

超晶格结构的 X 射线衍射拟合计算*

马琳** 王玉田 庄蔚华

(中国科学院半导体研究所国家半导体超晶格微结构实验室, 北京, 100083)

摘要: 运用 X 射线衍射运动学理论研究了 $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N/\text{GaAs}(001)$ 一维超晶格的结构, 通过模拟计算, 精确确定了超晶格的结构参数. 本方法可用于各种超晶格结构, 具有普遍意义. 另外, 还对超晶格卫星峰强度的非称性和超晶格中叠层界面处存在过渡层的影响进行了讨论.

关键词: 超晶格, X 射线双晶衍射, 模拟计算.

引言

自从 1969 年 Esaki 和 Tsu^[1,2] 提出人工超晶格概念以来, 超晶格生长技术及其各方面的研究获得了快速发展. 特别是在光电器件和微波器件的研制中, 超晶格更具有潜力.

超晶格材料的发展, 不仅取决于晶体生长技术的改善, 而且还取决于简便而精确的理化测试能力. 在众多的测试技术中, X 射线双晶衍射以其精度高和非破坏性而占据优势, 从而成为理论研究和器件研究的重要工具之一.

本文从 X 射线衍射的运动学理论出发, 由一维超晶格结构模型计算出 X 射线衍射的结构因子, 推导出超晶格各卫星峰的衍射强度, 将其与实验值进行模拟计算, 精确确定出各种结构参数. 另外, 我们还对卫星峰的强度不对称性及界面过渡层的影响做了必要的讨论.

1 一维超晶格的 X 射线衍射运动学理论

MBE $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N/\text{GaAs}(001)$ 一维超晶格是用分子束外延方法, 在 GaAs(001) 衬底上周期性地交替生长 GaAs 和 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 而制成的. 超晶格的台阶模型^[3,4]认为: GaAs/ $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 和 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}/\text{GaAs}$ 界面是平整而陡变的, 即单分子层过度, 并且在 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 层中 x 值分布均匀, 而在 GaAs 层中 $x=0$.

由于 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 的晶格常数大于 GaAs 的晶格常数, 因而在 GaAs 衬底上生长 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 时, 外延层中存在着正应变, $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 由原来的立方晶格变成四方晶格, 即

本文 1990 年 4 月 28 日收到, 修改稿 1990 年 9 月 3 日收到.

* 国家自然科学基金资助项目.

** 现工作单位: 清华大学计算机公司, 100084.

四方畸变. 这种四方畸变可以由生长方向和自由状态下晶格常数之差 ε^\perp 来表示:

$$\varepsilon^\perp = (a_{\text{GaAlAs}}^\perp - a_0) / a_0 = \Delta a^\perp / a_0; \quad (1)$$

式中 a_0 为自由状态下 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 的晶格常数. 根据固体弹性理论, 立方晶系的弹性模量^[5]为

$$[C] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} \\ C_{12} & C_{12} & C_{13} \end{bmatrix}. \quad (2)$$

在外延生长时, 水平方向受到衬底的制约, 而生长方向是自由的. 即在水平方向的双轴应力作用下, 生长方向的应力应为零. 所以

$$\sigma_{zz} = 0 = C_{12}(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) + C_{11} \cdot \varepsilon_{zz}, \quad (3)$$

$$a_{\text{GaAlAs}}^\perp = a_0(1 + \varepsilon_{\text{GaAlAs}}^\perp) = a_0(1 - 2C_{12} / C_{11} \cdot C^{\parallel}), \quad (4)$$

其中

$$C^{\parallel} = \varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = (a_s - a_0) / a_0; \quad (5)$$

这里 a_s 为自由状态下衬底 GaAs 的晶格常数. 于是可获得

$$a_{\text{GaAlAs}}^\perp = a_s[1 + (1 + 2C_{12} / C_{11}) \cdot (a_0 - a_s) / a_s]. \quad (6)$$

由于

$$\left. \begin{aligned} a_0 &= (0.56534 + 0.00078x)\text{nm}, \\ a_s &= 0.56534 \text{ nm}, \\ C_{11} &= (11.88 + 0.14x) \cdot 10^{11} \text{ dyn/cm}^2, \\ C_{12} &= (5.38 + 0.32x) \cdot 10^{11} \text{ dyn/cm}^2, \end{aligned} \right\}$$

$$a_{\text{GaAlAs}}^\perp = (0.56534 + 0.00016x) \text{ nm}. \quad (7)$$

综上所述, 我们给出 $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N / \text{GaAs}(001)$ 一维超晶格的结构模型(见图 1). 超晶格的周期为

$$D = 2md_1 + 2nd_2 = (ma_{\text{GaAlAs}}^\perp + na_{\text{GaAs}}) / 2, \quad (8)$$

式中 $2d_1$ 和 $2d_2$ 分别为 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 和 GaAs 单分子层厚度.

