

MBE GaAs/AlAs 一维超晶格结构参数的X 射线双晶衍射测量

王 玉 田 陈 宗 圭

(中国科学院半导体研究所)

1985 年 8 月 21 日收到

用 X 射线双晶衍射法测定了 MBE GaAs/AlAs 一维超晶格的衍射迴摆曲线。除超晶格的主衍射峰外,还观察到一级和二级卫星峰。由这些衍射峰之间的角距离 $\Delta\theta$, 计算出超晶格的周期宽度 D , 进而确定 AlAs 层厚 L_B 和 GaAs 层厚 L_z 。

一、引 言

半导体超晶格材料是具有特定能带结构的人工晶体,在半导体基础物理研究和器件应用研究方面都是十分引人注目的领域^[1,2]。我们利用国产分子束外延设备,生长了不同周期、不同层厚的 GaAs/AlAs 超晶格材料。分子束外延类似于超高真空下的蒸发,入射到衬底表面的分子束流可以用炉子挡板的开闭来控制。而挡板的启动时间一般小于生长单原子层的时间,所以分子束外延可以生长薄至几个原子层,并具有单原子层陡变的超薄多层异质结结构。图 1 是 GaAs/AlAs 一维超晶格的示意图。在 (001)GaAs 衬底上,先生长一层厚度为 $1\mu\text{m}$ 的 GaAs 缓冲层,获得原子级平整的表面。在此表面上交叠生长 AlAs 和 GaAs 薄层,其层厚分别为 L_B 和 L_z ,超晶格的周期为 $D = L_B + L_z$ 。

X 射线双晶衍射是检测超晶格结构参数的主要方法^[3],与常用的 SIMS、AES 和 TEM

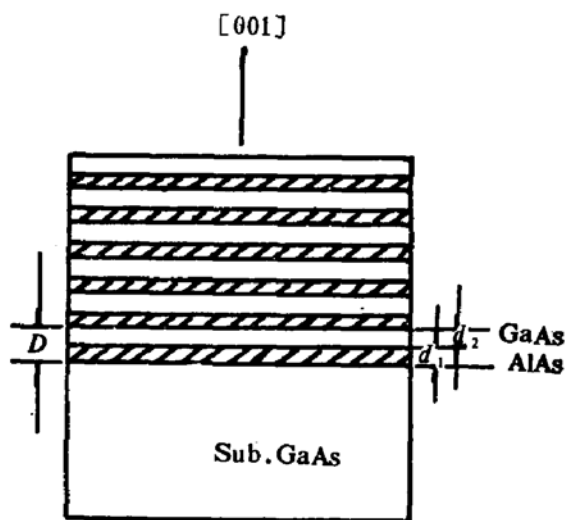


图 1 GaAs/AlAs 一维超晶格结构示意图

等检测手段比较,它具有不破坏样品、快速方便、测量精度高等优点。从 Bragg 定律出发,通过简单的计算公式,由衍射峰之间的角距离 $\Delta\theta$,即可推算出超晶格结构参数 D 、 L_B 和 L_s 等值。同时从衍射峰的半高宽 (FWHM) 还可以定性地确定超晶格材料的晶体质量与各层厚度的均匀性^[4]。

为了便于分析一维超晶格结构的 X 射线衍射谱,对超晶格晶胞做如下近似。在平行于衬底的水平方向,其晶格常数与衬底 GaAs 的晶格常数相同,即 $a' = b' = a_{\text{GaAs}}$ 。而在外延生长方向,晶格常数等于超晶格周期,即 $c' = D$ 。这样每个超晶格晶胞,在外延生长方向包含 n_1 个 AlAs 分子层和 n_2 个 GaAs 分子层,即共有 $N = 2(n_1 + n_2)$ 个原子层。众所周知,AlAs 的晶格常数 ($5.6611 \text{ \AA}$) 大于 GaAs 的晶格常数 ($5.6534 \text{ \AA}$),但在水平方向超晶格的晶格常数等于 a_{GaAs} ,所以在 AlAs 层中存在着生长方向的膨胀应力和水平方向的压缩应力。也就是说,在超晶格晶胞中存在着由晶格失配而产生的四方畸变,AlAs 层中的晶面间距在生长方向被拉长了。实际上,在超晶格结构中,由于超薄层的周期性外延,出现了晶格调制作用。超晶格晶胞可以看作是多种晶面间距的叠加。

