

学号: 7244

XW-0375

50

中国科学院物理研究所

研究生毕业论文

题目:

半导体多层膜的X射线
双晶衍射研究

姓名:

欧阳普廷

专业:

固体物理

导师:

袁佑洪

学位:

硕士

一九九一年五月 日

摘 要

λ 射线双晶衍射及其摇摆曲线的模拟是研究多层膜结构和完美性的重要手段。本文简要介绍了畸变晶体 λ 射线动力学衍射理论，并从高木方程推导出适合多层膜结构的迭代解，由此给出了双晶摇摆曲线的动力学理论模拟方法。利用这一工具分析了几种样品的摇摆曲线。

通过对 GeSi/Si 超晶格摇摆曲线的测量和模拟，得到了样品中组分和层厚跃变的结构，和超晶格界面部分松弛的结果。分析了成分和层厚跃变，界面松弛对摇摆曲线的影响；说明了层厚的跃变是造成卫星峰分裂的主要因素。

测定了 InAlAs/InP 样品的摇摆曲线，得到了样品中成分渐变的梯度层结构。计算分析了梯度层对摇摆曲线的影响；指出当梯度层存在时只有通过模拟计算才能准确确定外延层的结构参数。

采用简单模型，初步分析了界面粗糙对高质量样品摇摆曲线的影响；说明即使样品的结构参数是精确控制的，但界面的不完美性仍难以避免。

目 录

第一章	前言	1
第二章	X射线双晶衍射技术和双晶衍射摇摆曲线	5
§ 2.1	X射线双晶衍射仪简介	5
§ 2.2	双晶衍射的色散率	7
§ 2.3	双晶衍射的反射率	8
第三章	X射线双晶摇摆曲线的动力学理论模拟计算	10
§ 3.1	畸变晶体X射线双晶衍射的动力学理论	10
§ 3.1.1	局域倒易点阵	10
§ 3.1.2	晶体中的调制波	11
§ 3.1.3	动力学理论的普遍形式——高木方程	12
§ 3.2	多层膜 X射线双晶摇摆曲线的计算	14
§ 3.3	参数的求解	15
第四章	GeSi/Si 超晶格的结构分析	20
§ 4.1	实验	20
§ 4.2	实验结果及分析	21
§ 4.3	讨论	34
§ 4.4	结论	35
第五章	$\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 梯度层对 X射线双晶摇摆曲线的影响	37
§ 5.1	问题的提出和实验	37
§ 5.2	计算结果及讨论	39
§ 5.2.1	梯度外延层结构	40
§ 5.2.2	梯度过渡层	41
§ 5.2.3	讨论	45
§ 5.3	结语	46
第六章	梯度界面和界面粗糙	47
§ 6.1	概述	47
§ 6.2	界面粗糙对摇摆曲线的影响	48
§ 6.3	结语	54
结论		55
参考文献		57
论文期间的文章		59
致谢		60

第一章 前言

半导体化合物材料，特别是半导体多层膜，由于它优越的性能，在光电器件和微波器件的研制中具有广阔的前景，因而越来越受到广泛的重视和研究。近几十年来，随着表面科学的发展，各种外延技术如 LPE、MOCVD、MBE 等的发展和完善，能在 Si、GaAs、InP 等衬底上生长几乎所有可能的化合物，其组元包括 Ga, In, Al, As, P, Ge, Si 及 Sb 等。1969 年江崎和朱兆祥^[1]提出超晶格结构后，发现了负电阻^[2]等新的材料物理特性。通过改变化合物组元的成分和外延层的厚度而改变异质结构界面的能带^[3,4,5]，使人工合成新的光电材料成为可能。当两种不同点阵常数的材料生长在一块晶体上时，点阵往往发生畸变以达到界面的匹配。这种畸变不仅可以减少或消除界面的失配位错，而且决定了晶体中应变的分布，因而决定着器件材料的性能。即使材料的点阵失配达 1% 或 2%，只要外延层的厚度足够薄，点阵失配仍可以被均匀的点阵畸变所调整掉^[6]，从而能生长界面无失配位错的高质量异质结构材料^[7,8]。生长外延材料时点阵不要求匹配使得制备外延结构可选用的材料大大增加，设计和制备新的化合物及符合要求的器件结构更具有诱惑力。

器件的性能与晶体的组元和完美性密切相关，而晶体的完美性依赖于生长工艺和对晶体结构的精确测量。当生长工艺不完善或生长过程偶然因素（如 MBE 中束源温度或束流等因素的微小改变）存在时，晶体中会出现一些不完美性，诸如成分的不均匀、晶片不均匀弯曲、界面不完美乃至失配位错的产生。因而外延层结构有时与设计参数不完全相符合。检测和研究外延层结构及其完美性对了解器件性能和提高工艺水平无疑是非常重要的。

在众多研究外延结构的实验方法中，X 射线衍射技术是最重要的手段之一。特别是三十年代初建立起来的 X 射线双晶衍射仪，更是独树一帜，已成为检测外延结构的有效工具。五十年代以来，随着高质量近完美晶体大量制备出来，X 射线双晶衍射技术的应用和发展日臻完善。双晶衍射的主要目的是获得好的角分辨率，以探测晶体内部和表面的结构和缺陷。由于它制样简单、对样品无损伤和无污染，样品可以继续地进行其他测量，因而能结合其他测量方法取得样品更全面的信思。X 射线双晶衍射测得高完美晶体摇摆曲线的半峰宽接近理想晶体的理论半峰宽。如果晶体中存在缺陷，其摇摆曲线的半峰宽就会增大。这一特性很早就被用来检测晶体的完美性^[9-12]。X 射线双晶衍射还广

范用来测量外延层的应变和成分，层厚及晶体的弯曲^[13-19]。双晶衍射的摇摆曲线给出外延层的许多信息^[20]。对简单结构的单外延层可直接从摇摆曲线上得到成分和层厚的信息。对于结构比较复杂的多层膜和超晶格，其摇摆曲线因层间的干涉而变得复杂，不能简单地从摇摆曲线上得到晶体的准确信息，必须对实验曲线进行理论模拟。模拟双晶摇摆曲线的方法大致有三种，即运动学方法、半运动学方法和动力学方法。Speriosu^[21,22]等人用运动学理论研究超晶格和多层膜结构的X射线衍射。该理论只能用于反射率小于6%的衍射。对反射率大于6%的情况运动学理论已不适用，而且运动学理论也不能用于非理想超晶格结构。这种情况下必须采用更精确的X射线衍射动力学理论。

动力学理论模拟双晶摇摆曲线的方法是基于Takagi^[23,24]和Taupin^[25]建立的畸变晶体X射线衍射动力学理论的一组微分方程组。由此导出的半运动学理论^[19,26]和Takagi-Taupin方程积分形式的迭代解^[16,27]得到了普遍应用。通过对样品实验双晶摇摆曲线的理论模拟，可以决定多层膜的成分和层厚，超晶格的组分和周期以及样品的弯曲等^[16-20, 26-35]。另外，通过模拟实验曲线，还能进一步研究晶体的完美性，如应变在表层的分布^[13]、超晶格周期和成分起伏^[22,36]、界面和表面的完美

性^[37-40]。

高精度的 α 射线衍射还可以采用三晶或更多晶体的衍射。多重晶体衍射的角分辨率非常高，能更精确地测量晶体的微小应变和多层膜的层间干涉效应。但是由于多晶衍射的 α 射线强度损失较大，要求光源的强度大，普通实验室不易做到。由于同步辐射的发展，使多晶衍射得到实现并已用于实际测量。可以期待 α 射线衍射将会向更精确、更灵敏的方向发展。

本文的目的是从畸变晶体的动力学衍射理论出发，推导 Takagi-Taupin 方程组的多层膜的迭代解；并以 α 射线双晶衍射及其摇摆曲线的理论模拟方法为主要手段，分析一些化合物多层膜的结构及其完美性；进一步分析几种因素对多层膜双晶衍射摇摆曲线的影响。

第二章 X射线双晶衍射技术和双晶衍射摇摆曲线

§2.1 X射线双晶衍射仪简介

X射线衍射技术发展迄今已成为观测晶体结构和缺陷的有效手段。高分辨X射线双晶衍射技术更是检测晶体和外延结构的高精度实验工具。与一般的X射线衍射术不同，双晶衍射的基本原理是光源出射的X射线先入射到一个高完美的晶体上进行衍射，得到单色波长、发散度很小的X射线，作为第二晶体(通常是样品)的入射束，以记录样品 Bragg 衍射附近的反射强度随角度的变化曲线，即样品的双晶摇摆曲线。在一定条件下，该入射束可以偏振化。由于它的高分辨性和非破坏性，可以用来测量X射线的波长、谱线宽度和晶体的反射率。现行的双晶衍射仪的工作原理如图2.1所示。第一晶体和

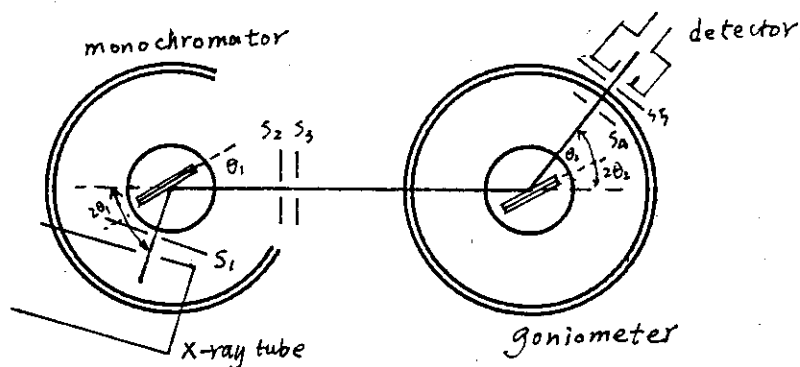


图2.1 双晶衍射仪的工作原理示意图

第二晶体都可以自转；探测器可以绕第二晶体转动。此外，固定在测角仪上的第二晶体还可以平动和倾动，这样不仅可以保证第一晶体和第二晶体的入射束与出射束的垂直性，而且可以利用第二晶体的平动来拍摄它的形貌。第二晶体的转角和样品反射率的采样是由微机自动控制的。

根据不同测量需要， α 射线双晶衍射仪中第一晶体(A)和第二晶体(B)可以有多种排列方式，主要分类方式有三种：

(1) 第一晶体的入射束与第二晶体的衍射束在第一晶体的两侧时称为 $(+,-)$ 排列；反之称为 $(+,+)$ 排列。如果两个晶体种类相同且衍射指数相同则称为 $(+n,-n)$ 或 $(+n,+n)$ 排列；否则称为 $(+n,-m)$ 或 $(+n,+m)$ 排列。

