

高精度双晶衍射(HRDCD)方法检测 InGaAs/GaAs 超薄应变层量子阱结构参数

王小军^{a,b} 庄岩^b 王玉田^b 庄婉如^c 王启明^c 黄美纯^a

(a 厦门大学物理系 厦门 361005 b 国家光电子工艺中心 北京 100083 c 中国科学院半导体研究所 北京 100083)

摘要 应变超薄层结构的组分、厚度、应变状态的直接检测,对于器件应用具有重要的意义,本文中,利用 MOCVD 方法得到高质量的 InGaAs/GaAs 量子阱材料,采用双晶衍射方法的弱信号收集技术,结合运动学理论模拟,得出同时包含几个不同阱宽的 InGaAs/GaAs 量子阱结构的重要参数,其检测结果与光致发光(PL)、透射电子显微镜(TEM)等方法的测试结果基本一致,表明 X 射线双晶衍射方法是检测超薄层应变量子阱结构的一个有效方法。

PACC: 6110, 8170C, 6855

1 引言

许多重要的 III-V 族光电子器件,需要晶格常数失配较大的异质外延层. 为了保证外延层中不产生失配位错,外延层的厚度必须小于其临界厚度^[1]. 这种临界厚度一般只有几十 Å 或几百 Å. 通常,这些应变薄层生长条件的控制是由厚层的生长条件外推得到,由于两方面的原因,这种外推可能导致错误的结果:一是,应变外延层较厚时,可能因超过临界厚度而失去晶格完整性,不易进行精确地检测;二是,即使可以得到厚度适当而不发生晶格弛豫的外延层,生长开始时的瞬态效应将意味着,由厚层得到的合金晶格常数和平均生长速率可能与外延层开始几纳米的生长差别很大. 因此,应变超薄层(几十 Å 或几百 Å)的生长速率及合金组分等特性的直接测量具有重要的实际意义.

X 射线衍射方法是一种检测外延层材料特性的重要手段,但是当外延层很薄时,双晶衍射技术受到衍射峰展宽及衍射强度下降等因素影响,因而在检测时需要采取特殊的措施以提高测量时计数的动态范围. 同时,具有不同阱宽的应变量子阱异质结构的衍射曲线将更为复杂,样品结构参数的获得必须借助于实验曲线的拟合.

本文采用双晶衍射技术,测量了包含不同阱宽的 InGaAs/GaAs 薄层应变量子阱样品的摇摆曲线. 根据运动学理论进行模拟,得到了 InGaAs/GaAs 薄层应变量子阱的结构参数.

王小军 男,1968 年生,博士,目前从事光电子材料与器件研究

庄岩 男,1967 年生,助理研究员,从事光电子材料研究

王启明 男,1933 年生,研究员,中国科学院院士,从事光电子物理与器件研究

1993 年 9 月 7 日收到初稿,1993 年 12 月 1 日收到修改稿

2 样品制作

在法国 ASM 公司的 MOCVD 设备上使用 TMI, TMG 做 III 族源物质, 并采用低温 (580°C), 低压 (1×10^4 Pa) 生长技术防止含镉化合物的寄生反应. 低温生长技术的采用同时也防止了应变外延层生长时三维岛状模式的发生.

图 1 为两个应变薄层量子阱样品的结构示意图, 这种结构是材料生长中检测材料质量从而优化生长工艺的一种最常用的设计. 量子阱中载流子二维特性的测试, 能对材料本征纯度, 界面质量给予客观评价, 对于应变异质结构, 则显得更为重要, 这是因为, 厚层时大量失配位错的产生使得应变材料的质量难以从厚层的检测得出, 并且厚层和薄层所处的应变状态不同, 而许多光电子器件, 例如激光器、探测器等激活区均为薄层量子阱结构, 其量子阱的尺寸和图 1 所示样品中量子阱的尺寸类似. 所以, 对于图 1 所示样品结构中阱层合金组分、各层厚度、应变状态及材料质量的检测对于材料生长及器件应用均具有重要的指导意义. 光学测试得到的量子阱能级位置, 是调节激光器、探测器工作波长的直接依据.