二、实验方法与测试原理

本实验所用的方法是 X 射线双晶衍射迴摆曲线法^[5]。X 射线源的焦点为 $8 \times 0.04 \text{ mm}^2$,取 $\text{CuK}\alpha_1$ 辐射,光源功率为 0.8 kw ,第一狭缝宽 0.05 mm ,第二狭缝宽 0.02 mm ,所用单色器(即第一晶体)为高纯硅 422 衍射。本装置所测硅 333 衍射的最佳半高宽 $\beta = 6''$ 。在实验中,取衬底的 002,004 衍射, θ - 2θ 联动,自动记录超晶格的衍射峰。

当一束波长为 λ 的单色平行 X 射线照射一维超晶格时,其衍射规律遵守 Bragg 方程

$$2D \sin \theta = n\lambda. \quad (1)$$

其中 θ 为 Bragg 衍射角, D 为超晶格周期, n 为衍射级数。当 n 为超晶格晶胞中原子层数 N 时,超晶格的第 N 级衍射就出现在衬底 004 衍射附近,位于衬底 004 衍射的小角方向,这是由于一维超晶格的平均面间距 D/N 略大于 $d_{\text{Ga-As}}$ 。在超晶格第 N 级衍射峰的两边分布着 $N \pm 1, N \pm 2, N \pm 3 \cdots$ 卫星衍射。为方便起见,我们令超晶格的第 N 级衍射为 0 级衍射,而其卫星峰为 $\pm 1, \pm 2, \pm 3 \cdots$ 级衍射。同理,对于衬底的任何 hkl 衍射,我们都这样标识超晶格的衍射峰。

现在我们根据不同级数衍射峰间的角距离来确定超晶格的周期 D 。根据(1)式可知,对于不同级数的超晶格衍射峰,我们有:

$$\begin{aligned} & \vdots \\ 2D \sin \theta_{n-2} &= (n-2)\lambda \\ 2D \sin \theta_{n-1} &= (n-1)\lambda \\ 2D \sin \theta_n &= n\lambda \\ 2D \sin \theta_{n+1} &= (n+1)\lambda \\ 2D \sin \theta_{n+2} &= (n+2)\lambda \\ & \vdots \end{aligned}$$

只要取其中任意二个衍射峰,便可以确定周期 D 。若取超晶格的第 $n, n+1$ 级衍射,那

么

$$2D(\sin \theta_{n+1} - \sin \theta_n) = \lambda \quad (2)$$

令 n 级衍射为 0 级衍射,

$$2D(\sin \theta_{+1} - \sin \theta_0) = \lambda$$

$$D = \lambda / [2(\sin \theta_{+1} - \sin \theta_0)] = \lambda / \left(4 \cos \frac{\theta_{+1} + \theta_0}{2} \sin \frac{\theta_{+1} - \theta_0}{2} \right) \quad (3)$$

令 $\Delta\theta_{0,+1} = \theta_{+1} - \theta_0$, 于是

$$\begin{aligned} D &= \lambda / \left[4 \cos \left(\theta_0 + \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} \right) \sin \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} \right] \\ &= \lambda / \left[4 \left(\cos \theta_0 \cos \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} - \sin \theta_0 \sin \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} \right) \sin \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} \right] \end{aligned} \quad (4)$$

将含有 $\Delta\theta_{0,+1}$ 的三角函数做级数展开, 因为 $\Delta\theta_{0,+1}$ 对于 θ_0 而言是个很小的量, (对于 $50 \text{ \AA} < D < 500 \text{ \AA}$ 而言, $2 \times 10^{-2} > \Delta\theta_{0,+1} > 2 \times 10^{-5}$), 级数衰减很快, 取一级近似

$$D = \lambda / \left[2 \left(\cos \theta_0 - \frac{\Delta\theta_{0,+1}}{2} \sin \theta_0 \right) \Delta\theta_{0,+1} \right] \quad (5)$$

