

GaAlAs/GaAs 外延层多层膜 X 射线干涉条纹的研究

高大超 冯禹臣 袁佑荣

(中国科学院长春物理研究所, 长春)

1987年1月20日收到

作者在 MBE 法和 LPE 法生长的 GaAlAs/GaAs 外延片中观察到了多层膜的 X 射线干涉条纹。用 X 射线双晶测角仪记录了这种干涉条纹，并从条纹振荡的周期计算出外延片中相应外延层的厚度。在实验样品具有一定曲率半径(在本实验条件下 10—30 米)的情况下，用 X 射线双晶形貌法摄取了这种干涉条纹相，并对弯曲外延片的成相几何进行了分析；通过测量貌相图上干涉条纹的振荡周期，计算出了外延片的曲率半径。

主题词： X 射线、GaAlAs/GaAs、干涉条纹、双晶形貌、迴摆曲线

一、前言

X 射线动力学衍射理论预言，入射的平面波激发色散面上同一分支上两个不同结点产生的 Bloch 波在薄膜边界上反射并且相互干涉，形成周期振荡的干涉条纹。也就是说，当入射 X 射线发散度很小时，X 射线可以在结晶完整的单层或多层薄膜上反射并形成干涉条纹。1968 年 Batterman 和 Hildebrandt^[1]首次报道了，用 X 射线双晶衍射技术在结晶完好的薄层硅单晶中观察到了 X 射线干涉条纹。1978 年 Bartels^[2]用 X 射线双晶测角仪，在 GaAlAs/GaAs 的迴摆曲线上记录到了外延层产生的干涉条纹，并对层厚度进行了计算，但未摄到薄层干涉条纹相。Petroff^[3]虽然在 GaAlAs/GaAs 异质结构的貌相图中观察到了这种干涉条纹相，但作者把这种条纹相归因于样品边缘附近外延层厚度的增加。Patel^[4]曾对外延层厚度变化时，干涉条纹的强度变化进行了讨论。

在本工作中，作者通过 X 射线双晶貌相图的摄取，观察到了由于应力所致弯曲 GaAlAs/GaAs 外延片中多层膜的干涉条纹相；用 X 射线双晶测角仪法记录了相应外延层的干涉条纹，测量了干涉条纹的振荡周期，并计算出相应外延层的厚度；作者分析了弯曲外延片衍射干涉条纹的成相几何，推导了计算外延片曲率半径的公式，进而计算了相应外延片的曲率半径。最后，作者对多层膜的 X 射线干涉条纹相的有关问题进行了必要的讨论。

二、实 验

本实验所用的 177# 样品(图 1)是用 MBE 法生长的量子阱 GaAlAs/GaAs 材料。在

300 μm (001) n^+ -GaAs 衬底上, 依次生长了 184 \AA 的 n^+ -GaAs/ $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 八层应变超晶格层(其中 21 \AA 的 n^+ - $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 和 25 \AA 的 n^+ -GaAs 各四层), 4000 \AA 的 n^+ -GaAs 缓冲层, 360 \AA 的 n^+ -GaAs \rightarrow $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 的渐变层, 1 μm 的 n^- - $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 层, 500 \AA 的非掺杂 GaAs 量子阱层及 1 μm 的 n^- - $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 层。LY-121 样品(图 2)是用 LPE 法生长的 GaAlAs/GaAs 波导材料, 在 300 μm 厚的 n^+ -GaAs 上依次生长了 2.5 μm 的非掺杂 $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ 限制层和 1.5 μm 的非掺杂 $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 波导层。

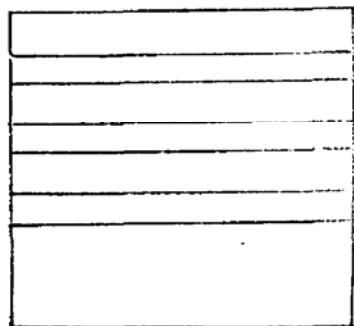


图 1 177# 样品的结构示意图, 其中:

1、3—1 μm 的 $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ 层; 2—500 \AA 的 GaAs 量子阱层; 4—360 \AA 的渐变层; 5—4000 \AA 的 GaAs 缓冲层; 6—184 \AA 的超晶格层($4 \times \text{GaAs} + 4 \times \text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$); 7—300 μm 的 GaAs 衬底

