layers, which are grown on (100) InP substrate by molecular beam epitaxy, is investigated through X-ray triple-axis diffraction mapping. (004) and (224) plane diffraction mappings of two materials are tested. The results indicate that partly relaxed InGaAsP epilayer has different strains at different azimuth. Excluding the influence of tilt and strain of epilayer, we accurately calculate the bulk mismatch of InAsP and InGaAsP, which is 1.446% and -0.5849%, respectively. And high quality strain-compensated multiple quantum wells (8) is grown according to these precise parameters.

Key words: X-ray diffraction; reciprocal space mapping; strain; quantum wells

PACC: 6110M; 6885

Article ID: 0253-4177(2006)S0-0058-06

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (No. 2003CB314903)

[†] Corresponding author. Email: hzwu@mail.sim.ac.cn

Received 8 November 2005