现在我们来确定超晶格中 GaAs 层厚 L_z 和 AlAs 层厚 L_B . 在 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 异质外延中, Al 含量 x 由下式确定^[6,7]:

$$x = \Delta\theta_{0,z} / \Delta\theta_{\text{AlAs}} \quad (6)$$

这里 $\Delta\theta_{0,z}$ 为 GaAs 衬底衍射峰与 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 外延峰间的角距离; $\Delta\theta_{\text{AlAs}}$ 为 GaAs 衬底峰与 AlAs 外延峰的角距离. 在 AlAs/GaAs 一维超晶格的 X 射线衍射中, 是平均晶格面间距起作用, 其“0”级衍射峰相当于 Al 含量为 $\bar{x}$ (超晶格中的平均 Al 含量) 的 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 外延层的衍射峰^[8], 于是

$$\bar{x} = L_B / D \quad (7)$$

$$\text{同时} \quad \bar{x} = \Delta\theta_{0,z} / \Delta\theta_{\text{AlAs}} \quad (8)$$

这里 $\Delta\theta_{0,z}$ 为超晶格的“0”级峰与 GaAs 衬底峰间的角距离, 而 $\Delta\theta_{\text{AlAs}}$ 则为分子束外延厚层 AlAs (约 $1\mu\text{m}$) 的衍射峰与衬底 GaAs 峰间的角距离. 根据(7)(8)两式可知

$$L_B = D\Delta\theta_{0,z} / \Delta\theta_{\text{AlAs}} \quad (9)$$

进而可知 L_z

$$L_z = D - L_B \quad (10)$$

只要我们在实验中测得了 $\Delta\theta_{0,+1}$, $\Delta\theta_{0,z}$, $\Delta\theta_{\text{AlAs}}$ 三个数值, 就可以精确确定超晶格参数 D , L_B 和 L_z .

三、结果与讨论

首先在 (001) GaAs 衬底上, 用分子束外延法生长 AlAs 单晶膜 (厚度约为 $1\mu\text{m}$), 用 X 射线双晶衍射法测定该样品的 $\Delta\theta_{\text{AlAs}}$. 对于衬底 004 衍射而言, 测得 $\Delta\theta_{\text{AlAs}} = 381''$ (弧秒). 进而根据方程 (1) 的微分式 $\Delta d/d = -\text{ctg}\theta\Delta\theta$ 计算出异质外延的晶格失配为 $\Delta a/a = 2.84 \times 10^{-3}$. 其中 a 为衬底 GaAs 的晶格常数 ($a_{\text{GaAs}} = 5.6534 \text{ \AA}$, $a_{\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}} =$

1.41335 Å)。这样可以计算出外延层 AlAs 的晶格常数 $a_{\text{AlAs}} = 5.6695 \text{ Å}$, $d_{\text{Al-As}} = 1.41738 \text{ Å}$ 。此值比 Segmüller 等人的四方畸变理论计算值^[8] (5.6677 Å) 要大。而 Rowland^[9] 对 (001) GaAs 衬底上液相外延 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 的晶格失配测量, 并由 Vegard 定理推算出的外延 AlAs 晶格常数为 5.6695 Å, 与本实验结果吻合甚好。

我们选用三个不同层厚的 MBE GaAs/AlAs 一维超晶格样品进行了 X 射线双晶衍射测量。图 2、图 3 和图 4 分别表示样品 No 1、No 2 和 No 3 的 004、002 衍射的迴摆曲线。在图 2 中我们看到, 在衬底 004 衍射峰的近旁出现了很强的超晶格“0”级衍射峰, 而在“0”级峰的两侧观察到“±1”, “±2”级卫星峰。由这些衍射峰间的角距离, 按 (5)、(9)、(10) 式计算出超晶格的结构参数 D , L_B 和 L_z 。

III-V 族化合物半导体晶体的外延生长应以分子层为单位而不应是以原子层为单位进行淀积。也就是说 L_B 和 L_z 中原子层的数目为偶数。如果 $d_{\text{Al-As}}$ 和 $d_{\text{Ga-As}}$ 分别表