超晶格的 X 射线衍射遵守 Bragg 定理

$$2D\sin\theta = L\lambda, \quad (9)$$

式(9)中 D 为超晶格周期, L 为衍射级数, λ 为 X 射线波长, θ 为 Bragg 角. 根据超晶格的台阶模型, X 射线衍射卫星峰强度振幅为

$$A(00L) = F_{00L} \sum_N \exp i\pi LNL. \quad (10)$$

式(10)中 F_{00L} 为超晶格的结构因子

$$F_{00L} = \sum_{j=1}^{N_{SL}} f_j \exp(2\pi i LZ_j), \quad (11)$$

其中 N 为超晶格的总周期数, N_{SL} 为超晶格一个晶胞中的原子总数, f_j 为第 j 个原子的散

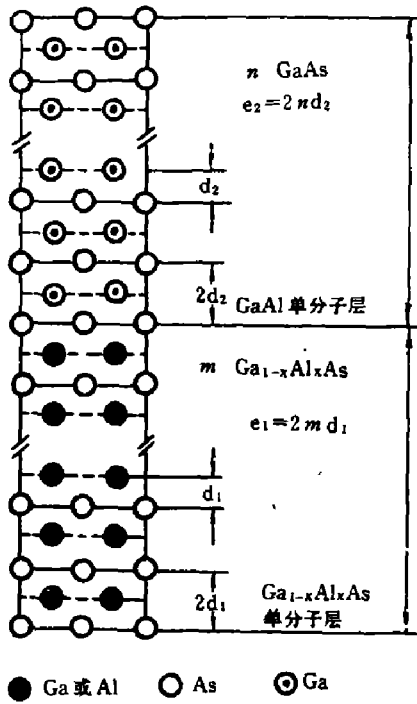


图 1 一维超晶格 $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N / \text{GaAs}(001)$ 晶胞
Fig.1 A cell of one-dimensional superlattice $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N / \text{GaAs}(001)$

射因子, Z_j 为第 j 个原子的分数坐标. 对于 $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N/\text{GaAs}(001)$, 可以获得

$$F_{00L} = (f_{\text{As}} + f_{\text{GaAl}} R_1^{1/2}) \frac{R_1^{2m} - 1}{R_1 - 1} + (f_{\text{As}} + f_{\text{Ga}} R_2^{1/2}) \frac{R_2^{2n} - 1}{R_2 - 1}. \quad (12)$$

其中

$$\left. \begin{aligned} R_1 &= \exp(i2\pi L \cdot 2d_1 / D), \\ R_2 &= \exp(i2\pi L \cdot 2d_2 / D), \\ f_{\text{GaAl}} &= (1-x)f_{\text{Ga}} + xf_{\text{Al}}. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

散射因子 f_i 可由下述方法求得^[7]

$$f_{0j} = \sum_{i=1}^4 a_i \exp\left(-b_i \frac{\sin^2 \theta}{\lambda^2}\right) + C. \quad (14)$$

式(14)中 a_i , b_i , c 为拟合常数^[8]. 考虑到色散效应, 原子的散射因子应写为

$$f_j = f_{0j} + \Delta f_j' + i\Delta f_j'', \quad (15)$$

式(15)中 $\Delta f_j'$ 和 $\Delta f_j''$ 为色散校正项^[9], 它们都是波长和 Bragg 角 θ_B 的函数. 由于色散效应主要来自原子内层电子的影响, 因此, 对于 θ_B 的依赖很小. 这样对于固定波长 λ , 可近似认为 $\Delta f_j'$ 和 $\Delta f_j''$ 为常数.

2 实验与理论计算结果

在模拟计算过程中, 我们采用编差因子 Δ 来衡量模拟程度的好坏. Δ 越小, 拟合越精确,

$$\Delta = \sum |I_c - I'_c| / \sum L_c. \quad (16)$$

式中 I_c 和 I'_c 分别表示超晶格卫星峰的实验与理论计算强度, 求和是对所有观察到的卫星峰. 图 2 是一个样品 $\vec{g}_1 = 002$, $\vec{g}_2 = 004$ 衍射的回摆曲线.

