

半导体超晶格属性的高分辨率X射线衍射研究

张党卫¹ 张景文² 侯洵^{1,2}

(1 西北大学光子学与光子技术研究所, 西安 710069)

(2 中国科学院西安光学精密机械研究所, 西安 710068)

摘要 详细阐述了低维半导体材料的X射线衍射的动力学理论和运动学理论. 从高木-陶平(T-T)方程出发, 基于波动光学原理, 推导出任意结构的多层膜的X射线衍射振幅的递推关系式. 并编写X射线衍射的程序, 分别用动力学和运动学衍射理论模型模拟了20层GaAlAs/GaAs超晶格的X射线衍射结果, 得到超晶格样品的结构参数.

关键词 X射线衍射, 低维半导体, 超晶格, 动力学理论, 运动学理论, 计算机模拟

0 引言

低维半导体材料, 如超晶格, 由于其本身的特殊性质, 近年来受到人们的广泛关注^{1~5}. 这些材料的结构属性(厚度, 应变, 周期等)决定了用这些材料制成器件的特性, 如应变超晶格量子阱激光器的发光特性, 因而测量这些材料的结构属性就成为一件很重要的工作. X射线衍射作为探测晶体结构的有力方法, 相对于原子力显微术(AFM)和隧道扫描显微(STM)来说, 有无须制样, 对样品无破坏性的优点, 从而大量应用于超晶格等低维半导体材料的结构探测中^{6~10}. 本文在总结前人研究的基础上, 详细阐述了低维半导体材料的X射线衍射的动力学理论和运动学理论, 并分别模拟了20层GaAl/GaAs超晶格的X射线衍射结果, 得到超晶格样品的结构参数.

1 动力学衍射理论

在1962年, 高木(Takagi)提出可以处理有畸变的晶体中波动场的麦克斯韦方程的一阶近似. 后来Taupin独立提出了形式上与高木方程组略有差异的方程组, 已经证明这两种形式在物理意义上是等阶的. 一般称为Takagi-Taupin(T-T)方程. 通过将波场展开成傅里叶级数, 并略去

极化分量P、位移场D对x的微分 dD/dx 和晶格原子位移量对x的微分 du/dx 等的二阶及高阶项, 得到T-T方程-关于入射波振幅 D_0 和衍射波振幅 D_h 的耦合线形偏微分方程组. T-T方程描述了两个波场在晶体介质中传播时的能量交换, 因而称为动力学理论. T-T方程的一般形式为

$$i(\lambda/\pi)\partial D_0/\partial s_0 = p\chi_{-h}D_h \\ i(\lambda/\pi)\partial D_h/\partial s_h = p\chi_hD_0 - 2\beta_hD_h \quad (1)$$

式中, λ 是X射线波长, s_0 和 s_h 分别为平行于入射波矢 k_0 和衍射波矢 k_h 的单位矢量, p 为偏振因子, σ 偏振时 $p=1$, π 偏振时 $p=\cos(2\theta_B)$, β_h 是与畸变量和衍射角偏离布喇格角有关的因子, 表达式为

$$\beta_h = (2k_0h' + h'^2)/2K^2 \quad (2)$$

展开, 得

$$\beta_h = \theta - \theta_B + (\epsilon_{\perp}\cos^2(\varphi) + \epsilon_{\parallel}\sin^2(\varphi)) \\ \cdot \tan\theta_B + (\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel})\sin(\varphi)\cos(\varphi) \quad (3)$$

式中 θ_B 是理想晶体布喇格衍射角, $\gamma_0(=\sin(\theta_B - \phi))$ 是入射波的方向余弦, φ 是方位角, ϵ_{\perp} , ϵ_{\parallel} 分别是垂直和水平方向的晶格常量相对变化量, 另外, χ_h , χ_{-h} 分别是倒易空间 h 点和 $(-h)$ 点的

电极化矢量, 有

$$\chi_h = -r_e \lambda^2 F_h / \pi V_c \quad (4)$$

式中, V_c 是晶胞体积, $F_h (= F_h' + i F_h'')$ 理想晶体的结构因子, $r_e (= 2.81794 \times 10^{-6} \text{ nm})$ 是电子的经典半径, k_0 为 X 射线在晶体倒易空间入射波矢, 有

$$k_0 = K_0 + \chi_0 K_n / \gamma_0 \quad (5)$$

$K (= 1/\lambda)$ 为 X 射线在真空中的波矢, $\gamma_0 = \chi \kappa_n / (k_0 - \kappa_0)$ 是入射 X 射线的方向余弦下面将从高木方程入手, 推导多层超晶格的 X 射线衍射方程. 对于外延晶体结构, 认为应变和组成在水平方向一致, 在垂直方向变化, 即畸变量是垂直于表面距离为 z 的函数, 此时, 有

$$\partial/\partial s_0 = -\gamma_0 d/dz \quad \partial/\partial s_h = -\gamma_h d/dz \quad (6)$$