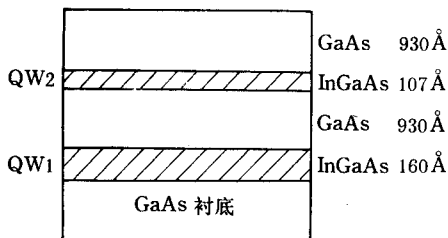


图 1(a) 样品 A 的结构示意图

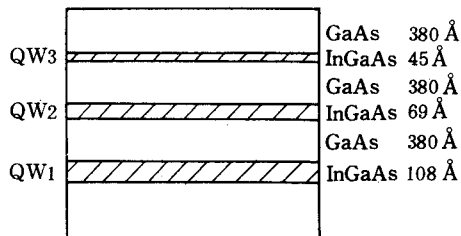


图 1(b) 样品 B 的结构示意图

3 X 射线衍射曲线的实验及理论分析

3.1 实验数据采集

使用仪器为日本 Rigaku SLX-1AL 型超晶格测定装置, 取 $\text{Cu K}\alpha_1$ 型辐射, 射线波长 $\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$. 单色器为 $\text{Ge}(004)$ 非对称衍射, $\beta = 0.08$, $\text{FWHM} = 2.3''$. 入射狭缝宽度 0.1 mm , 出射狭缝宽度 0.5 mm . 取衍射矢量 $g = 004$, 因为 $(00h)$ 衍射具有分析的直观性, 而 (004) 衍射是 $(00h)$ 衍射中最强的衍射.

我们样品的外延层厚度较小, 样品 B 阱层宽度几十 \AA , 垒层厚度小于 500 \AA , 外延层总厚度小于 1500 \AA . 样品 A 阱层厚度小于 200 \AA , 垒层厚度小于 1000 \AA , 外延层总厚度约 2000 \AA . 由于外延层较薄, 所以其衍射强度很小, 故采集数据时每步需要停留较长的时间以降低统计噪音, 实验中数据采集步长取为一角秒, 每步停留时间三秒. 通过仔细的仪器设置, 在扫描角度范围内, 计数动态范围(衬底峰值计数率和背景计数率之比)可达 10^5 , 保证了弱峰信号的检测.

3.2 实验结果

样品 A, B 的 (004) Rocking Curve 分别如图 2 图 3 中的实验曲线所示. 据图可知, 高的动态范围保证了弱峰的检测. 数十级干涉峰清楚的出现, 表明了材料质量很好.

摇摆曲线中, 虽然出现了 InGaAs 阱层和 GaAs 垒层的信息, 但是摇摆曲线比较复杂, 无

法直接从峰位上给出样品的结构信息,因而必须对曲线进行模拟.