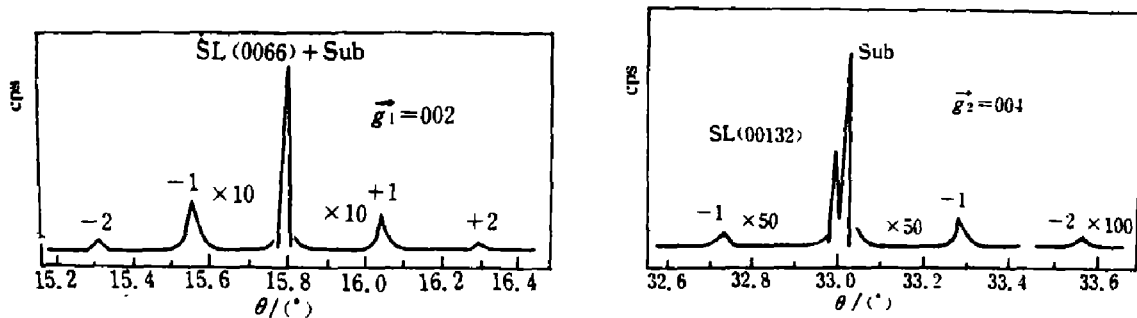


图 2 一个超晶格样品的 X 射线双晶衍射回摆曲线 $\vec{g}_1 = 002$, $\vec{g}_2 = 004$, $\text{CuK}\alpha_1$ 辐射

Fig.2 The rocking curve of X-ray double-crystal diffraction for a superlattice sample

$\vec{g}_1 = 002$, $\vec{g}_2 = 004$, $\text{CuK}\alpha_1$ radiation.

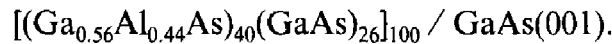
由图 2 可见, 对于 $\vec{g}_1 = 002$ 衍射, 中间最强的衍射是衬底峰和超晶格“0”级卫星峰的叠加, 可以看到“ ± 1 ”、“ ± 2 ”级卫星峰; 对于 $\vec{g}_2 = 004$ 衍射, 衬底峰与“0”级峰分开, 也可见到“ ± 1 ”、“ ± 2 ”级卫星峰, 图中还标出了“0”级卫星峰的实际级数 L , 这是计算拟合的最终结果(见表 1).

表1 模拟计算结果

Table 1 The data of computing simulation

卫星峰级数	-2	-1	0	+1	+2	-2	-1	0	+1	+2
实际级数 L	64	65	66	67	68	130	131	132	133	134
实验强度 I_e	0.94	12.40		8.88	1.19		0.12	100	1.39	0.10
理论强度 I_c	1.08	14.52	100	9.18	1.39	0	0.10	100	1.23	0.10
最小偏差因子 $\Delta(\%)$		2.2						0.2		

表1中所给出的实际衍射级数是最小偏差因子的最佳拟合结果. 由此可以给出样品的所有结构参数: $x=0.44$, $m=40$, $n=26$, 周期 $D=18.7\text{nm}$, 阱宽 $L_z=7.4\text{nm}$, 垒宽 $L_B=11.3\text{nm}$, 周期数 $N=100$ (生长参数). 这个超晶格样品的结构式为



3 讨论

3.1 超晶格卫星峰强度与组分 X 的关系

由于组分 X 值的变化必然导致超晶格中应变的变化, 从而影响卫星峰的强度. 对于 $\bar{g}_1=002$ 衍射, 我们的计算给出了与 J.Kervarce^[11] 相似的结果 (见图3). 由图3可见, 所有的负级卫星峰都比同级的正级卫星峰强, “±1”级卫星峰强度随 X 值呈单调变化; “±2”级卫星峰随 X 值呈周期性变化, 当 X 值取某些特殊值时, 将出现“±2”级以上卫星峰的消光现象, 对于 $\bar{g}_2=004$ 衍射, 计算表明正级卫星峰比同级级的负级卫星峰强.