γ_0, γ_h 分别是入射 X 射线和衍射 X 射线的方向余弦, 此时, T-T 方程可以化简成一个简单的一阶非线性非齐次微分方程

$$i(\sqrt{\gamma_0 |\gamma_h|} / \sigma) dX/dz = DX^2 + 2CX + B \quad (7)$$

式中

$X = D_h / D_0 \sqrt{|b|}$ 为入射振幅和散射振幅的比率, 其它参量分别为

$$B = pF_h / F_h', C = -(\pi \sqrt{|b|} / \lambda \sigma) \beta_h,$$

$$D = -pF_{-h} / F_h', \sigma = (r_e \lambda / V_c) F_h'$$

这里, 结构因子 F_{-h} 相对于倒戈矢 $-h$ 或者衍射面 (hkl) 而言. 使用 T-T 方程可以模拟摇摆曲线和各向异性的强度等高线图. 方程(7)是一个含复数的一阶偏微分方程, 由于 D, C 和 B 是 z 的函数, 不能直接用分离变量法求解. 如果在 Z 方向上将畸变层分成若干个薄层, 在每个薄层内 D, C 和 B 是常量, 则方程(7)可积分得到递归解, 即

$$X_j = \frac{S_j X_{j-1} - i(B_j + C_j X_{j-1}) \tan(S_j A_j)}{S_j + i(C_j + B_j X_{j-1}) \tan(S_j A_j)} \quad (8)$$

式中 $X_j = X(z_j)$; $S_j = \sqrt{C_j^2 - B_j D_j}$; $A_j = \sigma t_j / \sqrt{\gamma_0 |\gamma_h|}$. X_j 表示经第 j 层反射后的反射振幅比. 因而, 如果知道第 $j-1$ 层的衍射振幅 X_{j-1} , 由式(8)可求出第 j 层的衍射振幅 X_j . 式(8)的递归从衬底 ($j=0$) 开始, 到最上表面层 ($j=n$) 结束. 如图 1, 衬底的解作为边界条件, 在方程(8)中, 只要通过让厚度 t_0 等于无穷大⁷, 可得到衬底的衍射振幅为

$$X_0 = -(C_0 \pm \sqrt{C_0^2 - B_0^2}) / B_0 \quad (9)$$

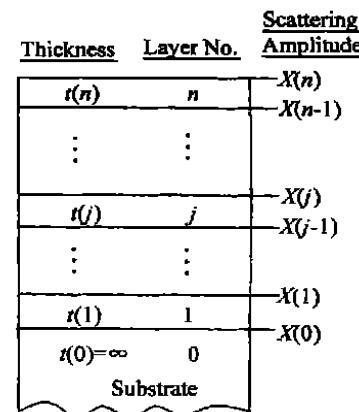


图 1 用于摇摆曲线模拟的层状结构示意图

Fig. 1 Layer schematics for rocking-curve simulation

方程(9)被用来处理层状近似和应变连续变化的异质结质结超晶格样品. 当入射角小于布喇格角时, 式(9)取负号, 当入射角大于布喇格角时, 式(9)取正号. 为了和实验摇摆曲线峰的展宽相吻合, 出于数学的考虑, 衬底的动力学衍射图象一般应该和一个近似高斯函数进行卷积⁸. 图 2 是利用式(9)计算的 GaAs(004) 摆摆曲线, 考虑到吸收, 及消光深度的不同, 因而曲线左右不对称, 这与完整晶体的动力学 X 射线衍射理论得到的曲线是一致的⁹.

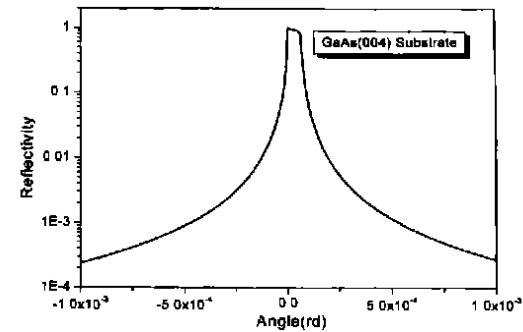


图 2 GaAs(004) 衬底厚度为 ∞ 时的 CuK_{al} 动力学理论计算的衍射摇摆曲线

Fig. 2 CuK_{al} rocking-curve calculated from GaAs(004) when substrate as ∞

2 运动学衍射理论

将外延层分成 M 个薄层, 在每个薄层内采用动力学衍射理论, 然后对 M 个薄层及各层的衍射振幅进行叠加求和, 不考虑各薄层衍射间的相互作用, 而且衬底的衍射仍旧用动力学衍射理论处理. 这种处理方法称为 X 射线的运动学衍射理论, 又称为半动力学衍射理论.