(2) 入射束和衍射束在晶体表面的同一侧时称为Bragg型或反射型；反之称为Laue型或透射型。

(3) 相对于晶体表面法线， α 射线的入射束与反射束的角度相等时称为对称情形；反之称为非对称情形。在对称情形下，衍射面平行或垂直于晶体表面。

图2.2分别给出几种典型的双晶排列的例子。

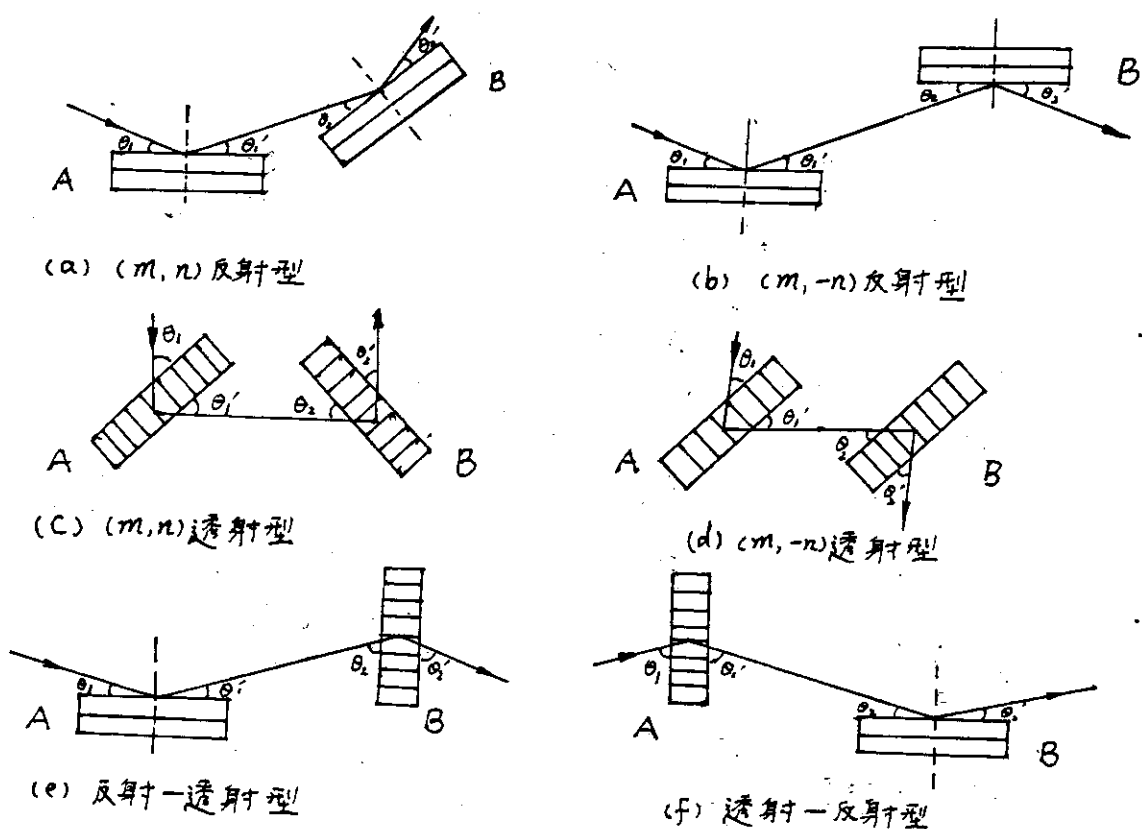


图2.2 双晶衍射第一晶体A和第二晶体B的几种排列方式

§2.2 双晶衍射的色散率^[41]

对于某晶体，折射率为 n ，衍射面的面间距为 d ，Bragg角为 θ_B ，则其色散率为

$$D = d\theta/d\lambda = n/2d\cos\theta_B \quad (2-1)$$

双晶衍射的色散率是两个晶体色散率之和。对 $(+n, -m)$ 排列的双晶衍射，二晶体的波长变化相同且角度变化的符号相反，其色散率为

$$D = D_1 - D_2 = n_1/2d_1\cos\theta_{B1} - n_2/2d_2\cos\theta_{B2} \quad (2-2)$$

如果两个晶体种类相同且衍射指数相同，那么其色散率为 $D=0$ ；由此可知 $(+n, -n)$ 排列的双晶衍射是无色散的。其他排列皆为有色散的。在无色散排列的双晶衍射仪中，当光路中没有光

同时，第一晶体衍射束发散角 α 内的所有波长的 x 射线都会在第一晶体的不同地方同时产生 Bragg 衍射，且经过第二晶体后的 x 射线的发散角仍为 α 。其光路如图 2.3 所示。

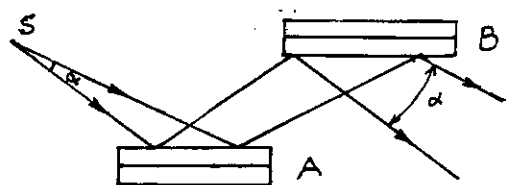


图2.3 (+n, -n)反射型双晶衍射光路

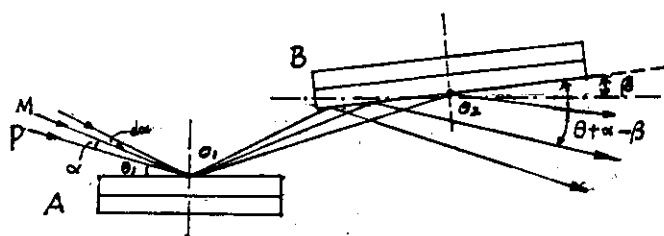


图2.4 双晶衍射仪几何原理

§2.3 双晶衍射的反射率^[42]

图 2.4 表示一台 $(+n, -n)$ 排列的双晶衍射仪。其中 A 是完美晶体。根据 x 射线衍射动力学理论^[43]，完美晶体的反射范围只有几秒到几十秒。但在通常实验条件下，入射束经光阑限制后其发散角比完美晶体的反射范围大得多。假定入射束 MO_1 与 PO_1 在水平方向所成的发散角为 α (称为水平发散度)，忽略垂直发散度，并设晶体 B 沿逆时针方向转动的角度为正。晶体 A 和 B 的反射系数分别为 R_A 和 R_B 。那么强度为 I_0 的 x 射线照到 A 上，入射角在 $(\theta_1 + \alpha) - (\theta_1 + \alpha + d\alpha)$ 内的 x 射线束经 A 的衍射后变为

$$dI_A = I_0(\alpha) R_A(\alpha) d\alpha \quad (2-3)$$

晶体 A 反射的 x 射线总强度为

$$I_A = \int d\alpha I_0(\alpha) R_A(\alpha) \quad (2-4)$$

晶体 A 的出射束作为 B 的入射束，在与 B 成的入射角为 $(\theta_1 + \alpha - \beta) - (\theta_1 + \alpha - \beta + d\alpha)$ 内的 α 射线经 B 的反射后强度为：

$$dI_B = R_B(\alpha - \beta) dI_A = I_0(\alpha) R_A(\alpha) R_B(\alpha - \beta) d\alpha \quad (2-5)$$

晶体 B 反射的 α 射线总强度为：

$$I_B = \int d\alpha I_0(\alpha) R_A(\alpha) R_B(\alpha - \beta) \quad (2-6)$$

因此晶体 B 在转动 β 时的反射率为：

$$R(\beta) = I_B / I_A = \int d\alpha I_0(\alpha) R_A(\alpha) R_B(\alpha - \beta) / \int d\alpha I_0(\alpha) R_A(\alpha) \quad (2-7)$$

通常入射束的强度 I_0 随 α 是缓变的，在 R_A 和 R_B 有明显变化的区域， α 射线的水平发散角较小，因此可以把 $I_0(\alpha)$ 看成常数。这样 (2-7) 式变成：

$$R(\beta) = \int d\alpha R_A(\alpha) R_B(\alpha - \beta) / \int d\alpha R_A(\alpha) \quad (2-8a)$$

对于非偏振化的 α 射线， α 式应写成：

$$R(\beta) = \int d\alpha [R_A^\sigma R_B^\sigma + R_A^\pi R_B^\pi] / \int d\alpha (R_A^\sigma + R_A^\pi) \quad (2-8b)$$

其中 σ 和 π 分别代表 α 射线垂直和平行入射面的偏振分量。

式 (2-8) 即双晶衍射的反射率。

第三章 α 射线双晶摇摆曲线的动力学理论模拟计算

α 射线双晶摇摆曲线可以用 α 射线衍射的运动学理论、半运动学理论和动力学理论模拟。衍射运动学理论忽略了晶体中的多次散射效应，破坏了能量守恒。为此 Darwin^[44]首先提出了动力学理论；随后 Ewald^[45]、Laue^[46]、Zacharisen^[47]等人发展并完善了动力学理论。后来 Takagi^[23, 24]和 Taupin^[25]分别用不同方法处理了完美晶体 α 射线衍射动力学理论，并推广到畸变晶体的范围。本章简要介绍畸变晶体 α 射线衍射动力学理论，推导出高木方程多层结构的迭代解；由此给出多层膜双晶摇摆曲线的动力学理论模拟方法。

§3.1 畸变晶体 α 射线衍射动力学理论^[43, 23-25]

§3.1.1 局域倒易点阵

在处理畸变晶体 α 射线衍射问题时，Takagi引入了局域倒易点阵的概念。假定原子在晶体畸变时从 $\vec{r}_0$ 移至 $\vec{r} = \vec{r}_0 + \vec{u}(\vec{r}_0)$ ； $\vec{r}_0$ 处原胞基矢 $\vec{\alpha}_i(\vec{r}_0)$ 经位移场 $\vec{u}(\vec{r}_0)$ 畸变后变到 $\vec{r}$ 处的 $\vec{\alpha}'_i(\vec{r})$

$$\begin{aligned} [\vec{\alpha}'_i(\vec{r})]_k &= [\vec{\alpha}_i(\vec{r}_0)]_k + \sum_j \partial \vec{u}_j / \partial x_k [\vec{\alpha}_i(\vec{r}_0)]_j \\ &= \sum_j [\delta_{jk} + \partial u_j / \partial x_k] \cdot [\vec{\alpha}_i(\vec{r}_0)]_j \end{aligned} \quad (3-1)$$

$$\text{或写成矩阵形式 } \vec{\alpha}'_i(\vec{r}) = \vec{T} \cdot \vec{\alpha}_i(\vec{r}_0) \quad (3-2)$$