注: 上述数值为生长值

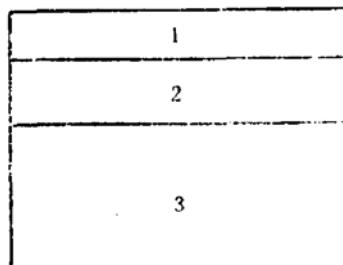


图 2 LY 121 样品的结构示意

图, 其中:

1—1.5 μm 的 $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 层; 2—2.5 μm 的 $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ 层; 3—300 μm 的 GaAs 衬底

注: 上述数值为 SEM 测量值

在各种 X 射线形貌技术中, 具有非对称(+、-)设置的双晶排列法, 即所谓的准平行光形貌术(PWT), 发散角和波长发散都很窄(数弧秒量级), 是最灵敏的方法之一^[5,6]。本实验采用这种设置的双晶衍射方法。记录双晶回摆曲线的实验设置原理示意图见图 3; 当进行双晶形貌照相时, 把第二狭缝去掉, 并把计数管换成照相底片(见图 3 中的虚线部分)。

实验条件: CuK α 1 辐射, 45 kV, 140 mA, 平行准直光管长 1.5 米, 第一狭缝 1×50 (mm), 焦点 0.5×0.5 (mm), 第二狭缝(移动狭缝) $\phi = 0.5$ mm。第一晶体为近完整、无位错、无掺杂的 Si 单晶, 晶体表面是(111), 衍射晶面是(422); 第二晶体是 GaAlAs/GaAs 外延片, 表面晶面为(100), 衍射晶面为(422)或(511)。

用双晶衍射仪记录样品的衍射回摆曲线(包括多层膜干涉条纹的回摆曲线)时, 样品转动速度是 0.2 弧秒/秒。摄取样品的多层膜干涉条纹相时, 去掉第二狭缝, 并确保样品晶体完全浸没在入射 X 射线之中; 确保底片垂直 X 射线衍射光束, 使用上海感光胶片厂生产的 P-5 F 中速 X 光胶片。

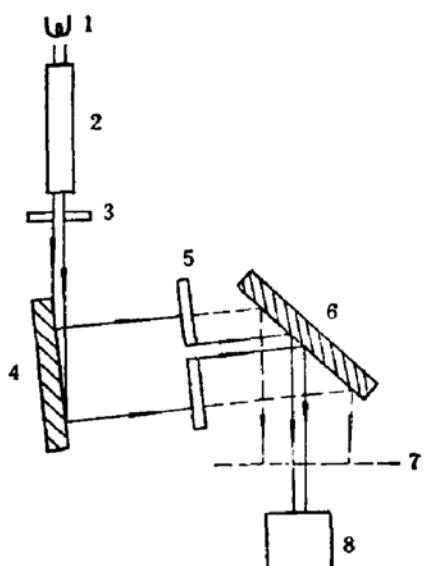


图 3 X 射线双晶衍射几何, 其中:

1—X 射线源; 2—准直光管; 3—第一狭缝; 4—第一晶体; 5—第二狭缝; 6—第二晶体; 7—感光胶片; 8—计数管

三、结果与分析

1. 多层膜 X 射线干涉条纹的迴摆曲线

图 4 是 177# 样品的 X 射线双晶衍射(422)迴摆曲线;图 5 是 LY 121 样品的 X 射线双晶衍射(511)迴摆曲线。

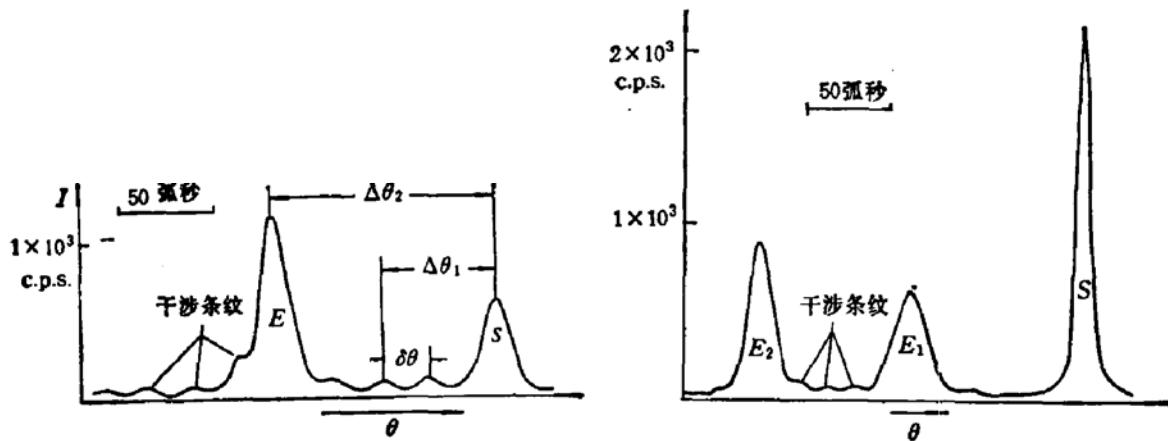


图 4 177# 样品(422)晶面双晶衍射迴摆曲线

图 5 LY 121 样品(511)晶面双晶衍射迴摆曲线

图 4 中高角度一侧较强的衍射峰是衬底(S)的衍射峰,低角度一侧较强的衍射峰是 GaAlAs 外延层(E)的衍射峰,外延层衍射峰两侧较弱的峰是此外延层产生的干涉条纹峰。图 5 中高角度侧的强峰是衬底(S)的衍射峰,中间的强峰是第一外延层(E₁)即波导层的衍射峰,低角度侧强峰是第二外延层(E₂)即限制层的衍射峰,在 E₁、E₂ 峰两侧的弱峰分别是 E₁ 层和 E₂ 层的薄层干涉条纹峰。一般说来,由某一外延层产生的干涉条纹是对称分布在此外延层衍射峰两侧的。参看图 1 可以知道,177# 样品第一外延层和第三外延层的晶格参数相同,所以 E₁ 层和 E₃ 层的衍射峰应该是重迭在一起的,共同形成图 4 中的 E 峰;而量子阱(E₂)层和衬底的晶格参数相同,其衍射峰应归于 S 峰。

在本实验条件下,由于 X 射线反射能力所限,图 4 中的干涉条纹可能主要来自 E₁ 层。仔细观察图 4 可以发现,E 峰两侧的干涉条纹强度并不对称,低衍射角一侧的干涉条纹强度明显高于高衍射角一侧的强度。Batterman^[1]认为这可能与这一侧翼较低的吸收有关,因为在薄层反射情形中要求两支干涉波场要对应于色散面的同一分支; Fukuhara^[2]认为这可能与衬底和外延层反射波之间的干涉有关。

一般认为,X 射线干涉条纹同薄层晶体的厚度有关,因此从条纹的振荡周期可求得外延层的厚度 t^[3]。在样品材料低吸收的情况下,外延层厚度 t 的一般表达式^[3]是,

$$t = \lambda v_H / \delta\theta \cdot \sin 2\theta. \quad (1)$$

其中,λ 是 X 射线波长, v_H 是 X 射线衍射束相对外延层法线的方向余弦,θ 是布喇格角,δθ 是薄层干涉条纹的振荡周期。在本实验条件下,λ = 1.5405 Å。当样品晶体衍射晶面是(422)时,v_{H(422)} = cos 12.8° = 0.975, θ₄₂₂ = 41.9°; 当样品晶体衍射晶面是(511)时,v_{H(511)} = cos 29° = 0.875, θ₅₁₁ = 45°。如果 δθ 用弧秒,t 用微米表示,对应(422)和(511)衍射情况的公式(1)则分别变成:

$$t_{422} = 31.2 / \delta\theta. \quad (2)$$

$$t_{511} = 27.8 / \delta\theta. \quad (3)$$

将迴摆曲线上测得的 $\delta\theta$ 分别代入(2)、(3)式, 可求出 177# 和 LY 121 样品中相应外延层的 t 值, 列于表 1。

表 1

	$\delta\theta$ (secs) (测自迴摆曲线)	t (μm)	
		X 射线数值	其它方法数值
177# E 层	27	1.15	1 (生长值)
LY 121 E ₁ 层	18	1.54	1.5 (SEM 值)
LY 121 E ₂ 层	12	2.32	2.5 (SEM 值)