对于薄层的 X 射线衍射, Zachariasen 和 Pinsker 都做过详细论述, 现在推导其解析式.

由前面的动力学微分公式(7),化简

$$-i\text{d}X/\text{d}Z = X^2 - 2\eta X + 1 \quad (10)$$

运动学近似意味着忽略多次反射效应,具体到上式,即把 X^2 项忽略,直接求解可得

$$X_z = X_0 \exp(-i\eta Z) + i \exp(-i\eta Z) \sin(\eta Z) / \eta \quad (11)$$

式(11)即厚度为 Z 的单晶的 X 射线衍射振幅 X_0 为 $Z=0$ 时振幅。若将每个单层分成 M 个厚度为 t 的薄层,共有 N 层,总的反射振幅为

$$X_N = iB \sqrt{|b|} \sum_{j=1}^N a_j \frac{\sin A_j Y_j}{Y_j} \exp(i(A_j Y_j + \varphi_j)) \quad (12)$$

式中

$$b = \gamma_0 / \gamma_H; A = r_e \lambda |F_H| t / V_c \sqrt{|\gamma_0 \gamma_H|}$$

$$Y = \sqrt{|b|} \pi V_c \beta_h / r_e \lambda |F_H|$$

式中 b 为非对称因子。式中 a_j 是与吸收有关的系数,代表了第 j 层经过底 $j+1$ 层直到单层表面这段距离的吸收即

$$a_j = \exp[-[(\gamma_0 + |\gamma_H|)/2] \gamma_0 \gamma_H] \sum_{k=j+1}^M \mu_k t_k \quad (j=1, 2, \dots, M-1)$$

$$\mu_k = \lambda r_e (F_0 + F_h) / V_c$$

$$\varphi_j = 2 \sum_{k=1}^{j-1} A_k Y_k$$

μ_k 是第 k 层的吸收系数; φ_j 是与相位有关的系数,表示第 j 层衍射与衬底衍射间的相位差。对于有 N 个周期,每个周期由 a, b 两层组成的结构,衍射振幅为

$$E_N = i \sqrt{|\gamma_0 / \gamma_H|} \exp(i\beta) F_s \sin N(A_a Y_a + A_b Y_b) / \sin(A_a Y_a + A_b Y_b) \quad (13)$$

式中 β 表示从衬底到表面的相位差

$$\beta = (N-1)(A_a Y_a + A_b Y_b) + A_a Y_a \quad (14)$$

F_s 表示经一个周期后的衍射振幅

$$F_s = \sin A_a Y_a / A_a + \exp[-i(A_a Y_a + A_b Y_b) \cdot \sin A_b Y_b / Y_b] \quad (15)$$

从式(15)可以看出,当

$$A_a Y_a + A_b Y_b = n\pi \quad (n=\pm 1, \pm 2, \dots)$$

时,将出现一系列极大(主极大),对应于超晶格的 $0, \pm 1, \pm 2, \dots$ 各级卫星衍射峰。相邻两主极大的角距离为

$$\Delta\theta_p = \lambda |\gamma_h| / [(t_a + t_b) \sin 2\theta_B] = \lambda |\gamma_h| / (T \sin 2\theta_B) \quad (16)$$

从式(16)可求出超晶格的周期厚度 T 。另外,由函数 $\sin(Nx)/\sin(x)$ 的特点知,在相邻两主极

大间存在 $N-1$ 个极小,因而存在 $N-2$ 个次极大(干涉峰)。实验上把能否观察到超晶格的干涉条纹做为超晶格质量评价的一个重要衡量标准。

相邻两干涉峰距离为

$$\Delta\theta_M = \lambda |\gamma_h| / [N(t_a + t_b) \sin 2\theta_B] = \frac{\lambda |\gamma_h|}{NT \sin 2\theta_B} \quad (17)$$

因此,可求出超晶格的总厚度 NT 。由式(16)和(17),可得到超晶格的周期数

$$N = \Delta\theta_p / \Delta\theta_M$$

3 实验及分析

3.1 运动学理论模拟(KS, Kinematics Simulation)