其中 $\vec{\epsilon}$ 为晶体的应变张量。假定晶体的弹性形变较小，满足条件

$$|\partial \vec{u}_i / \partial x_j| \ll 1 \quad (3-3)$$

并设 $\vec{b}_j(\vec{r}_0)$ 为 $\vec{r}_0$ 处的倒易点阵基矢，满足

$$\vec{b}_j^T(\vec{r}_0) \cdot \vec{a}_i(\vec{r}_0) = \delta_{ij} \quad (3-4)$$

$\vec{\epsilon}$ 表示倒置矩阵。倒易点阵基矢的变换满足：

$$\vec{b}_j'(\vec{r}) = \vec{\epsilon}' \cdot \vec{b}_j(\vec{r}) \quad (3-5)$$

那么，由 (3-2)，(3-4) 和 (3-5) 式得到

$$\vec{\epsilon}'^T \cdot \vec{\epsilon} = \mathbf{I} \quad (3-6)$$

这表明倒易空间的变换矩阵 $\vec{\epsilon}'$ 是正空间变换矩阵 $\vec{\epsilon}$ 倒置矩阵的逆矩阵。满足条件 (3-3) 时，

$$\vec{\epsilon}' = \begin{bmatrix} 1 - \partial u_1 / \partial x_1 & -\partial u_2 / \partial x_1 & -\partial u_3 / \partial x_1 \\ -\partial u_1 / \partial x_2 & 1 - \partial u_2 / \partial x_2 & -\partial u_3 / \partial x_2 \\ -\partial u_1 / \partial x_3 & -\partial u_2 / \partial x_3 & 1 - \partial u_3 / \partial x_3 \end{bmatrix} = \mathbf{I} - \nabla \cdot \vec{u} \quad (3-7)$$

由于倒格矢和倒易点阵基矢的变换矩阵相同，于是可以得到局域倒易点阵矢量的变换：

$$\vec{g}' = \vec{\epsilon}' \cdot \vec{g} = \vec{g} - \nabla(\vec{g} \cdot \vec{u}) \quad (3-8)$$

$$\vec{k}_g' = \vec{k}_0 + \vec{g}' = \vec{k}_g - \nabla(\vec{g} \cdot \vec{u}) \quad (3-9)$$

其中 $\vec{g}'$ 为局域倒易矢量， $\vec{k}_g'$ 为畸变后衍射波矢。

§ 3.1.2 晶体中的调制波

X射线衍射动力学理论认为X射线在晶体内的波场可以表示为平面波迭加而成的Bloch波。各Bloch波分量相互干涉产生类似摆动解的振幅或位相调制，即Pendellösung效应。畸变晶体中在

满足条件(3-3)时, Bloch波仍可写成

$$\vec{D}(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} \vec{D}_{\vec{g}}(\vec{r}) e^{-i2\pi \vec{k}_g \cdot \vec{r}} \quad (3-10)$$

利用局域倒易点阵的概念, 可将上式写成:

$$\vec{D}(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} \vec{D}'_{\vec{g}}(\vec{r}) e^{-i2\pi S_{\vec{g}}(\vec{r})} \quad (3-11)$$

其中 $S_{\vec{g}}(\vec{r}) = \vec{k}_g \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u}$ 是等相面函数。波的波矢(3-9)式可以由 $S_{\vec{g}}(\vec{r})$ 的空间求导得到。

§3.1.3 动力学衍射普遍理论 —— 高木方程

X射线在畸变晶体的传播仍满足传播方程:

$$\nabla^2 \vec{D} + 4\pi^2 |\vec{k}|^2 \vec{D} + 4\pi \nabla \times \nabla \times \vec{P} = 0 \quad (3-12)$$

当晶体轻微畸变时, $\vec{r}$ 处的极化率 $\chi'(\vec{r})$ 仍取 $\vec{r}_0$ 处的值, 即 $\chi'(\vec{r}) = \chi(\vec{r}_0) = \chi(\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}))$ 。将极化矢量 $4\pi \vec{P}(\vec{r}) = \chi'(\vec{r}) \cdot \vec{D}(\vec{r})$ 按(3-11)的形式展开:

$$\begin{aligned} 4\pi \vec{P}(\vec{r}) &= 4\pi \sum_{\vec{g}} \vec{P}'_{\vec{g}}(\vec{r}) \exp(-i2\pi (\vec{k}_g \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u})) \\ &= \sum_{\vec{g}} \chi_g \exp[-i2\pi (\vec{g} \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u})] \cdot \sum_{\vec{h}} \vec{D}'_{\vec{h}} \exp[-i2\pi (\vec{k}_h \cdot \vec{r} - \vec{h} \cdot \vec{u})] \\ &= \sum_{\vec{g}} \sum_{\vec{h}} \chi_g \vec{D}'_{\vec{h}} \exp[-i2\pi [(\vec{k}_h + \vec{g}) \cdot \vec{r} - (\vec{g} + \vec{h}) \cdot \vec{u}]] \\ &= \sum_{\vec{g}} \sum_{\vec{h}} \chi_{\vec{g}-\vec{h}} \vec{D}'_{\vec{h}} \exp[-i2\pi (\vec{k}_g \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u})] \end{aligned}$$

$$\text{所以有 } 4\pi \vec{P}'_{\vec{g}}(\vec{r}) = \sum_{\vec{h}} \chi_{\vec{g}-\vec{h}} \cdot \vec{D}'_{\vec{h}}(\vec{r}) \quad (3-13)$$

将(3-13)式, 等相面函数 $S_{\vec{g}}(\vec{r})$ 代入(3-12)式, 略去高阶小量, 即得:

$$\begin{aligned} \sum_{\vec{g}} \{ -i4\pi (\vec{k}'_g \cdot \nabla) \vec{D}'_{\vec{g}} + 4\pi^2 (|\vec{k}|^2 - |\vec{k}'_g|^2) \vec{D}'_{\vec{g}} \\ + 4\pi |\vec{k}'_g|^2 \sum_{\vec{h}} \chi_{\vec{g}-\vec{h}} [\vec{D}'_{\vec{h}}]_{\vec{g}} \} \cdot e^{-i2\pi (\vec{k}'_g \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u})} = 0 \end{aligned} \quad (3-14)$$

$$\text{其中 } [\vec{D}'_{\vec{h}}]_{\vec{g}} = -\frac{1}{|\vec{k}'_g|} [\vec{k}'_g \times (\vec{k}'_g \times \vec{D}'_{\vec{h}})] \quad (3-15)$$

(3-14)式乘以 $e^{i2\pi (\vec{k}'_g \cdot \vec{r} - \vec{g} \cdot \vec{u})}$ 并在原胞内积分:

$$\text{得 } (\vec{S}_g \cdot \nabla) \vec{D}'_{\vec{g}} - i\pi \frac{|\vec{k}'_g|^2 - |\vec{k}|^2}{|\vec{k}'_g|} \vec{D}'_{\vec{g}} + i\pi |\vec{k}'_g| \sum_{\vec{h}} \chi_{\vec{g}-\vec{h}} [\vec{D}'_{\vec{h}}]_{\vec{g}} = 0 \quad (3-16)$$

其中 $\vec{s}_g$ 是 $\vec{k}_g$ 的方向矢量, 即 $\vec{s}_g = \vec{k}_g / |\vec{k}_g|$; 定义

$$\beta_g' = (|\vec{k}_g|^2 - k^2) / 2|\vec{k}| \quad (3-17a)$$

$K = |\vec{k}|$ 为真空中波数, k 为晶体中平均波数。

$$k = K(1 + \chi_0)^{1/2} = \pi K \quad (3-17b)$$

由于 $|\vec{k}_g| \simeq K$; (3-17a) 式近似为

$$\beta_g' = (|\vec{k}_g| - k) / K \quad (3-17c)$$

这样 (3-16) 式可以写成

$$(\vec{s}_g \cdot \nabla) \vec{D}_g' = i2\pi K \beta_g' \vec{D}_g' - i\pi K \sum_{h \neq g} \chi_{g-h} [\vec{D}_h']_g \quad (3-18)$$

此即畸变晶体 X 射线衍射的普遍形式。

引入偏振因子 ϵ , $\epsilon = \begin{cases} 1 & \sigma \text{ 偏振} \\ |\cos 2\theta_g| & \pi \text{ 偏振} \end{cases}$

在双光束情形下, (即 (3-18) 中只有 $h=0$, 它具有较大贡献; 又 $[\vec{D}_h']_g$ 垂直 $\vec{k}_g$, 也垂直 $\vec{k}$, $\vec{D}_g'$ 也垂直 $\vec{k}$, 且二者数值相等, 故有 $[\vec{D}_h']_g = \vec{D}_g'$; 再利用关系 $\vec{s}_g \cdot \nabla = \partial / \partial s_g$, 可以把 (3-18) 写成标量形式, 即

$$\begin{cases} \partial D_0' / \partial s_0 = -i\pi \epsilon K \chi_0 D_0' & (3-19a) \\ \partial D_g' / \partial s_g = -i\pi \epsilon K \chi_g D_0' + i2\pi K \beta_g' D_g' & (3-19b) \end{cases}$$

这就是著名的高木方程组。

$\vec{s}_0$ 和 $\vec{s}_g$ 分别代表入射束和出射束的方向矢量。选择不同的波矢^[25, 48]可以得到另一种与之等价的 Tamm 形式

$$\begin{cases} i\lambda/\pi \partial D_0 / \partial s_0 = \chi_0 D_0 + \epsilon \chi_g D_g & (3-20a) \\ i\lambda/\pi \partial D_g / \partial s_g = \epsilon \chi_g D_0 + (\chi_0 - \alpha_g) D_g & (3-20b) \end{cases}$$

其中 $\alpha_g = 2\beta_g'$ 。

§3.2 多层膜X射线双晶衍射摇摆曲线的计算

多层膜是在近完美晶体上生长一层结构的外延层，如图3.1所示。由于X射线的照射面比晶片小得多，而X射线的穿透深度往往小于衬底厚度，所以对X射线衍射，晶片可以看成水平方向无限大垂直方向半无限厚的晶体。X射线在晶体中的场变量只是z坐标的函数。方程(3-20)可以化成一维形式：

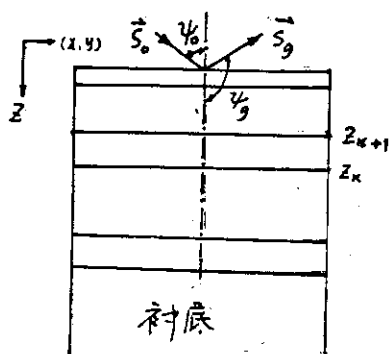


图3.1 多层膜结构示意图

$$\begin{cases} \frac{i\pi}{\lambda} \gamma_0 \frac{dD_0}{dz} = \chi_0 D_0 + c \chi_g D_g & (3-21a) \\ -\frac{i\pi}{\lambda} |\gamma_g| \frac{dD_g}{dz} = c \chi_g D_0 + (\chi_0 - \gamma_0) D_g & (3-21b) \end{cases}$$