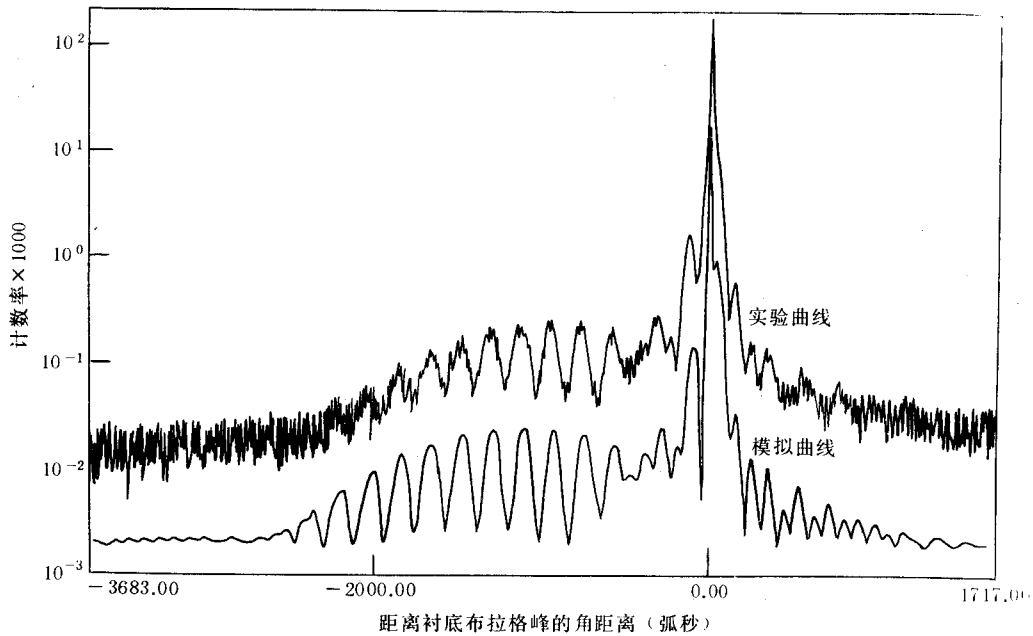


图2 样品 A 的双晶衍射 Rocking curve 及运动学理论模拟曲线

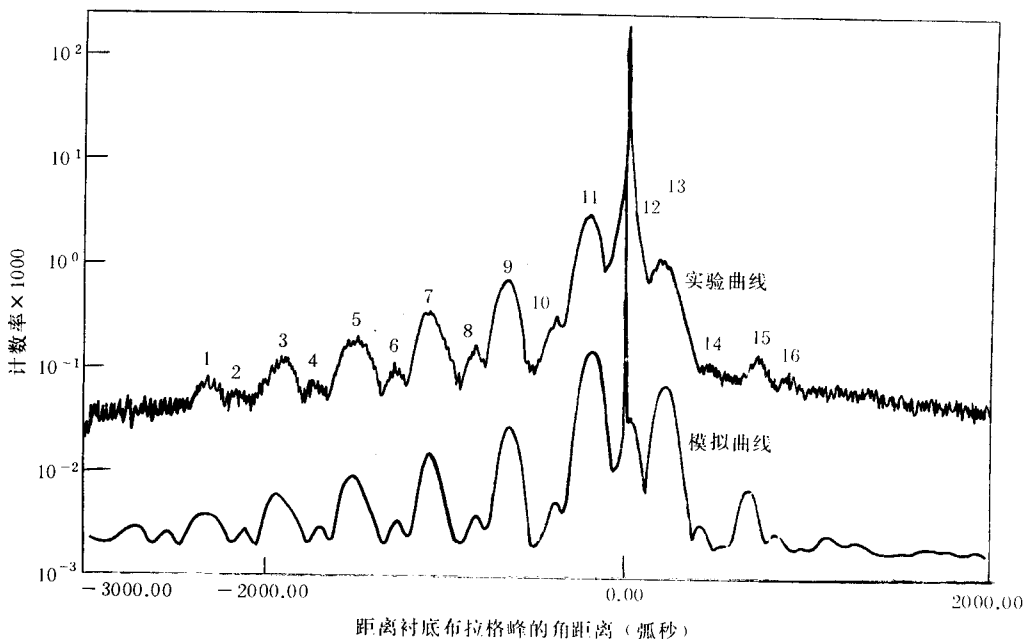


图3 样品 B 的双晶衍射 Rocking curve 及运动学理论模拟曲线

3.3 理论分析

通常用于解释和计算 X-射线的 Rocking Curve 的理论模型主要有两种,即运动学理论^[2]和动力学理论^[3]. 动力学模型所依据的理论基础严谨,对实验的解释也更加细致入微,但其计算复杂,物理意义不直观.