样品描述:利用 MOCVD 连续生长 20 层 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$,衬底采用掺 Cr^- 的 GaAs ,生长面(100)偏(110)面两度。每层生长厚度为 120mm。

实验条件:衍射仪为 Philip 公司的 X'Pert PW3040,x 射线波长:0, 15406nm (CuK α), 功率:40kV * 40mA, 入射半径:320mm, 检测器:PW3011(miniprop)采用 $\omega-2\theta$ 连续扫描,步长:0.0001,每步停留时间:0.30s, ω 的扫描范围0.1828°,衍射面[004],衍射半径:200mm。

由图 3 可以看出,模拟结果和实验结果吻合的相当好。对于实验结果(虚线)主卫星峰之间的小峰不是很明显,所以外延层生长质量不是很好,而模拟曲线中,我们可以清楚地看到在主卫星峰之间的小峰的存在。上面的模拟参数:厚度

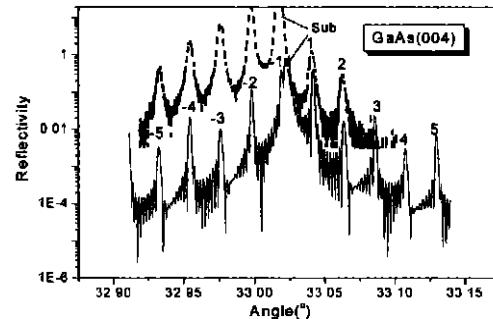


图 3 实验(虚线)和运动学模拟(实线)的 20 层 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 超晶格 $\text{GaAs}(004)$ 双晶高分辨率 X 射线衍射

Fig. 3 High-Resolution X-ray diffraction from $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ superlattice of 20 layers in $\text{GaAs}(004)$ vicinally, experiment data (dashed line) and simulated using kinematical theory (line)

$t(\text{GaAs}) = t(\text{Ga}(x)\text{Al}(1-x)\text{As}) = 120\text{ nm}$, 组分 $x = 0.8$, 由于衬底有微小应变, 以至于衬底峰与 (-1) 阶卫星峰重合. 模拟的衬底的应变为 0.000075, 实验数据经过适当的比例调整, AlGaAs 层应变为 0.0125, GaAs 层的应变为 0.

3.2 动力学理论模拟(DS, dynamic simulation)

对于上面的同一实验结果, 下面用动力学理论也进行了模拟, 结果如图 4 所示.

从图 4 可以看出, 在衬底峰的左侧, 动力学实验曲线和模拟曲线的卫星峰位置能够很好的吻合. 而在衬底峰的右侧, 计算的卫星峰与实验不能很好的吻合, 这是由于以下原因造成的: 1) 吸收和消光的影响, 造成左右不对称. 2) 加上此样品本身每层比较厚和生长厚度起伏. 3) 没有考虑界面层或过度层的存在¹⁰. 对于上面的原因, 我们需要做更深入的研究.

动力学理论模拟参量如下: 模拟参量: $t_1 = t_2 = 120\text{ nm}$, $x = 0.8$. 模拟的衬底的应变为

表 1 20 层 $\text{Ga}(x)\text{Al}(1-x)\text{As}/\text{GaAs}$ 超晶的 X 射线衍射参量

	x	$t(\text{nm})$	AlGaAs 应变	GaAs 应变	衬底应变
设计值	0.38	120	-	-	-
动力学模拟值	0.2	120	0.013	0.00014	0.000075
运动学模拟值	0.2	120	0.0125	0	0.000075

从两种理论模拟的结果来看, 其误差很小. 两种理论对应变都非常灵敏, 尤其是动力学理论, 因而可以用来测定半导体外延结构的应变. 动力学理论需要考虑的因素更多, 多种因素还需要做进一步的研究. 在要求不高的情况下, 运动学理论已经足够了.