定义反射振幅

$$Q = \sqrt{|\gamma_g|/\gamma_0} D_g / D_0 \quad (3-22)$$

代入(3-20)得到：

$$\frac{dQ}{dz} = \frac{i\pi}{\lambda} \sqrt{|\gamma_g|/\gamma_0} \left\{ c \chi_g / |\gamma_g| \cdot |\gamma_0|/\gamma_0 Q^2 + (\chi_0/\gamma_0 - \chi_0/|\gamma_g| - \gamma_0/\gamma_0) \sqrt{\gamma_0/|\gamma_g|} Q + c \chi_0 / |\gamma_g| \right\} \quad (3-23)$$

引入参量 A, B, D, E, 使

$$\begin{aligned} A &= c \chi_g / |\gamma_g|; & B &= \frac{1}{2} (\chi_0/\gamma_0 + \chi_0/|\gamma_g| - \gamma_0/\gamma_0) \sqrt{\gamma_0/|\gamma_g|}; \\ D &= \pi/\lambda \sqrt{|\gamma_g|/\gamma_0}; & E &= c \chi_0 / |\gamma_g|; \\ \alpha &= -2\theta \sin 2\theta_0. \end{aligned}$$

则(3-23)改写为

$$dQ/dz = iD (A Q^2 + 2B Q + E) \quad (3-24)$$

上式在每层内积分，由于反射振幅在界面处是连续的，得

$$Q_{k+1} = \frac{S Q_k + i(E + B Q_k) \operatorname{tg}(-D S t_k)}{S - i(B + A Q_k) \operatorname{tg}(-D S t_k)} \quad (3-25)$$

其中 $S = \sqrt{B^2 - AE}$; $t_k = z_k - z_{k+1}$ 是第 k 层厚度。

(3-25)式即多层膜反射振幅的迭代解。考虑到晶体的吸收效应, A 、 B 、 E 和 S 皆为复量。迭代初值 Q_0 是衬底的反射振幅, 它是假设衬底为半无限完美晶体, 由(3-25)得到的。

对于复数 $a+bi$, 当 $b \rightarrow \infty$ 时,

$$\lim_{b \rightarrow \infty} \arg(a+bi) = \lim_{b \rightarrow \infty} \frac{\frac{-2b}{e^{2b}} - \frac{-i2a}{e^{-i2a}}}{\frac{e^{2b}}{e^{2b}} + \frac{e^{-i2a}}{e^{-i2a}}} \cdot \frac{1}{i} = \begin{cases} i & b \rightarrow +\infty; \\ -i & b \rightarrow -\infty. \end{cases}$$

$$= -i \operatorname{Sign}(b) \quad (\operatorname{sign} \text{表示正或负数符号})$$

因此在(3-25)中, 当 $t \rightarrow \infty$ 时, 并利用 $D > 0$; $t > 0$ 得

$$\begin{aligned} Q_0 &= (iE \cdot (-i) \operatorname{sign}(\operatorname{Im} S)) / (S - iB(-i) \operatorname{sign}(\operatorname{Im} S)) \\ &= E \cdot \operatorname{sign}(\operatorname{Im} S) (S + B \operatorname{sign}(\operatorname{Im} S)) / (S^2 - B^2) \\ &= [B + S \cdot \operatorname{sign}(\operatorname{Im} S)] / A \end{aligned} \quad (3-26)$$

由衬底反射率 Q_0 开始逐次向 λ 迭代可得到晶体表面的反射振幅 Q_{surf} ; 由此得到晶体的反射率 $R_{\text{surf}} = |Q_{\text{surf}}|^2$; 改变 α 射线对 Bragg 角的偏离 $\Delta\theta$, 便得到晶体的反射曲线, 再利用(2-8)式将第二晶体的反射曲线与第一晶体的反射曲线卷积, 就得到第二晶体的双晶摇摆曲线。

§ 3.3 参数的求解

方程(3-25)和(3-26)中的参数 A 、 B 、 D 、 E 和 α_0 与结构因子和点阵常数有关, 也与几何条件有关, 要解出方程必须先求解这些参数。

(1) 外延层的点阵常数

自由状态下外延层的点阵常数即体材料的点阵常数。一元或二元单晶的点阵常数可以查表得到^[52]。多元替代化合物的点阵常数可由 Vegard 定律求得，即对化合物 $A_x B_{1-x} C$ 或 $A_x B_{1-x} C_y D_{1-y}$ ，

$$a_{A_x B_{1-x} C} = x a_{AC} + (1-x) a_{BC} ; \quad (3-27a)$$

$$a_{A_x B_{1-x} C_y D_{1-y}} = xy a_{AC} + x(1-y) a_{AD} + (1-x)y a_{BC} + (1-x)(1-y) a_{BD} \quad (3-27b)$$

多元化合物的弹性常数 C_{11} 和 C_{12} 也可由 Vegard 定律给出。

对于点阵畸变的外延层，如果外延层与衬底是相干的，则水平方向点阵常数取衬底的值，即 $a'' = a_s$ 。这时水平方向的应力是均匀的，只有轴向应力而没有剪切应力，外延层发生均匀的四方畸变。四方畸变的外延层内，其应变张量为

$$\vec{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (3-28)$$

$$\text{其中 } \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{11} = (a'' - a_0) / a_0 \quad (3-29a)$$

$$\epsilon_{zz} = \epsilon_{33} = (a' - a_0) / a_0 \quad (3-29b)$$

a_s , a_0 分别为衬底和外延层体材料的点阵常数而 a'' 和 a' 分别是畸变后水平方向和垂直方向的点阵常数。在立方晶系中，晶体的应变能可写成^[53]：

$$U = \frac{1}{2} C_{11} (\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + \frac{1}{4} C_{44} (\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{zx}^2) + C_{12} (\epsilon_{xx} \epsilon_{yy} + \epsilon_{yy} \epsilon_{zz} + \epsilon_{zz} \epsilon_{xx}) \quad (3-30)$$

在四方畸变下， $C_{44} = 0$ ，上式可改写成：

$$U = C_{11} (\varepsilon_{11}^2 + \frac{1}{2} \varepsilon_{22}^2) + C_{12} (\varepsilon_{11}^2 + 2 \varepsilon_{11} \varepsilon_{22}) \quad (3-31)$$

应变能极小的条件为 $dU/d\varepsilon_{22} = 0$, 即

$$C_{11} \cdot \varepsilon_{22} + C_{12} \cdot 2 \varepsilon_{11} = 0$$

$$\text{由此得} \quad \varepsilon_{22} = -2C_{12}/C_{11} \cdot \varepsilon_{11} \quad (3-32)$$

是此外延层与衬底的点阵失配为

$$M = (a_0 - a_s)/a_s \quad (3-33)$$

$$\text{则} \quad a^{\perp} = a_0 + a_0 \varepsilon_{22} = a_0 (1 - 2C_{12}/C_{11} \cdot \varepsilon_{11})$$

$$= a_s \cdot (1+M) (1 - 2C_{12}/C_{11} \cdot (-M))$$

$$= a_s [1 + M(1 + 2C_{12}/C_{11})] \quad (3-34)$$

(2) 结构因子

X射线在晶体中衍射时, 衍化率 χ_i 与结构因子 F_i 有如下关系:

$$\begin{aligned} \chi_i &= -e^2 \lambda^2 / 4\pi^2 m v \cdot F_i \quad (i=0, g, \bar{g}) \\ &= -r_e \lambda^2 / \pi V \cdot F_i \end{aligned} \quad (3-35)$$

其中 V 为原胞体积; r_e 为电子经典半径。

单胞原子的结构因子与原子散射因子 f_j 的关系为:

$$F_{hke} = \sum_{j=1}^n f_j \exp(i2\pi(hx_j + ky_j + lz_j)) \quad (3-36)$$

其中 n 为单胞内原子个数; $(h k e)$ 为衍射指数;

x_j, y_j, z_j 为单胞内第 j 个原子的坐标。 f_j 是 $\sin\theta/\lambda$ 的函数, 在数学上引入分析近似来模拟 $f \sim \sin\theta/\lambda$ 的曲线^[49]

$$f(\sin\theta/\lambda) = \sum_{i=1}^4 a_i \exp(-b_i \sin^2\theta/\lambda^2) + c \quad (3-37)$$

式中 a_i, b_i ($i=1, 4$) 和 c 为拟合参数。

如果电子处于束缚态，对X射线吸收效应较大，散射因子要引入色散修正 $\Delta f'$, $\Delta f''$ ：

$$f = f_0 + \Delta f' + i\Delta f'' \quad (3-38)$$

其中 $\Delta f''$ 为吸收项， $\Delta f'$, $\Delta f''$ 皆为 $\sin\theta/\lambda$ 的函数，但它们来自内层电子的影响，对角度的依赖关系较小。对于一定波长的X射线， $\Delta f'$, $\Delta f''$ 可视为常数。这样结构因子可由(3-36)得到。

对于多元化合物的结构因子，仍由 Vegard 定律求得，即

$$F_{A_x B_{1-x} C} = x F_{Ac} + (1-x) F_{Bc} \quad (3-39)$$

(3) 几何参数.

外延层由于发生四方畸变，各晶面的 Bragg 角，晶面与表面的夹角都会变化。衍射面 (hke) 的 Bragg 角为：

$$\theta_B^{(ke)} = \sin^{-1} \lambda / 2d_{hke}^{(ke)} \quad (3-40)$$

(hke) 面与表面 (HKL) 的夹角为

$$\varphi^{(ke)} = \cos^{-1} \left\{ \frac{CHk + Kke / a_s^2 + L^2 / a_i^2}{[(h^2 + k^2) / a_s^2 + l^2 / a_i^2][(H^2 + K^2) / a_s^2 + L^2 / a_i^2]} \right\}^{-1/2} \quad (3-41)$$

$$\text{其中 } d_{hke}^{(ke)} = \left(\frac{h^2 + k^2}{a_s^2} + \frac{l^2}{a_i^2} \right)^{-1/2} \quad (3-42)$$

表示第 l 层外延层。

在公式 $\alpha_g = -2\theta_0 \sin 2\theta_0$ 中， θ_0 是X射线对衬底 Bragg 角的偏差。

$$\Delta\theta = \Delta\theta_0 + (\theta_{Bs} - \theta_B^{(ke)}) \pm (\varphi_s - \varphi^{(ke)})$$