运动学理论计算简单,物理图象清楚,但有一定的适应范围. 运动学理论假设,随着 X

射线深入晶格内部,其强度并不显著减小.这即要求外延层厚度小于 X 射线的消光长度.对于 Cu 靶 $K\alpha_1$ 射线,严格来说,GaAs 材料的消光长度小于 $1\mu\text{m}$ ^[4].超过消光长度的外延层,应用运动学理论进行计算时将有一定的近似性.

本文中检测的样品,外延层厚度均很薄,因此满足动力学理论的假设.根据 Speriosu^[5]等人的理论,得到多层膜干涉振幅为:

$$E_n = i(|\gamma_o/\gamma_H|)^{1/2} \sum \{ [a_j e^{-i(A_j Y_j + \phi_j)} \sin(A_j Y_j)] / Y_j \}, j = 1, 2, \dots, N \quad (1)$$

$$\text{其中 } A_j = [r_o \lambda |F_j| d_j] / [V_j (|\gamma_o \gamma_H|)^{1/2}] \quad (2)$$

$$Y_j = [|\gamma_o/\gamma_H|]^{1/2} \pi V_j \sin 2\theta_B \Delta\omega / [r_o \lambda^2 |F_j|] \quad (3)$$

$$a_j = \exp\{-\mu[(\gamma_o + |\gamma_H|)/(2\gamma_o |\gamma_H|)] \sum d_j\}, j = 1, 2, \dots, N-1 \quad (4)$$

$$a_N = 1 \quad (5)$$

$$\phi_j = 2 \sum (A_i Y_i), j = 2, 3, \dots, N \quad \phi_1 = 0 \quad (6)$$

$$\Delta\omega = \theta - \theta_B + (\epsilon^\perp \cos^2 \Psi + \epsilon^\parallel \sin^2 \Psi) \text{tg} \theta \pm (\epsilon^\perp - \epsilon^\parallel) \sin \Psi \cos \Psi \quad (7)$$

$$r_o = e^2 / (mc^2) \quad (8)$$

这里 F_j 为第 j 层膜的结构因子, γ 为所用 X 射线的波长, θ_B 为衬底的 Bragg 角, V_j 为第 j 层外延膜的晶胞体积, γ_o 和 γ_H 分别为入射角和出射角的方向余弦, θ 为入射角, ϵ^\perp 、 ϵ^\parallel 分别为生长方向和水平方向相对于衬底的失配应变, d_j 为第 j 层处延膜的厚度, e 、 m 分别为电子的电量、质量, c 为光速, r_o 为经典电子半径, Ψ 为衍射晶面和样品表面之间的夹角.

根据以上理论,得到两个样品的模拟曲线分别标示于图 2 和图 3 中.可以看出,实验曲线和理论曲线符合得很好.

样品 A、B 的衍射曲线的物理图象可由以上理论的进一步近似更直观清楚地给出.设 GaAs 晶格常数为 a ,现有两层 GaAs 厚度分别为 $d_1 = N_1 a$ 和 $d_2 = N_2 a$ (N_1, N_2 为整数,分别是两层 GaAs 中的晶胞层数),中间被垂直晶格常数为 $a_\perp(x)$ 、厚度为 d 的 InGaAs 层隔开,Holloway^[6]对严格的运动学理论进行一些微小修正后得出这种夹层结构的衍射强度为

$$I = [\sin^2 N_1 \varphi + \sin^2 N_2 \varphi + 2 \sin N_1 \Phi \cdot \sin N_2 \varphi \cos(N_1 + N_2 + 2\alpha)\varphi] / \sin^2 \varphi \quad (9)$$