3.2 应变对卫星峰强度对称性的影响

从图2可以看出超晶格“0”级卫星峰两边的卫星峰的强度是不对称的. 这是由于组成超晶格的两种材料具有不同的晶格常数. 由式(12)可知, 当无应变时 ($d_1=d_2$), $D=2(m+n)d_1$, $R_1=R_2$, 因此

$$R_1^m R_2^n = \exp[i2\pi L \cdot (2d_1/D) \cdot (m+n)] = 1, \quad (17)$$

$$F_{00L} \propto (f_{\text{GaAl}} - f_{\text{Ga}}) \frac{R_1^{1/2}(R_1^m - 1)}{R_1 - 1}. \quad (18)$$

对于第+j级卫星峰

$$R_{1+j} = \exp\left[\frac{i2\pi}{m+n}(L+j)\right] = \exp[i2\pi j/(m+n)], \quad (19)$$

对于第-j级卫星峰

$$R_{1-j} = \exp[-i2\pi j/(m+n)], \quad (20)$$

所以

$$R_{1+j}^* = R_{1-j},$$

$$I_{00L+j} \propto F_{00L+j} \cdot F_{00L+j}^*, \quad (21)$$

即

$$I_{00L+j} = I_{00L-j}. \quad (22)$$

由此可见, 超晶格中无应变时, 各卫星峰的强度是以“0”级卫星峰为中心对称的. 一般来说, 组成超晶格材料的晶格常数是不同的, 所以所观察到的卫星峰强度是不以“0”级峰对称的. 这种不对称性随着 $\Delta d = d_1 - d_2$ 的增加而增加, 这对于应变层超晶格是重要的.

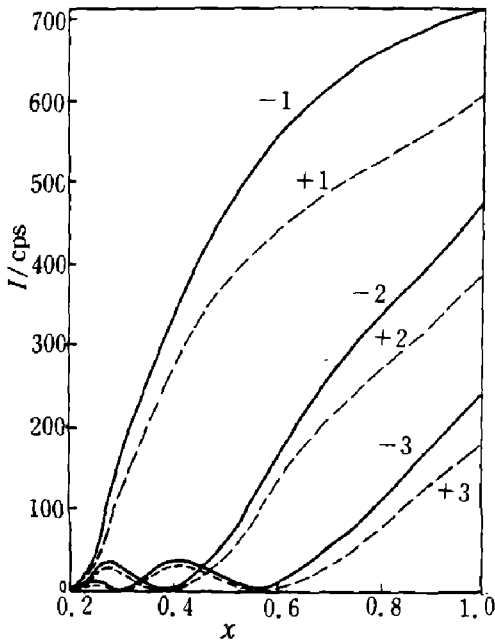


图 3 $\bar{g}_1 = 002$ 衍射时卫星峰强度随 Al 含量 (x 值) 的变化曲线
Fig.3 Variation of the satellite peak intensity with Al content x in the superlattice for $\bar{g}_1 = 002$

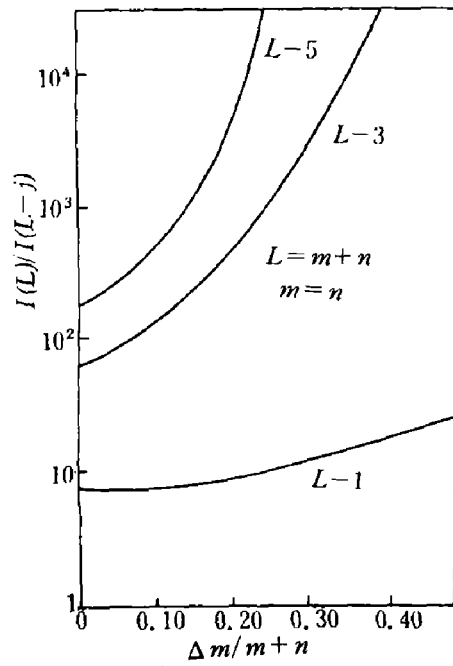


图 4 $\bar{g}_1 = 002$ 衍射中 I_{00L} / I_{00L-j} 随 $\Delta m / (m+n)$ 的变化曲线. $m+n=18, x=0.3$.
Fig.4 Relationship between I_{00L} / I_{00L-j} and $\Delta m / m+n, m+n=18, x=0.3$.

3.3 界面过渡层对卫星峰强度的影响

虽然超晶格台阶模型成功地解决了结构参数的测量问题, 但是它与实际情况可能存在着一定的差别. 首先界面过渡可能不是单分子层过渡, 而是存在一个 Δn 层的过渡区. 在这过渡区中 Al 含量可能是变化的, 它肯定小于 x 值.