其中 θ_0 是X射线和衬底衍射面的夹角与严格

Bragg 角的偏差。“+”或“-”号分别代表 α 射线的掠入射和掠出射。 $\Delta\theta$ 对应实验曲线角坐标。

ν_0 和 ν_g 分别是 α 射线入射束和出射束的方向余弦，即

$$\nu_0 = \sin(\theta_{0,s} \pm \varphi_s)$$

$$\nu_g = \sin(\theta_{0,s} \mp \varphi_s)$$

$\theta_{0,s}$, φ_s 和“ $\pm$ ”号的意义与前面相同。

第四章 GeSi/Si 超晶格的结构分析

超晶格是在适当衬底上交替生长两种不同晶型的材料所形成的多层膜，每一个重复单元称为超晶格的一个周期。生长过程周期地改变成分或杂质分别得成分超晶格或掺杂超晶格。超晶格具有许多优良的性质，例如超晶格器件的某些物理特性可以通过改变组元的成分和厚度而独立地改变^[5]。近十年来， GeSi/Si 应变超晶格受到广泛重视^[50-52]。由于 Ge 和 Si 的点阵常数相差很大 (4.18%)， GeSi/Si 之间失配较大而使超晶格存在较大应变。如果 GeSi 层厚超过了临界厚度就会使超晶格出现失配位错^[53]，从而降低超晶格器件的质量和性能。同时，超晶格结构受组元成分和层厚的影响较大。

本章我们研究 GeSi/Si 超晶格的双晶摇摆曲线，得到了其结构参数并分析影响其结构性能的一些因素。

§4.1 实验

实验所用的 GeSi/Si 超晶格样品是用 MBE 方法在 $\text{Si}(100)$ 衬底上生长的。样品结构的生长参数列于表 4.1。测量了样品 $\text{Si } 004$ 、 113 和 224 衍射的双晶摇摆曲线。实验第一晶体为 $\text{Si}(111)$ 的 111 衍射。光源为 $\text{CuK}\alpha 1$ 辐射。为了解超晶格

的界面性质，X射线掠射(GID)测量样品不同掠射角时Si 220的衍射曲线^[5]。实验第一晶体为Si(110)晶体的220衍射，光源是CuK α 辐射。

表4.1 Ge_xSi_{1-x}/Si超晶格样的生长参数

sample	N	X	t ₁ (Å)	t ₂ (Å)
1	15	0.20	50	250
2	20	0.40	40	200

§4.2 实验结果及分析

图4.1.1(a), 4.1.2(a)和4.1.3(a)分别是样品1不同衍射面004, 113和224衍射的双晶摇摆曲线实验图。从图中可以看出，除了衬底峰外，曲线中还出现一组呈周期分布的超晶格衍峰，间距分别约为800", 1280"和1290"；衍射峰的数目较多，表明其质量较好。超晶格卫星峰的周期是其周期结构的反映。零级峰由超晶格中的平均应变决定，它与超晶格组元的成分和厚度有关。GID实验结果(见表4.2)表明样品1超晶格界面基本匹配。

图4.1.1(b)是样品1的Si 004衍射模拟曲线，模拟参数是Ge_{0.36}Si_{0.64}层40Å，Si层200Å，20周期。可以看出，除箭头标注的小峰外，图4.1.1(b)和(a)在峰位和峰高包络线上吻合较好，但一个明显的区别是实验曲线-3级以后的高次峰分裂。这

表明样品 1 中超晶格的组分或周期存在不均匀性。图 4.1.1(c) 是另一条 004 衍射的模拟曲线，模拟参数列于表 4.3。图 4.1.1(c) 和 (a) 在峰的位置、相对高度和峰形上都吻合较好。二者都显示出高次卫星峰的分裂。用表 4.3 中的参数对 113 和 224 衍射进行模拟计算的结果(如图 4.1.2(b), 4.1.3(b)) 表明理论曲线与实验曲线吻合得较好。模拟参数与 GID 和 TEM 结果^[54] 也相符合。我们认为表 4.3 中的模拟参数给出样品 1 中真实结构参数。

图 4.2.1(a), 4.2.2(a) 和 4.2.3(a) 分别是样品 2 的 5i 004, 113 和 224 衍射的实验摇摆曲线。图 4.2 只显示了 0, ± 1 (或 -2) 级卫星峰，且其强度相对于 0 级峰强度较低，表明样品 2 的质量比样品 1 差。表 4.2 表明，样品 2 超晶格界面的点阵常数有 0.01 Å 的差异，即存在部分界面松弛。界面松弛是影响超晶格完美性的重要因素，它使界面不完全相干，降低其光电性能。並造成了 X 射双晶摇摆曲线高次卫星峰的湮没，衍射峰数目减少。

图 4.2.1(b), 4.2.2(b) 和 4.2.3(b) 分别是样品 2 的 004, 113, 224 衍射的模拟曲线，模拟参数列于表 4.4。从图 4.2 可以看出，理论曲线和实验曲线吻合较好。这里当界面有部分松弛时，我们采用一种简单的方法^[35] 计算 GeSi 层的点阵常数，

表4.2. GID实验结果

sample	$\Delta\alpha'' (\text{\AA})$	$\Delta\alpha''/\alpha_s (\%)$
1	0.0008	0.015
2	0.0100	0.180

表4.3 样品1的模拟参数

N	x	$t_1 (\text{\AA})$	$t_2 (\text{\AA})$	$\nu (\%)$
8	0.35	40	193	0
12	0.36	40	200	