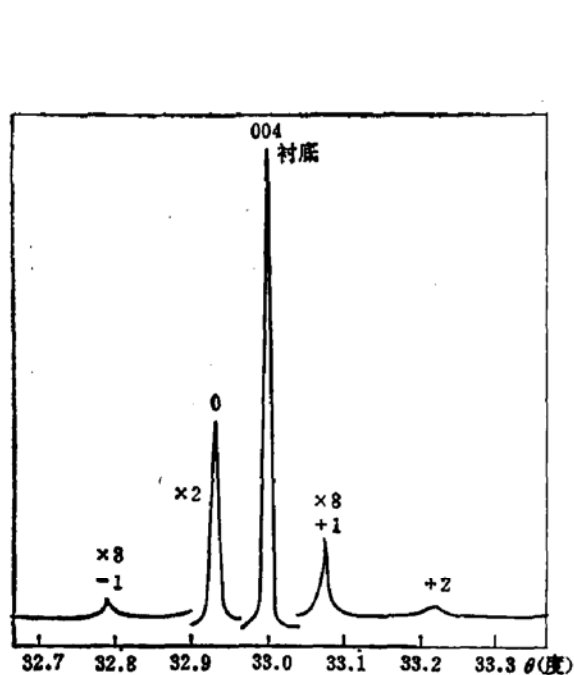


图 2 样品 No. 1 的 X 射线双晶衍射迴摆曲线 g 004

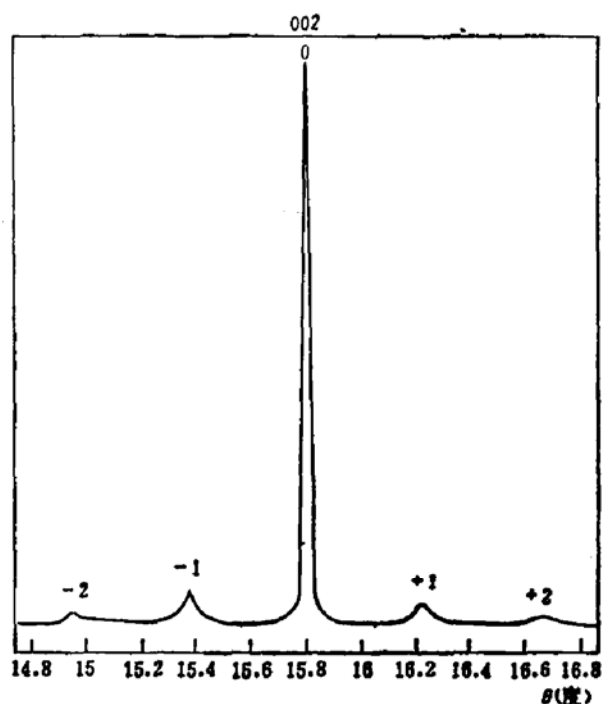


图 3 样品 No. 2 的 X 射线双晶衍射迴摆曲线 g 002

表 1 GaAs/AlAs 一维超晶格结构参数的测量值和修正值

样品号	周期	$\Delta\theta_{0,0}(s)$	$\Delta\theta_{0,0}^{+1}(s)$	测 量 值			分子层数			修 正 值		
				$D(\text{Å})$	$L_B(\text{Å})$	$L_z(\text{Å})$	N	n_1	n_2	$D(\text{Å})$	$L_B(\text{Å})$	$L_z(\text{Å})$
No. 1	15	230	510	371.7	224.4	147.3	262	79	52	370.94	223.95	146.99
No. 2	30	90	1523	108.5	25.6	82.9	76	9	29	107.48	25.51	81.97
No. 3	30	140	1859	88.9	32.7	56.2	64	12	20	90.55	34.02	56.53