由表 1 可以看到, 用公式(2)、(3)测得的外延层厚度和用 SEM 方法及生长控制的 t 值基本一致。177#样品中测出的 t 值稍大, 可能是来自具有相同 Al 含量的第三层衍射的影响。LY 121 样品中 E₂ 层的 t 值稍小, 可能和衍射峰弱、测量误差较大有关, 也可能来自于 LPE 生长中层厚的不均匀。这种测量厚度的方法是非破坏性的。Patel^[4]曾明确指出, 用薄层干涉条纹间距测得的外延层的厚度和用其它方法直接测量的数据完全一致。在本实验条件下, 可测量薄层厚度范围约 0.5—10 μm 。

2. 多层膜 X 射线干涉条纹相

实验表明^[10], 由于 Al 的加入则上述两个样品中都存在程度不同的应力, 因而造成外延片的弯曲。当一束准平面波入射在弯曲样品上时, X 射线衍射几何如图 6 所示。如果整个样品晶体被准平面波辐照, 并且外延片弯曲足够大时, 样品上的 a、b、c 点可以使衬底、薄层干涉条纹和外延层同时满足布喇格衍射条件, 因此能被同时记录在 X 射线底片上(见图 7、8)。这种衍射效果类似于在样品的同一点, 旋转样品记录迴摆曲线, 即 X 射线辐照在样品上的一点(如 a 点), 通过计数管首先记录下衬底衍射峰, 然后样品旋转 $\Delta\theta_1$ 角度后记录下薄层干涉条纹峰, 再旋转 $\Delta\theta_2$ 角度最后记录下外延层的衍射峰(参看图 4、6)。

在图 7 中, 左侧较强衍射衬度是 177# 样品 E 层的形貌相, 其余三条较弱衍射衬度是 E 层产生的干涉条纹相。因样品尺寸所限, 图 7 未记录到衬底的形貌相(S峰应在 E 峰的左侧出现)。图 8 中, 左侧较强衬度是 LY 121 样品的 E₁ 层形貌相, 右侧较强衍射衬度是 E₂ 层的形貌相。E₁ 层两侧二条较弱的衬度相和 E₂ 层两侧四条较弱的衬度相分别是 E₁ 层和 E₂ 层产生的干涉条纹相。同样因样品尺寸所限, 图 8 中未出现衬底层形貌相(应出现在 E₁ 峰的左侧)。