4 结论

本文给出超晶格的 X 射线衍射的两种理论-

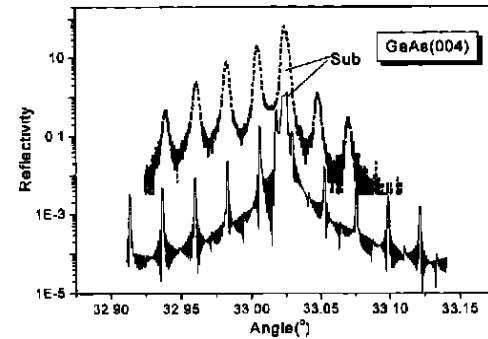


图 4 20 层超晶格 $\text{Ga}(x)\text{Al}(1-x)\text{As}$ 的 $\text{GaAs}(004)$ 双晶高分辨率 X 射线衍射实验结果(虚线)和动力学模拟(实线)结果

Fig. 4 High-Resolution x-ray diffraction from $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ superlattice of 20 layers in $\text{GaAs}(004)$ vicinally, experiment data (dashed line) and simulated using dynamical theory (line)

0.000075. AlGaAs 层应变为 0.0130, GaAs 层的应变为 0.00014. 两种理论得到参量进行比较见表一.

动力学和运动学理论. 分别利用两种理论模拟了 20 层 $\text{GaAlAs}/\text{GaAs}$ 超晶格的 X 射线衍射实验结果, 运动学理论计算的结果与实验吻合的相当好, 从而得到样品的结构参量, 如每层厚度和应变. 动力学理论计算的结果与实验结果有微小的差异, 这是由于动力学理论对于计算参量比较灵敏, 而本文考虑的因素因过少造成的. 对于此缺陷, 还需要进一步完善.

参考文献

- 1 田园, 彭宇恒, 陈维友等. 四种材料构成的超晶格能带结构的研究. 光子学报, 1997, 26(7): 599~603
- 2 李开航, 黄美纯, 张志鹏等. 超晶格($\text{GaAs})_n/(\text{InAs})_1$ (001)的光学性质. 半导体学报, 1999, 20(10): 851~856
- 3 陈枫, 封桂林, 杨锡震等. InAs 自组织生长量子点超晶格的电学性质. 半导体学报, 1998, 19(6): 401~405
- 4 潘栋, 曾一平, 吴巨等. 50 周期的 $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{AsGaAs}$ 应变超晶格的生长. 半导体学报, 1997, 18(6): 470~474
- 5 Gomez I, Dominguez-Adame F, Diez E, et al. Electron transport across a Gaussian superlattice. Journal of Applied Physics, 1999, 85(7): 3916~3918

- 6 Takagi S. Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortions. *Acta Cryst*, 1962, 15(1): 1311~1321
- 7 Wie C R, Kim H M. Kinematical X-ray diffraction mode with a new boundary condition for analysis of Bragg-peak profiles of layered crystals. *J Appl Phys*, 1 May 1991, 69(9): 4542~4548
- 8 Wie C R, Kim H M. Dynamical X-ray diffraction from nonuniform crystalline films: Application to X-ray rocking curve analysis. *J Appl Phys*, 1 May 1991, 69(9): 4625~4630
- 9 Batterman B W. Dynamical diffraction of X-rays by perfect crystals. *Reviews of Modern Physics*, July, 1964, 36(3): 682~716
- 10 Stepanov S A, Kondrashkina E A. Dynamical X-ray diffraction of multilayers and superlattices: Recursion matrix extension to grazing angles. *Phys Rev(B)*, 1998, 57(8): 3959~3965

SUPERLATTICE USING DYNAMICAL THEORY AND KINEMATICAL THEORY OF X-RAY DIFFRACTION

Zhang Dangwei¹, Zhang Jingwen², Hou Xun¹

¹ Institute of Photonics & Photon-Technology, and Provincial Key laboratory of
Photoelectronic Technology, Northwest University, Xi'an 710069

² Xi'an Institute of Optics & Precision Mechanics, Xi'an 710068

Received date: 2001-05-31

Abstract X-ray diffraction dynamical theory and kinematical theory for low-dimension semi-conductor hetero-epitaxy materials are explicated particularly. Originated from Takagi-Taupin equation and based on wave-optics theory, the recursion formulate of reflection amplitude for arbitrary structure multi-layer are obtained. Originating from X-ray dynamic theory and ignoring the effects of multi-reflection, the general formulate of X-ray kinematical theory are obtained. A computer program was written using above theory to calculating X-ray diffraction from 20-layers GaAlAs/GaAs superlattice. The experiment data is simulated using dynamical and kinematical theory respectively to get the structure parameters of the sample, such as thickness, strain and composition.

Keywords X-ray diffraction, Low-dimension semi-conductor; Superlattice; Strain, Dynamical theory; kinematical theory; Computer simulation



Zhang Dangwei was born on August 28, 1976 in Wugong, Shaanxi Province, P.R. China. He earned B.Sc in physics at Physics Department of Northwest University in 1998 and received his M.Sc degree in optics in institute of photonics & photon-technology, and provincial key laboratory of photonic technology, northwest in 2001. His major research fields include quantum optics and X-ray diffraction.