假设在 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As} / \text{GaAs}$ 界面处有 Δm 层的过渡区, 而在 $\text{GaAs} / \text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 界面处存在 Δn 层的过渡区, 那么式 (12) 就可以改写为

$$\begin{aligned}
 F_{00L} = & (f_{\text{As}} + f_{\text{GaAl}} \cdot R_1^{1/2}) \frac{R_1^m - 1}{R_1 - 1} + (f_{\text{As}} + f_{\text{GaAl}} \cdot R_{\Delta m}^{1/2}) \cdot \frac{R_1^m (R_{\Delta m}^{\Delta m} - 1)}{R_{\Delta m} - 1} \\
 & + (f_{\text{As}} + f_{\text{Ga}} \cdot R_2^{1/2}) \frac{R_1^m R_{\Delta m}^{\Delta m} (R_2^m - 1)}{R_2 - 1} \\
 & + (f_{\text{As}} + f_{\text{GaAl}} \cdot R_{\Delta n}^{1/2}) \cdot \frac{R_1^m \cdot R_{\Delta m}^{\Delta m} R_2^m (R_{\Delta n}^{\Delta n} - 1)}{R_{\Delta n} - 1}; \quad (23)
 \end{aligned}$$

式(23)中

$$\begin{aligned}
 R_{\Delta m} &= \exp(i2\pi L \cdot 2d_{\Delta m} / D), \\
 R_{\Delta n} &= \exp(i2\pi L \cdot 2d_{\Delta n} / D);
 \end{aligned}$$

由此可以算出各卫星峰强度与过渡层 Δm (或 Δn) 的关系曲线 (见图 4), 其结果与文献[11] 相同.

由图 4 可见, 过渡区越小, 强度变化越小, 对于相同的 Δm , 卫星峰的级数越高, 其强度减小就越快, 因而可观察的卫星峰数目就越少. 另外, 在衍射回摆曲线中, 有时还观察到强度反常的卫星峰, 一般的模拟计算得不到满意的结果. 此时可以考虑到过渡区的影响^[10].

4 结论

通过 X 射线衍射运动学理论, 我们成功地解决了 $[(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As})_m(\text{GaAs})_n]_N / \text{GaAs}$ (001) 一维超晶格模拟计算中结构参数的精确确定问题, 理论计算与实验符合很好. 我们的计算表明卫星峰强度对“0”级峰的非对称性是与超晶格中应变的大小有关的, 而过渡层的存在对卫星峰的强度影响更大, 甚至使高级卫星峰消光.

致谢: 本工作曾得到中国科学院半导体研究所孔梅影和江德生研究员的帮助, 在此深表谢意.

参 考 文 献

- 1 Esaki L, Tsu R. *IBM Rev. Note*, 1969, RC-2418
- 2 Esaki L, Tsu R. *IBM J. Rev. Dev.*, 1970, 61: 14
- 3 Segmüller A, Blakeslee A E. *J. Appl. Cryst.*, 1973, 6: 19
- 4 Spertiosu V S, Vreeland T. *J. Appl. Phys.*, 1984, 56: 1591
- 5 方俊鑫, 陆栋. *固体物理学*, 上海: 上海科学出版社, 1981, 93
- 6 Sadao Adachi. *J. Appl. Phys.*, 1985, 58: PR1
- 7 黄胜涛. *固体 X 射线学 (1)*, 北京: 高等教育出版社, 1985, 397
- 8 James A et al. *International Tables for X-Ray Crystallography*, 1974, 4: 99
- 9 James A et al. *International Tables for X-Ray Crystallography*, 1974, 4: 148
- 10 Vandenberg J M. *J. Appl. Phys.*, 1987, 62: 15
- 11 Kervarec J et al. *J. Appl. Cryst.*, 1984, 17: 197

X-RAY DOUBLE-CRYSTAL DIFFRACTION OF SUPERLATTICES AND ITS COMPUTER SIMULATION*

Ma Lin** , Wang Yutian, Zhuang Weihua

(National Laboratory of Semiconductor Superlattice Microstructure, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: By using the X-ray diffraction kinematical theory which assumes ideally sharp interfaces, with computer simulation calculation, the accurate values of $(\text{GaAlAs})_m(\text{GaAs})_n/\text{GaAs}$ (001) one-dimensional superlattice structure parameters have been obtained. In addition, the influence of asymmetry of the satellite peak intensity and the presence of the transition layer and the strain has also been analyzed and discussed.

Key words: superlattices, X-ray double-crystal diffraction, simulation calculation.

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China.

** Present address: Computer Company of Tsinghua University, Beijing 100084, China.