这里 $\varphi = (2\pi/\lambda)a \cdot \sin\theta$.上式中 α 的定义如下:设 InGaAs 层的厚度 d 被 GaAs 的晶格常数 a 整除后的余数为 Δd ,则 $\alpha = \Delta d/a$.若选取 m 级布拉格衍射,当 $\alpha = 0$ 或 k/m (k 为小于 m 的正整数)时,称两层 GaAs 处于同相状态,则

$$I = \sin^2(N_1 + N_2)\varphi / \sin^2 \varphi \quad (10)$$

干涉峰周期与厚度为 $(N_1 + N_2)a$ 的 GaAs 层衍射曲线相同.当 $\alpha = 1/(2m)$ (1 为小于 $2m$ 的正奇数)时,称两层 GaAs 处于反相状态,则

$$I = [2\sin^2 N_1 \Phi + 2\sin^2 N_2 \Phi - \sin^2(N_1 + N_2)\Phi] / \sin^2 \Phi \quad (11)$$

这里 $\Phi = \varphi - m\pi$,若 $N_1 = N_2 = N$ 时

$$I = \sin^4 N\Phi / \sin^2 \Phi \quad (12)$$

干涉峰周期与厚度为 $N \cdot a$ 时的 GaAs 层衍射曲线相同.可以认为,样品 A、B 的结构分别是上述结构的二重、三重叠加.下面我们将借助上述讨论,对样品 A、B 衍射曲线的物理图象作出解释.

衬底衍射峰的半高宽较小,在讨论离开衬底 Bragg 角处外延层衍射的曲线时,可首先忽

略外延层和衬底之间的干涉. 由于 InGaAs 层与 GaAs 层晶格常数不同, 且其厚度远小于 GaAs 层, 故 InGaAs 层的信息主要表现在以包络形式对 GaAs 干涉条纹的调制以及对两个垒层 GaAs 干涉相位的调节.

样品 A 的 Rocking Curve 的特点是, 衬底附近干涉峰角周期约为衬底小角方向干涉峰角周期的一半. 类似于上边关于夹层结构的讨论, 可以认为外延层的衍射曲线主要是两层 GaAs 的干涉所致. 我们的模拟计算表明, InGaAs 层的厚度不影响干涉峰周期的大小, 但是两层 GaAs 的位相状态随两层 GaAs 之间 InGaAs 层厚度的变化非常灵敏. 根据前文的讨论, 要使两层 GaAs 在布拉格角附近为同相状态, 即令 $\alpha=1/m$. 因为 InGaAs 阱层的厚度小于临界厚度, 样品的 X 射线形貌像中未发现位错产生, 因而可以认为阱层和垒层之间为共格生长, 阱层 InGaAs 的晶格常数可用完全弹性理论求出. 为使衬底附近两层 GaAs 满足同相条件, 即 $\alpha=1/m$, 则两层 GaAs 间 InGaAs 层的厚度 d 应为

$$d = [a \cdot a^+(x)/m] / [a^+(x) - a] \quad (13)$$

对 (004) 衍射, $m=4$, 取 $a=5.6532$, 并引用弹性理论结果, 则由式 (13) 可得 $d \approx 9.6/x$. 这里 x 为 In 组分. 故由拟合所得参数可知在衬底附近近似满足同相条件, 即 $x=0.085$ 得出 GaAs 夹层 InGaAs 厚度为 113 \AA , 与拟合结果 108 \AA 比较接近. 测量曲线中角度范围较大, 不同角位置处两垒层 GaAs 所处的位相状态不同, 因而衍射峰周期发生变化. 若选衬底 Bragg 角处为位相零点, 则在衬底布拉格角小角方向 0.5 度处, InGaAs 层导致两层 GaAs 的位相差为

$$2\alpha\varphi = d \cdot [\sin(33.023) - \sin(32.532)] \cdot 4\pi/(m\lambda) \approx 0.51\pi \quad (14)$$

即两层 GaAs 处于非同相状态, 此时干涉峰周期与反相状态时相同, 故样品 A 在小角方向干涉峰的周期是在衬底附近干涉峰周期的两倍.