示 AlAs 和 GaAs 层中[001]生长方向上的原子层间距,那么 L_B , L_Z 和 D 应表示为:

$$L_B = 2n_1d_{\text{Al-As}} \quad (11)$$

$$L_Z = 2n_2d_{\text{Ga-As}} \quad (12)$$

$$D = 2n_1d_{\text{Al-As}} + 2n_2d_{\text{Ga-As}} \quad (13)$$

式中 n_1 和 n_2 分别表示 AlAs 和 GaAs 层中分子层的数目。根据这一关系,可以对所测量的参数 L_B , L_Z 和 D 进行修正,给出更为精确的数值。例如样品 No2, 超晶格参数的测量值是 $D = 108.5 \text{ \AA}$, $L_B = 25.6 \text{ \AA}$, $L_Z = 82.9 \text{ \AA}$ 。由 (11)、(12) 和 (13) 式得 $2n_1 = 18$, $2n_2 = 58$, 从而其修正值应是 $L_B = 25.51 \text{ \AA}$, $L_Z = 81.97 \text{ \AA}$, $D = 107.48 \text{ \AA}$ 。表 1 列出了三个样品的超晶格结构参数的测量值和修正值。

从图 2 中可以看到超晶格的“0”级衍射峰的半高宽与衬底 GaAs 的衍射峰半高宽比较接近,这表示 GaAs/AlAs 超晶格材料的晶体质量是良好的^[4]。同时也表明在外延生长方向,超晶格结构的各周期厚度比较均匀、一致。因为“0”级峰的半高宽不仅取决于晶格完整性,而且也取决于 L_B 和 L_Z 值的波动。 L_B 和 L_Z 的任何波动都会引起超晶格衍射峰的展宽。

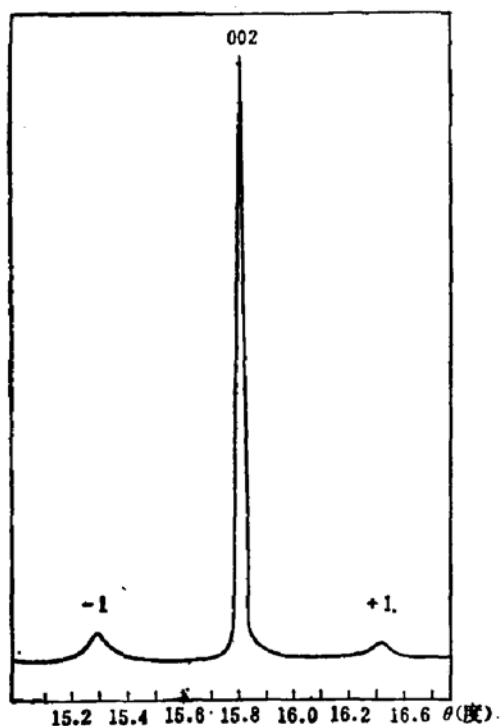


图 4 样品 No. 3 的 X 射线双晶衍射
扫描曲线 θ 002

参 考 文 献

- [1] H. Sakaks, 15th Conference on Solid State Devices and Materials 3(1983).
- [2] C. Gassard, Inst. Phys. Conf. Ser., 69, 1(1983).
- [3] T. Ishibashi Y. Suzuki and H. Okamoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20, L623(1981).
- [4] 罗江财, 半导体光电, 1, 94(1984).
- [5] J. Matsui, *J. Electrochem. Soc.*, 126, 664(1979).
- [6] E. Estop, A. Izrael and M. Sauvage, *ACTA Crystallographica (A)*, A32, 627(1976).
- [7] W. J. Bartels and W. Nijman, *J. Crystal Growth*, 44, 518(1978).
- [8] A. Segmüller, P. Krishna and L. Esaki, *J. Appl. Cryst.*, 10, 1(1977).
- [9] M. C. Rowland and D. A. Smith, *J. Cryst. Growth*, 38, 143(1977).

Measurement of One-Dimensional MBE GaAs/AlAs Superlattice Structure Parameters by X-Ray Double Crystal Diffractometry

Wang Yutian and Chen Zonggui

(Institute of Semiconductors, Academia Sinica)

Abstract

Double crystal X-ray rocking curve of one-dimensional MBE GaAs/AlAs superlattice has been measured. The first and second order satellite peaks around the main reflection appear in the superlattice rocking curve. The superlattice period D , AlAs layer thickness L_A and GaAs layer thickness L_G can be obtained from the angle separations $\Delta\theta$ between these peaks.