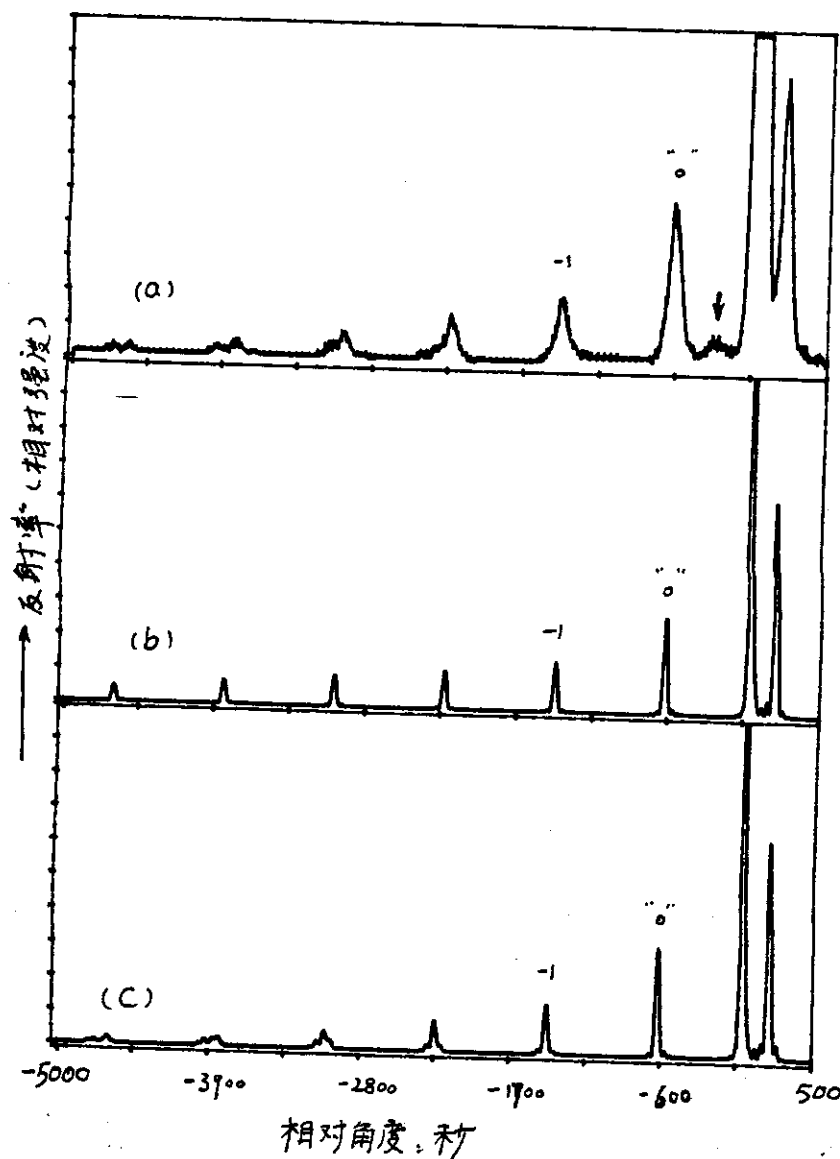


图4.1.1

样品1的摇摆曲线

004 衍射

(a): 实验曲线

(b) 和 (c): 模拟曲线

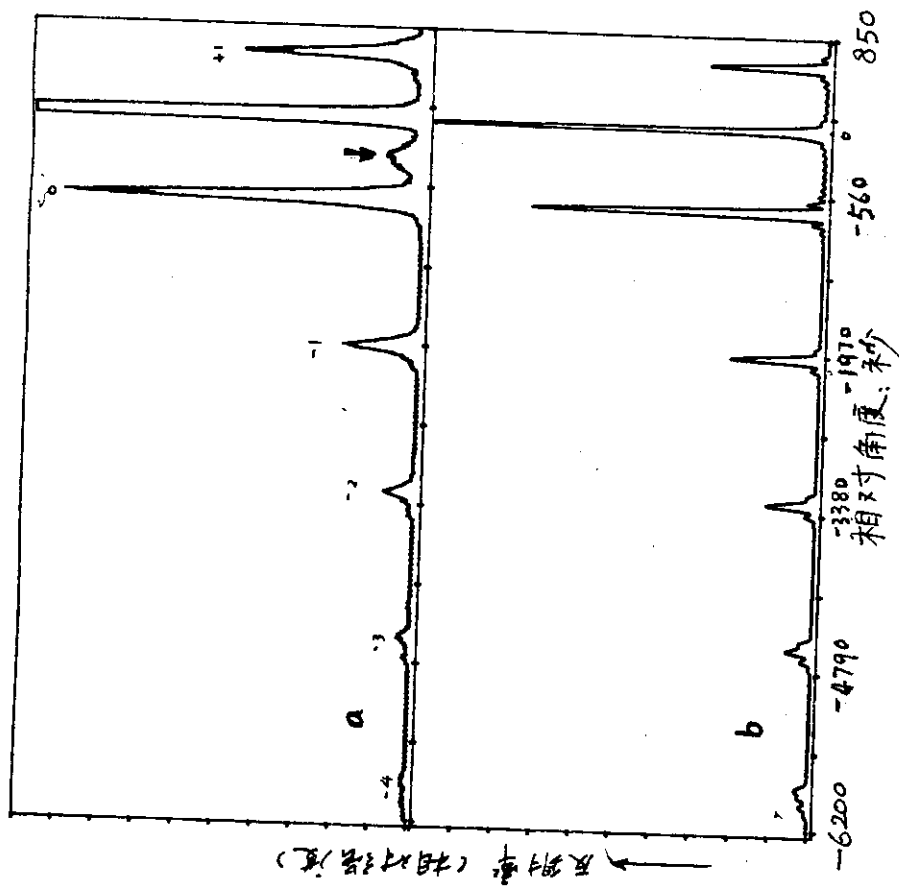


图4.1.2 样品1, 113衍射摇摆曲线
(a) 实验曲线 (b) 模拟曲线

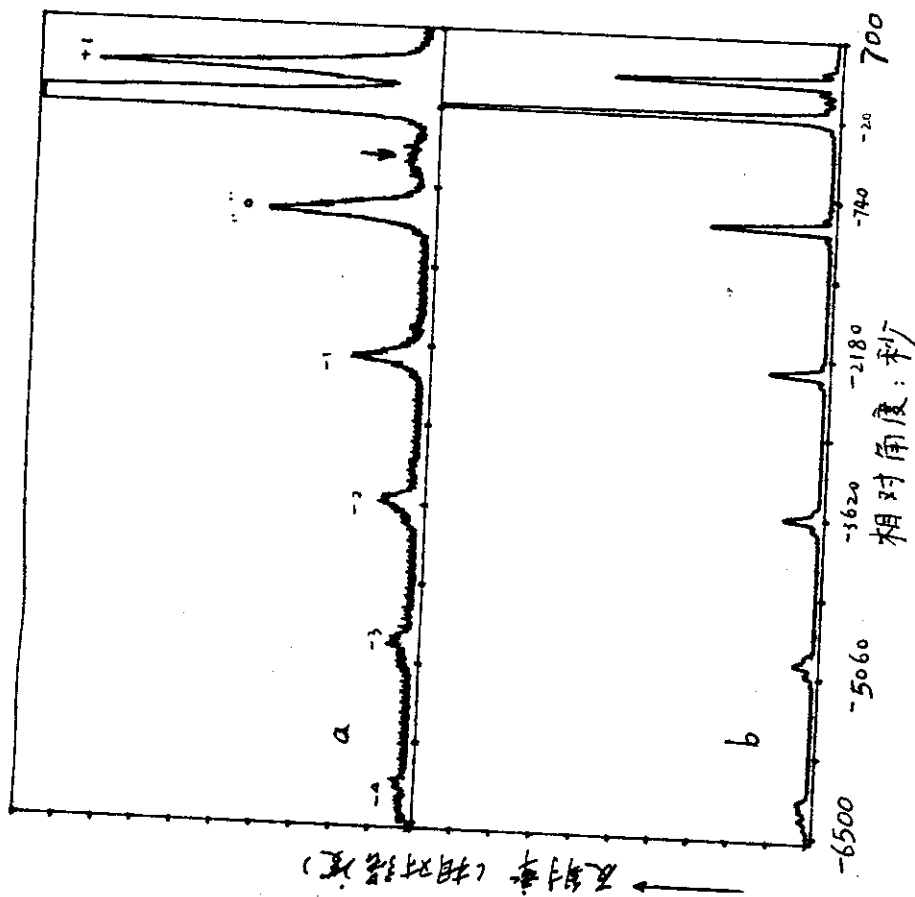


图4.1.3 样品1, 224衍射摇摆曲线
(a) 实验曲线 (b) 模拟曲线

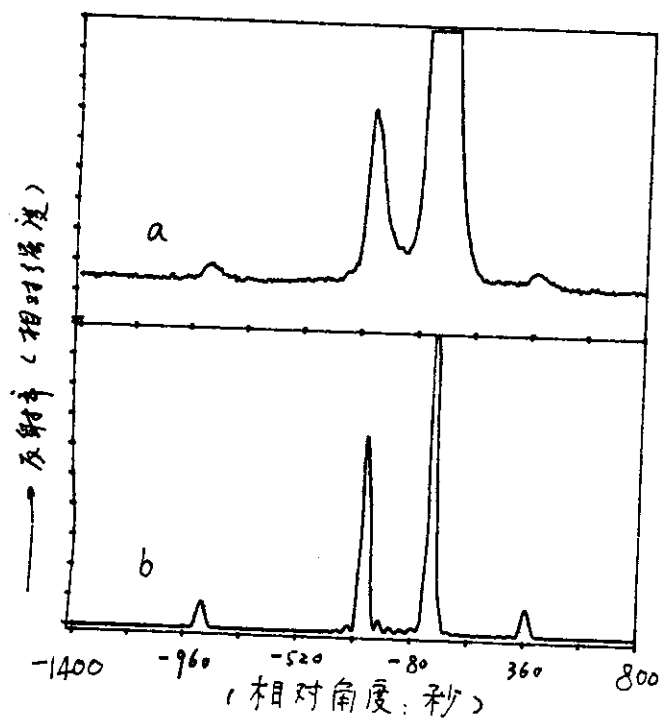


图4.2.1 004衍射

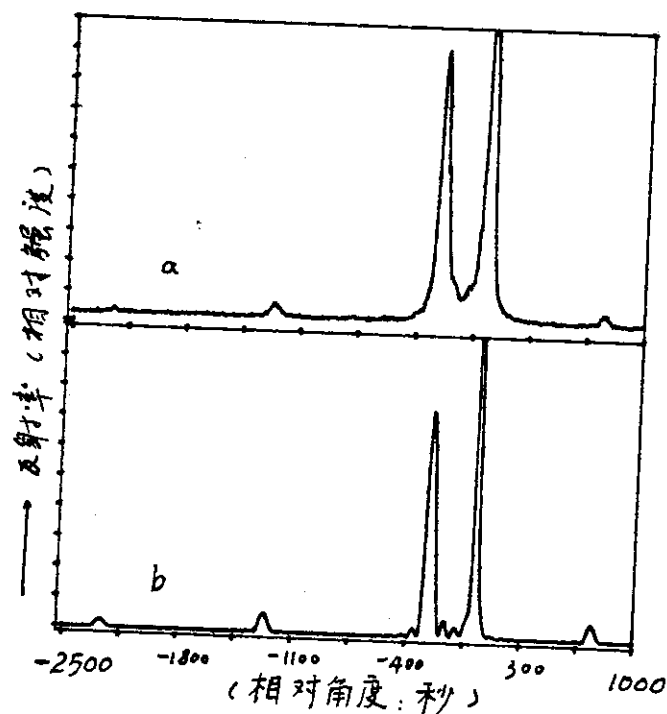


图4.2.2 113衍射

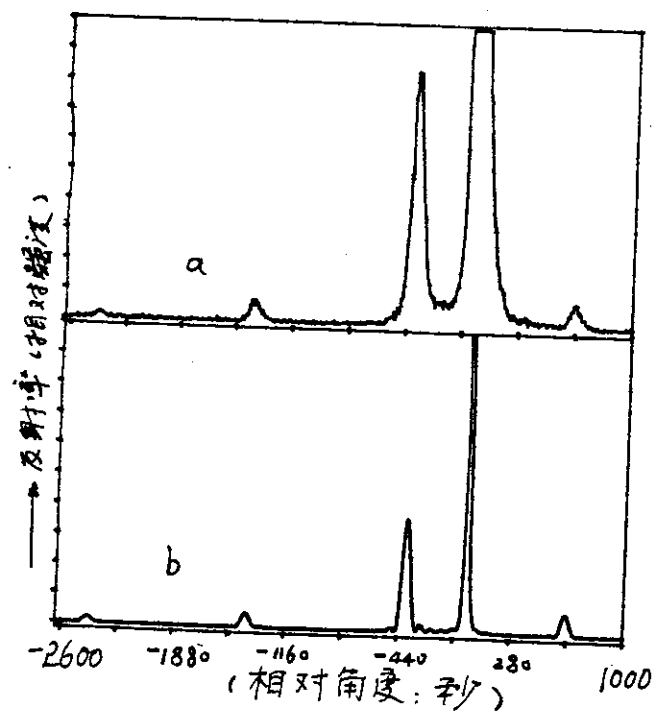


图4.2.3 224衍射

图4.2. 样品2的摇摆曲线

(a) 实验曲线

(b) 模拟曲线

表 4.4 样品 2 的模拟参数

N	x	t_1 (Å)	t_2 (Å)	λ (%)		
				004	113	224
15	0.165	52	254	28	28	30

表 4.5 图 4.3 中模拟曲线的模拟参数

curve	N	x	t_1 (Å)	t_2 (Å)
a	20	0.36	40	200
b	8	0.35	40	200
	12	0.36	40	200
c	8	0.37	40	200
	12	0.36	40	200

表 4.6 图 4.4 中模拟曲线的模拟参数

curve	N	x	t_1 (Å)	t_2 (Å)
a	8	0.36	38	202
	12	0.36	40	200
b	8	0.36	39	195
	12	0.36	40	200
c	8	0.36	40	193
	12	0.36	40	200
d	8	0.35	40	193
	12	0.36	40	200

即水平方向取松弛时,值 $a'' = a_s(H-\nu) + a_0 \cdot \nu$; 垂直方向 $a^+ = a_0^+ \cdot (1-\nu) + a_0 \cdot \nu$; 其中 ν 是松弛比, a_0 , a_0^+ 分别是外延层体材料点阵常数和发生完全四方畸变时垂直点阵常数。 a_s 为衬底点阵常数。

注意到实验曲线的卫星峰的半峰宽比理论曲线中大, 且卫星峰相对 0 级峰的峰高也比理论曲线中小, 这是由于计算中忽略了样品存在的缺陷和结构的不完美性。

从以上的结果, 我们得到: 样品 1 为成分和层厚跃变的超晶格结构; 样品 2 的界面存在部分松弛。超晶格中成分和厚度的变化值 ϵ 很小, 只有百分之几, 用一般方法不易探测到, 但它足以在 X 射线双晶衍射摇摆曲线中反映出来。超晶格的成分和层厚的起伏引起卫星峰的展宽等变化^[22, 36], 这种变化对各级峰是相似的, 卫星峰只展宽而不分裂, 与我们的结果是不同的。下面我们分析组分和层厚跃变对摇摆曲线的影响。

假定超晶格中, 周期和层厚不变, 组分有一定变化。图 4.3 给出不同组分变化的 Si 004 衍射的模拟摇摆曲线, 其模拟参数列于表 4.5。从图 4.3 可以看出, χ 有变化时卫星峰 3 分裂但发生漂移。相对于 χ 和 t_{Si} 不变时的摇摆曲线 4.3(a), 当 χ 变小时(图 4.3(b))卫星峰向高角方向漂移且高角一边出现稍

强的衍射条纹(↑所示)；当 α 变大(图4.3(c))时，卫星峰向低角方向漂移且低角一边出现稍强的衍射条纹(↑)。这一变化对各级峰相似，峰间距和半峰宽(37°左右)都没有变化，这表明超晶格的成分改变只影响平均应变，使卫星峰漂移。 α 变化不大时，卫星峰不发生分裂。