与样品 A 相比, 样品 B 的阱、垒层均较薄, 且有三个阱、垒结构, 因而分析更加复杂, 同样可以认为, 衍射峰主要是三层 GaAs 相互干涉的结果. 衍射峰 1, 3, …, 15 是单层 GaAs 的干涉峰相对应, 样品 B 中 InGaAs 层的 In 组分比样品 A 中阱层 In 组分稍小, 而样品 B 中各 InGaAs 层的厚度更小, 不可能出现三层 GaAs 同相的情形, 因而没有出现对应于三倍 GaAs 层厚度的干涉峰. 干涉峰 2, 4, …, 16 的出现可能是沿生长方向第一层 GaAs 与第三层 GaAs 近似同相的干涉结果. 这是因为, 令 $x=0.081$, 由式 (13) 得到 d 约为 119 \AA , 这与阱二 69 \AA 、阱三 45 \AA 之和 114 \AA 比较接近. 三层 GaAs 厚度的不均匀以及不同入射角时三层 GaAs 之间相位条件的不同, 可能是不同角位置处衍射峰间距稍有变化的原因.

4 结果讨论

为比较起见, 我们测试了样品 A、B 的光致发光谱, 结果分别如图 4、5 所示.

可以看出双晶衍射方法是检测材料质量的有效手段: 多级清晰的衍射峰的出现表明了极好的材料质量, 这与光致发光谱中出现强度大而半高宽窄激子峰的结果一致. 样品 A 中阱宽 50 \AA 的量子阱的光致发光激子峰半高宽仅为 3.6 meV , 这标志着应变层量子阱的材料生长已达到了较高的水平. 光致发光峰展宽机制的讨论也表明, 应变量子阱界面平整度很好. 这一点, 将另文报道.

从衍射曲线拟合的结构参数与光致发光及 TEM 测试结果的比较如表 1 所示, 可以看

出双晶衍射方法的测试结果与 PL, TEM 的测试结果比较接近. 不同方法测量结果的差别可能与各自的特点有关.