参看图 6 中扇形 obb' 。其中, r 是曲率半径, $\overline{bb'}$ 是弦长, bb' 是弧长, $\delta\theta$ 是薄层十

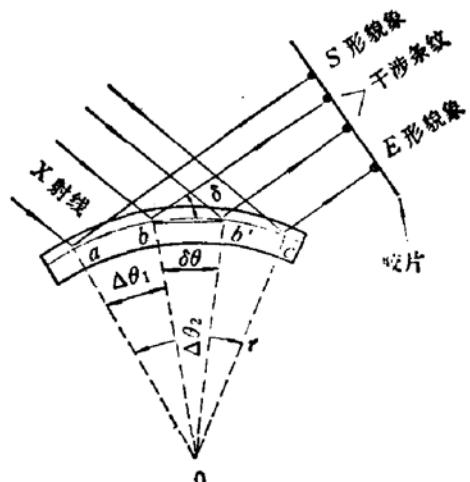


图 6 准平面波在弯曲外延片上的衍射示意图

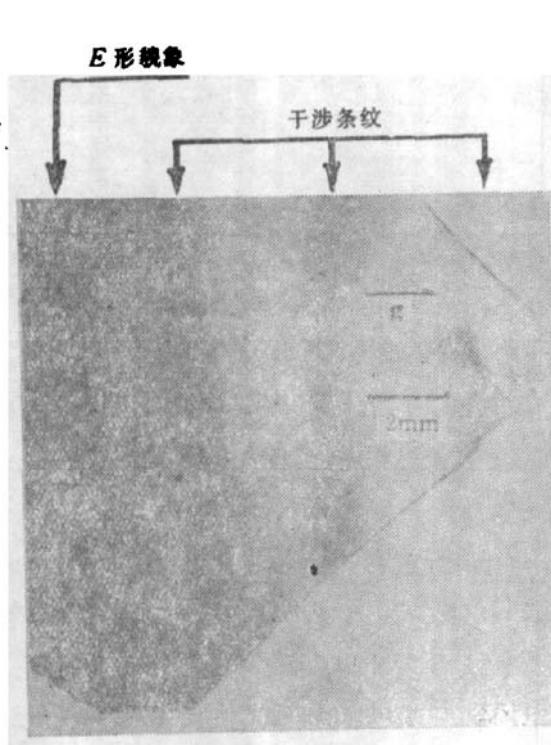


图 7 177# 样品的 X 射线貌相图, (100) 表面,
(422) 衍射

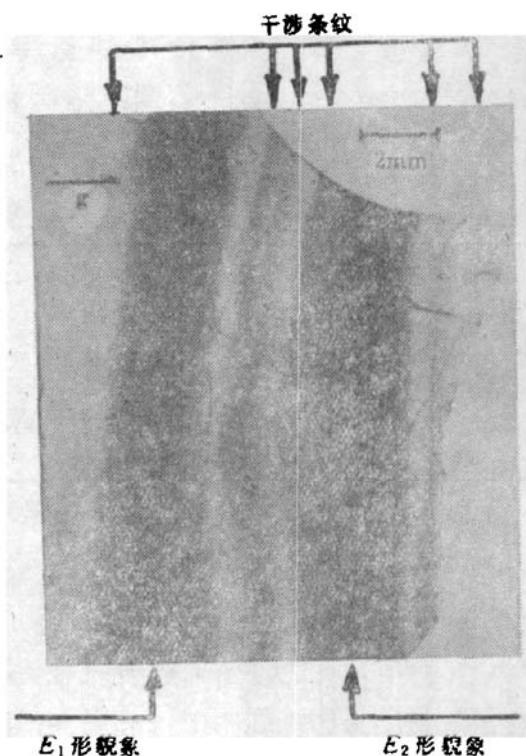


图 8 LY 121 样品的 X 射线貌相图, (100) 表面,
(422) 衍射

涉条纹的振荡周期, δ 是衍射线和晶体表面间的夹角, W 是貌相图底片上干涉条纹的间距。根据平面几何关系, 我们推知,

$$r = \frac{\overline{bb'}}{\delta\theta} = \frac{\overline{bb'}}{2 \sin \delta\theta/2} = \frac{W / \sin \delta}{2 \sin \delta\theta/2} = \frac{W}{2 \sin \delta \cdot \sin \delta\theta/2}. \quad (4)$$

这就是计算 GaAlAs/GaAs 一类外延片曲率半径的计算公式。

为了和(422)晶面衍射的貌相图 7、8 相一致, 公式(4)中的 $\delta\theta$ 均取(422)衍射时干涉条纹的振荡周期。本实验所用样品的有关数据及应用公式(4)求出的曲率半径 r 列于表 2。

表 2

样 品	W (毫米)	$\delta\theta$ (弧秒)	δ (度)	r (米)
177#	3.6	27	77.2°	28.2
LY 121	1.1	21.6*	77.2°	10.8

* 此值由(511)衍射摆振曲线中干涉条纹的振荡周期转换而来

四、讨 论

Bowen^[11] 指出, 低周期的超晶格 GaAs/GaAlAs 结构可以产生衍射强度很低的卫星峰。177# 样品中的超晶格层只有 184 Å(GaAlAs 和 GaAs 各 4 层), 在本实验条件下很难

检测到这种极弱的振荡条纹;经粗略计算,如果这种卫星峰出现时,其振荡周期至少达几百弧秒,所以图 4 中出现的周期振荡干涉条纹不可能是超晶格产生的卫星峰条纹。

在外延片貌相图上,由薄层干涉条纹分布的变化,可以大致判断出外延片局部的弯曲情况。从图 8 可以看出,LY 121 样品的中心部位干涉条纹发生弯曲,因而加大了条纹间距,粗略计算此处的曲率半径大约为 14 米(其它部位一般是 10.8 米),这说明在 LY 121 样品的中心部位的应力和其它部位不同。仔细观察图 8,可以看到 E₁ 相右侧 E₂ 层产生的干涉条纹在图上部存在,而在图下部却合并到 E₂ 层产生的干涉条纹中,这也说明样品中应力的分布是不均匀的。从 LY 121 样品的光致发光(PL)强度分布也发现^[12],在 LY 121 样品中部有一个明显的强度下凹区,一般认为,PL 强度与材料中来自材料缺陷的无辐射跃迁有关。综上所述,这种弯曲肯定是来自样品生长的不均匀性。