假定 t_1/t_2 有变化，图4.4给出一些 t_1/t_2 变化的超晶格的摇摆曲线，其模拟参数列于表4.6，衍射为 $\text{Si } 004$ 。从图4.4可以看出，当超晶格前8周期的层厚 t_1/t_2 变到(a) $38\text{\AA}/202\text{\AA}$ 时，超晶格零级峰相对于 0 。(即图4.3(a)中零级峰的峰位)向高角方向漂移；同时高角一边出现较强的衍射(↑)，各峰的间距不变；这与前面 α 变小时卫星峰的变化类似。 t_1/t_2 变至(b) $39\text{\AA}/195\text{\AA}$ 时，零级峰不变，-1级以后的卫星峰漂向低角，高次峰趋于分裂。 t_1/t_2 变至(c) $40\text{\AA}/193\text{\AA}$ 时，卫星峰漂向低角方向且高次峰分裂，分裂程度比(b)中大。(d)中当 α 与 t_1/t_2 协调变化时，-2以后卫星峰畸变和分裂，而前几级峰几乎不变。这表明层厚 t_1/t_2 的变化不仅可改变超晶格的平均应变，使卫星峰发生漂移，而且可改变超晶格周期，使卫星峰发生畸变以至分裂。当 t_1/t_2 变小时，卫星峰向高角漂移； t_1/t_2 变大时峰向低角漂移；超晶格的周期变化越大，峰的级次越高，分裂越严重。当周期不变时(图4.4(a))，峰不分裂。图4.5是图4.4“-1”级峰

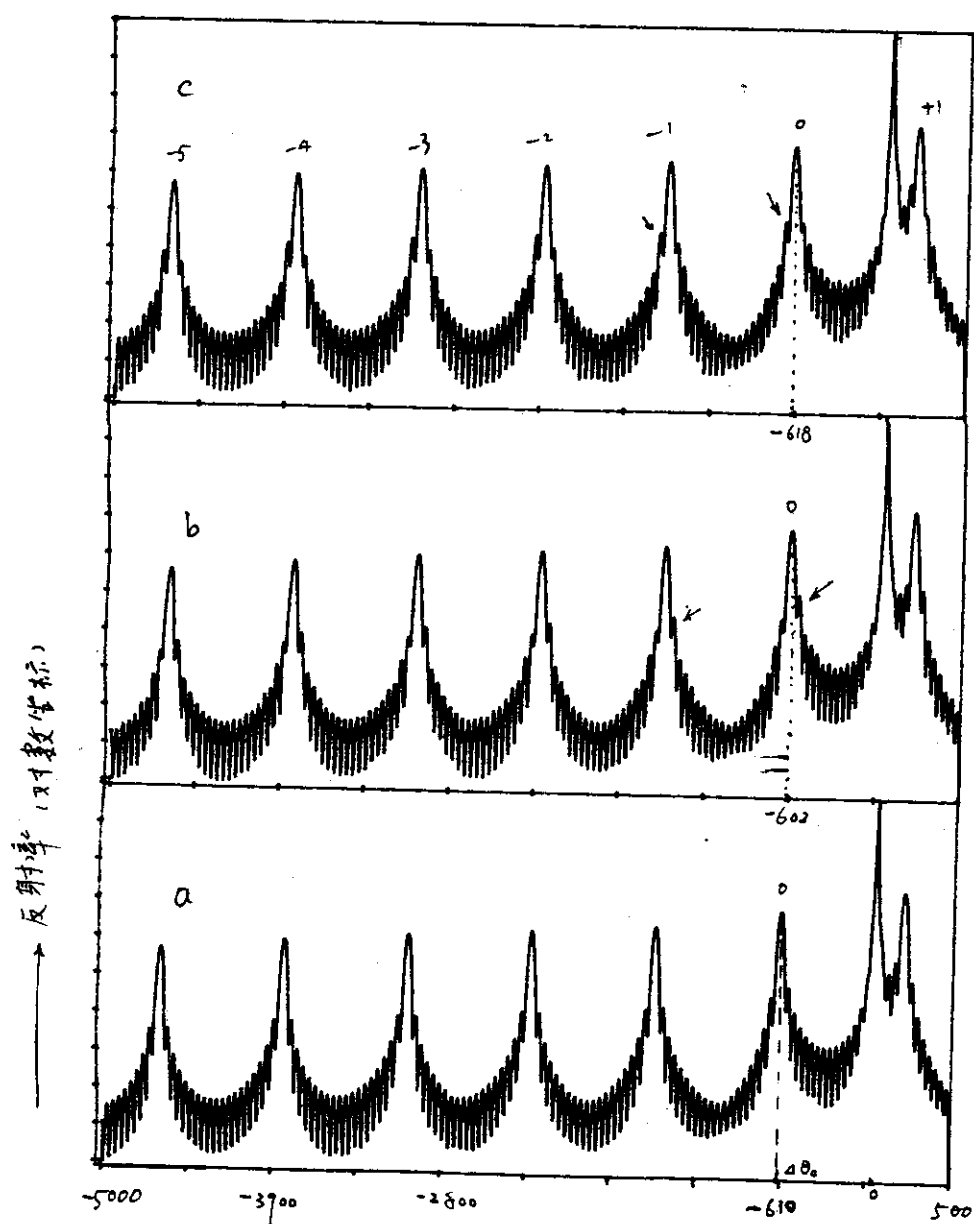


图4.3 用表4.5中参数模拟的摆摆曲线, Si
004衍射

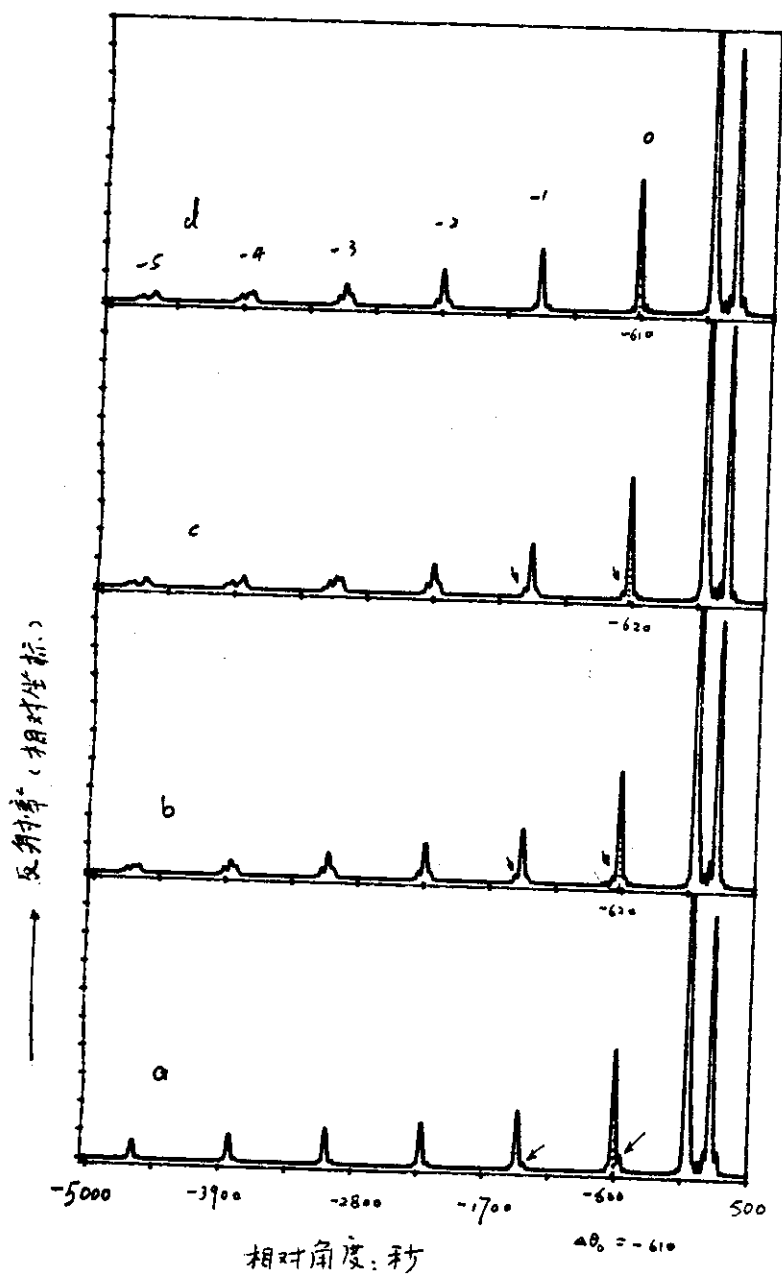


图 4.4 表 4.6 中参数模拟的摇摆曲线, 5° 004 衍射

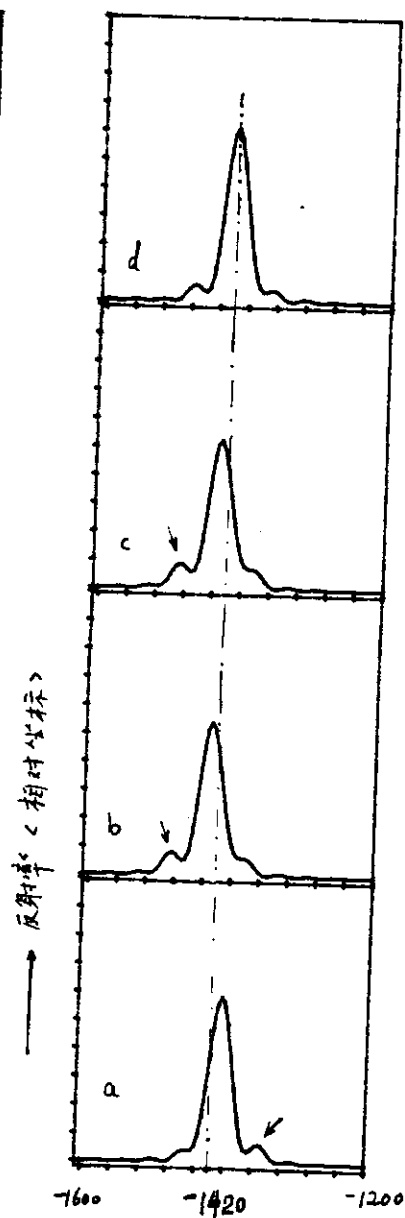


图 4.5 图 4.4 “-1”级
峰的放大图 (x30)

的放大图。从中能更清楚地看到卫星峰的变化情况。在图 4.5 中, (a) 峰漂向高角, 且高角有一稍强的衍射小峰; (b), (c) 变化相似, 峰向低角移动且强衍射条纹也在低角方向; (d) 的峰基本没有漂移, 峰两边的衍射峰对称性较好。图中的比例尺是相同的, 但 (a), (b), (c) 的峰比 (d) 的峰略低。这说明 t_1/t_2 的变化也使峰的相对高度变化。