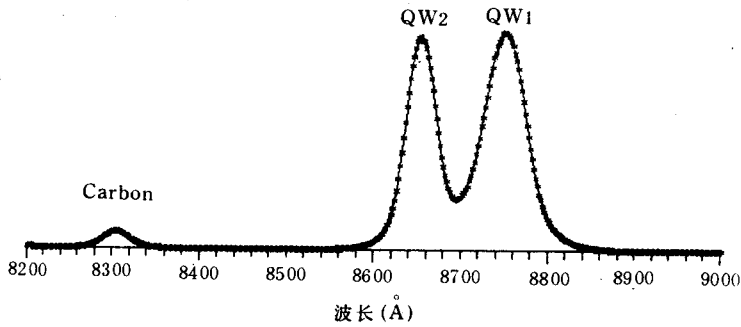


图4 样品A的10K光致发光谱

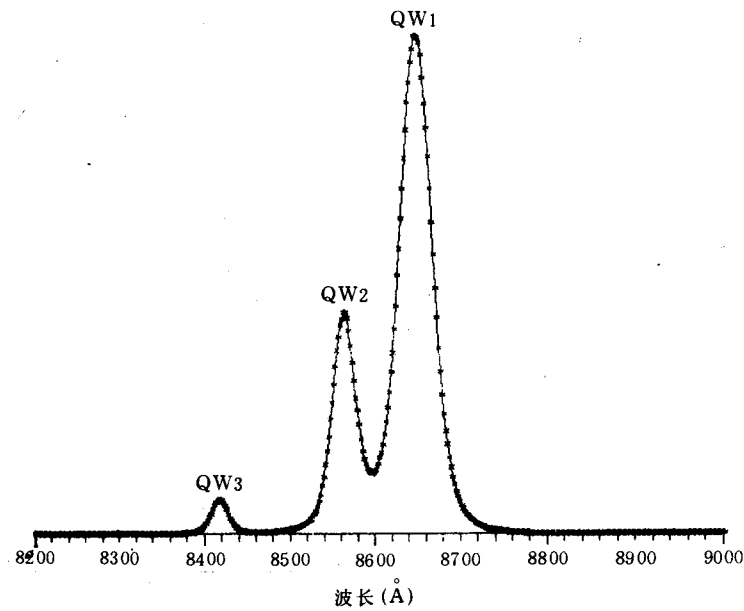


图5 样品B的10K光致发光谱

表1 不同测试方法得到的样品A、B的结构参数

样品编号		PL 测试					DCD 测试		TEM 测试
		10K 峰位	77K 峰位	10KFWHM	厚度	In 组分	厚度	组分	
样品 A	阱 1	1.4165eV	1.4107eV	9.00meV	183 Å	0.094	160 Å	.085	179 Å
	阱 2	1.4329eV	1.4266eV	6.45meV	110 Å	0.094	107 Å	.085	179 Å
	垒	---	---	---	---	---	930 Å	---	883 Å
样品 B	阱 1	1.4335eV	1.4263eV	4.83meV	108 Å	0.091	92 Å	.081	---
	阱 2	1.4489eV	1.4405eV	4.30meV	77 Å	0.091	69 Å	.081	---
	阱 3	1.4734eV	1.4650eV	3.64meV	43 Å	0.091	45 Å	.081	---
	垒	---	---	---	---	---	380 Å	---	---

综上所述,本文的工作表明,X射线双晶衍射方法不仅是检测厚层及超晶格的有效方法,而且是检测超薄层应变量子阱结构的重要方法.这种检测对于应变层材料的生长及器件应用具有重要的指导意义.动力学理论可以对薄层量子阱结构的衍射曲线给予很好的解释.

致谢 作者感谢国家光电子工艺中心 MOCVD 组杨辉、郑联喜、张霞、邓礼生同志在生长样品时给予的大力帮助,感谢胡雄伟高工给予的许多有益的建议.

参 考 文 献

- [1] J. W. Matthews and A. E. Blakeslee, *J. Crystal Growth*, 1974, **27**:118;1974, **32**:265.
- [2] V. S. Speriosu and T. Vreeland, Jr., *J. Appl. Phys.*, 1984, **58**:1591.
- [3] C. R. Wie *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 1986, **52**:6094.
- [4] L. Tapfer and K. Ploog, *Phys. Rev.*, 1986, **B33**(8):5565.
- [5] V. S. Speriosu, *J. Appl. Phys.*, 1981, **52**:6094.
- [6] H. Holloway, *J. Appl. Phys.*, 1990, **67**(10):6229.

InGaAs/GaAs Ultrathin Strained Quantum Well Characterization by High Resolution X-ray Diffraction

Wang Xiaojun^{a,b}, Zhuang Yan^b, Wang Yutian^b

Zhuang Wanru^c, Wang Qiming^c and Huang Meichun^a

(a Physics Department, Xiamen University, xiamen 361005)

(b National Research Center for Optoelectronic Technology, Beijing 10083)

(c Institute of Semiconductor, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 10083)

Received 7 september 1993, revised manuscript received 1 December 1993

Abstract InGaAs/GaAs ultrathin strained single quantum well grown by Metalorganic Chemical Vapour Deposition (MOCVD) technique with well thickness ranging from 40 Å to 200 Å. In content $0.08 < x < 0.10$, separator GaAs layer of about 400 Å or 1000 Å, has been characterized by the X-ray double crystal diffraction (HRDCD) technique in a conventional (004) Cu K α symmetrical reflection geometry. Based on kinetic theory, a careful simulation of the diffraction profiles allow an accurate determination of the In content and the thickness of both InGaAs and GaAs layer. Detail analysis shows that with rocking curve simulated using kinetic theory, HRDCD technique is a good method to characterize the structural parameters of ultrathin strained quantum well.

PACC: 6110, 8170C, 6855