Patel^[4] 曾指出,晶体中轻微的畸变都将影响干涉条纹的衬度,所以一套清晰有序的干涉条纹的出现是外延晶体结晶完整、优质的佐证。

样品晶体的衍射晶面不同,测得的外延层厚度^z也有所变化(S 峰和 E 峰的强度及半宽度亦有变化,这里不予讨论),作者用不同衍射晶面测得的结果大致变化在 5% 左右。变化原因与结构因子、材料对 X 射线的吸收,不同衍射矢量分辨率不同等诸因素有关。

五、结 论

在 MBE 法和 LPE 法生长的 GaAlAs/GaAs 外延片中,观察到了多层膜干涉条纹。用 X 射线双晶测角仪记录了干涉条纹的回摆曲线,从条纹的振荡周期计算出外延片的外延层厚度,测量结果与用电镜等方法测量的厚度一致。当 GaAlAs/GaAs 外延片具有一定的曲率时,可用 X 射线双晶形貌法摄下薄层干涉条纹相;并且通过测量貌相图上衍射干涉条纹的间距(或者衬底峰与外延层峰的间距),可以计算出外延片的曲率半径。

吉林大学 82 届学生郑凡磊、万若莲参加了部分实验工作。中国科学院物理研究所麦振洪在讨论中给予了有益的帮助。MBE 样品是由日本松下电器公司江田和生博士提供,LPE 样品是在美国加州大学圣·巴巴腊校制备的,在此一并表示衷心的感谢。本工作部分是由中国科学院 1985 年院内基金资助完成的。

参 考 文 献

- [1] B. W. Batterman and G. Hildebrandt, *Acta Cryst.*, A24, 150(1968).
- [2] W. J. Bartels and W. Uijman, *J. Crys. Growth*, 44, 518(1978).
- [3] J. F. Petroff, M. Sauvage, P. Riglet and H. Hashizume, *Phil. Mag.*, A42, 319(1980).
- [4] J. R. Patel, "Characterization of Crystal Growth Defects by X-Ray Methods", edited by B. K. Tanner and D. K. Bowen, 85, New York, Plenum Press (1980).
- [5] M. Renninger, *Z. angew. Phys.*, 19, 20 (1965).
- [6] S. Kikuta and K. Kohra, *J. Phys. Soc. Japan*, 28, 1322(1970).
- [7] A. Fukuhara and Y. Takano, *Acta Cryst.*, A33, 137(1977).
- [8] R. W. James, *Solid State Phys.*, 15, 132(1963).
- [9] W. T. Stacy and M. M. Janssen, *J. Crystal Growth*, 27, 282(1974).
- [10] 冯禹臣, 高大超, 袁佑荣, 半导体光电, No. 2, (1987),
- [11] D. K. Bowen, M. J. Hill and B. K. Tanner, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* (1987), in press.
- [12] Y. R. Yuan (袁佑荣), G. A. Vawter, K. Eda, J. I. Merz and B. Kincaid, *Proceeding of SPIE*, 460, 69

(1984).

Studies on X-Ray Interference Fringes in GaAlAs/GaAs Epitaxial Layers

Gao Dachao, Feng Yuchen and Yuan Yourong

(*Changchun Institute of Physics, Academia Sinica, Changchun*)

Abstract

X-ray interference fringes caused by polylaminates have been observed during the growth of GaAlAs/GaAs epitaxial layers by use of MBE and LPE methods. The interference fringes can be recorded and the fringe images can be taken by use of X-ray double crystal goniometer. The results are discussed in the case of bending epitaxial GaAlAs/GaAs samples. The bending radius of the epitaxial sample can be calculated from the inter-space of the interference fringes of film image, and the thickness of different layers can be calculated from oscillating periods of their fringes in the rocking curves.

KEY WORDS: X-ray, GaAlAs/GaAs, Interference fringe, Double crystal topography, Rocking curve