上述结果可以从运动学理论来理解。对于某超晶格, 组元的原子层数分别为 n_1 和 n_2 ; 点阵常数为 a_1 和 a_2 ; 厚度为 t_1 和 t_2 ; 则 $n_1 = t_1/a_1$; $n_2 = t_2/a_2$ 。假设在叠后超晶格中二组元水平^{方向}和垂直方向的点阵常数各为 a_1' , $a_1^\perp$ 和 a_2' , $a_2^\perp$; 那么超晶格水平^{方向}和垂直方向的平均失配分别为:

$$\langle m'' \rangle = (m_1' \cdot n_1 + m_2' \cdot n_2) / n = \frac{1}{n} \left(\frac{a_1' - a_s}{a_s} \cdot n_1 + \frac{a_2' - a_s}{a_s} \cdot n_2 \right); \quad (4.1a)$$

$$\langle m^\perp \rangle = (m_1^\perp \cdot n_1 + m_2^\perp \cdot n_2) / n = \frac{1}{n} \left(\frac{a_1^\perp - a_s}{a_s} \cdot n_1 + \frac{a_2^\perp - a_s}{a_s} \cdot n_2 \right) \quad (4.1b)$$

超晶格的零级峰与衬底的角距离和卫星峰的峰角距分别由式给出^[22]:

$$\Delta\theta_0 = -[k_1 \langle m^\perp \rangle + k_2 \langle m'' \rangle] \quad (4.2)$$

$$\Delta\omega_p = \lambda |Y_g| / t_p \cdot \sin 2\theta_0 \quad (4.3)$$

其中 $k_1 = \cos^2 \varphi \tan \theta_0 \pm \sin 2\varphi / 2$;
 $k_2 = \sin^2 \varphi \tan \theta_0 \mp \sin 2\varphi / 2$;
 $Y_g = \sin(\theta_0 + \varphi)$;

$t_p = t_1 + t_2$ 为超晶格周期; $n = n_1 + n_2$; θ_0 及 φ 与前几章意义相同。

对 $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x/\text{Si}$ 超晶格, Si 层是不变的, 即有 $a_2'' = a_2^+ = a_s$ 。如果其界面没有松弛, 则 $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ 层发生四方畸变, 其点阵常数为

$$a_1'' = a_s$$

$$a_1^+ = a_s (1 + (1 + 2c_2/c_{11}) \cdot M_x)$$

其中 M_x 是 $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}$ 间的失配, $M_x = (a_x - a_s)/a_s$ 。

(4.1)式可变成

$$\begin{cases} \langle m'' \rangle = 0 \\ \langle m^+ \rangle = m_s^+ \cdot \frac{n_1}{n} = \langle m_s^+ \rangle = (1 + 2c_2/c_{11}) M_x \end{cases} \quad (4.4a) \quad (4.4b)$$

这里 $M_x = (a_x - a_s)/a_s = (a_{\text{Ge}} - a_{\text{Si}})/a_{\text{Si}} \cdot x / (1 + t_1/t_2 \cdot a_s/a_{\text{Si}})$

从而 $\Delta\theta_0$ 和 $\Delta\omega_p$ 分别为

$$\Delta\theta_0 = -k_1 (1 + 2c_2/c_{11}) M_x$$

$$\Delta\omega_p = \lambda |V_g| / (t_1 + t_2) \sin 2\theta_0$$

当 t_1 和 t_2 不变时, $\Delta\omega_p$ 不变; 但 M_x 变化, 从而 $\Delta\theta_0$ 变化。两组超晶格峰的平均结果是使卫星峰漂移。当 x 变大时, $\Delta\theta_0$ 变小即向低角漂移; 当 x 变小时峰向高角漂移。如果两组超晶格的差别很大, 以至其间距超过峰的半峰宽, 则可以引起峰的分裂。但对 x 变化较小时, 如我们的计算结果, 不会有分裂产生。由于 $\Delta\omega_p$ 不变, 所有卫星峰发生同样的变化, 因此摇摆曲线中各卫星峰的变化是相似的。

如果 t_1, t_2 变化, 则 M_x 也变化, 从而 $\Delta\theta_0$ 变化。当 t_1/t_2 变小时, 卫星峰漂向高角; 当 t_1/t_2 变大时卫星峰漂向低角。又 $t_1 + t_2$ 的变化引起 $\Delta\omega_p$ 的变

化，从而使两组卫星峰的间距变化，当它们分离较开，超过了半峰宽时，便出现分裂现象。由于 t_1+t_2 引起 $\Delta\omega_p$ 变化是随卫星峰的级次变化的。级次越高，分裂越严重。另外由于干涉效应，峰分裂时可能出现几个峰。我们还可以看到，如果 t_1+t_2 不变但 t_1/t_2 变化，则峰3会分裂，如图4.4(a)；如果 t_1/t_2 不变但 t_1+t_2 变化， $\Delta\theta_0$ 不变，但其高次卫星峰分裂，这即为图4.4(b)中的现象。这便是懂得说明我们前面分析的结果。

对于界面存在部分松驰的 $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x/\text{Si}$ 超晶格如样品2，松驰的影响也可用上面的方法说明。对此，我们引入一个简便的模型来计算超晶格的平均失配。定义界面的松驰率为

$$\nu = (a'' - a_s) / (a_0 - a_s) \quad (4.5)$$

a'' 是松驰后 GeSi 层水平点阵常数， $a_0 = a_s$ 。假设 Si 层仍是不变的，那么，(4.1)式可写成：

$$\begin{aligned} \langle m'' \rangle &= \nu \langle m_s'' \rangle ; \\ \langle m^+ \rangle &= \nu \langle m_s'' \rangle + (1-\nu) \langle m_s^+ \rangle . \end{aligned}$$

$$\text{或} \quad \begin{cases} \langle m'' \rangle = \nu \cdot M_{\bar{x}} ; \\ \langle m^+ \rangle = \nu M_{\bar{x}} + (1-\nu) (1 + 2c_{12}/c_{11}) M_{\bar{x}} . \end{cases} \quad (4.6a)$$

它们是那样取值的，当 $\nu=0$ 即完全无松驰时，与(4.4)式相同；当 $\nu=1$ 即完全松驰时 $\langle m'' \rangle = \langle m^+ \rangle = M_{\bar{x}}$ 都取自由状态下的点阵失配值。

可见，存在界面松驰时，超晶格的平均失

配将随之变化，从而零级峰和卫星峰会随着漂移。当增大时， $\Delta\theta$ 的数值变小，峰向衬底峰移动。如果计算中忽略这种松弛，就会给结果带来一定误差。

利用(4.6)式，可以从 $\Delta\theta$ 求出 λ 值。表4.7是利用这种方法(运动学方法)计算得到的样品2的界面松弛值，并列出了GID和模拟计算的结果。三者吻合得很好。

表4.7 样品2的界面松弛比 λ (%)

Diffr.	GID	Simulated	Kinemical
004	26.7	28	26
113		28	29
224		30	32

值得指出的是，运动学方法在大失配情况(如 $\text{Ge}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Si}$, x 较大)下是不太合适的。(4.1)的线性率亦不严格成立，它们在小失配时才能得到较准确的结果。但我们可以利用它来定性或半定量地解释超晶格的摇摆曲线。

§4.3 讨论

(1) 由于 x 射线的波场在周期性结构的干涉使超晶格的双晶衍射线摇摆曲线存在一组周期分布的卫星峰，这是其双晶衍射的一个特征。

如果样品的摇摆曲线显示不出周期性的卫星峰，说明样品结构不存在周期性成分和层厚单元，即使能在 TEM 截面照片中看到“周期”排列的结构，也只能说明是多层膜。因此 X 射线双晶摇摆曲线是检测和证明超晶格结构的直接而有效的方法。当然超晶格的不完美性会影响其摇摆曲线，结合 G2D, TEM 等其他手段可以更精确、更可靠地决定超晶格的结构参数。

(2) 上节我们看到实验摇摆曲线的半峰宽比理论曲线的大，这表明样品中存在不完美性，如成分和周期的不均匀；界面和表面的缺陷及晶体中的单晶程度等。另外实际所得结果是被照射区域内衍射的平均效果。因此可以认为，在 X 射线的照射区域内，超晶格实际上是由许多 x_i 和 t_i/t_0 相同的小块组合而成。各小块之间 x_i 和 t_i/t_0 相差越大，则超晶格的不完美性越差，其摇摆曲线的卫星峰的半峰宽越大；卫星峰相对于“0”级峰的强度越低。因此卫星峰数目及半峰宽和相对于零级峰的峰高是评价超晶格质量的一个参数。

§4.4 结论

(1) X 射线双晶衍射结合其摇摆曲线的模拟是检测超晶格的有效手段；结合 G2D 方法更准确地决定样品的结构。据此我们得到一个样品

成分和层厚跃变的超晶格结构；另一样品中存在部分的界面松弛。

(2) 超晶格中成分和层厚的跃变引起峰的漂移和分裂。成分变化影响平均应变，使卫星峰漂移和出现非对称变化。层厚的变化不仅影响平均应变，而且影响周期，使卫星峰发生移动和峰形畸变。超晶格成分和层厚变化不大时，峰分裂主要是层厚的变化造成的。

第五章 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 梯度层对X射线双晶摇摆曲线的影响

§5.1 问题的提出和实验

对于各种应用要求，在外延结构中成分随深度往往是要变化的，例如注入掺杂^[13,55]在表面引入了一个应变层；或为减少缺陷而在外延层与衬底之间生长一层成分渐变层^[56]，这样就在外延层中出现了梯度层。梯度层的存在影响样品的应力分布，从而影响器件的光电性能。

梯度层将对样品的X射线双晶衍射摇摆曲线产生影响。我们测量了一些 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 样品的摇摆曲线。实验光源是 $\text{CuK}\alpha 1$ ，第一晶体是 $\text{Si}(111)$ 的 111 衍射。双晶衍射仪用 (+, -) 排列。图 5.1(a) 和图 5.2(a) 是两个样品的 InP 004 衍射的摇摆曲线。

图 5.1(a) 是样品 1 $\text{In}_{0.5}\text{Al}_{0.5}\text{As}(1\mu\text{m})/\text{InP}(001)$ 的摇摆曲线，其外延峰³不再是简单的单峰，而是发生畸变，分裂成几个峰。图 5.1(b) 是其模拟曲线，模拟参数列于表 5.1。当外延层被分成成分相差很小的 5 层结构时，理论曲线与实验曲线吻合较好。模拟参数表明样品 1 为一成分渐变的结构，从衬底至表面成分从 $x=0.4900$ 至 $x=0.4930$ ； $\Delta x=0.003$ 。

图 5.2(a) 是样品 2 $\text{In}_{0.5}\text{Al}_{0.5}\text{As}(0.4\mu\text{m})/\text{InP}(001)$ 的

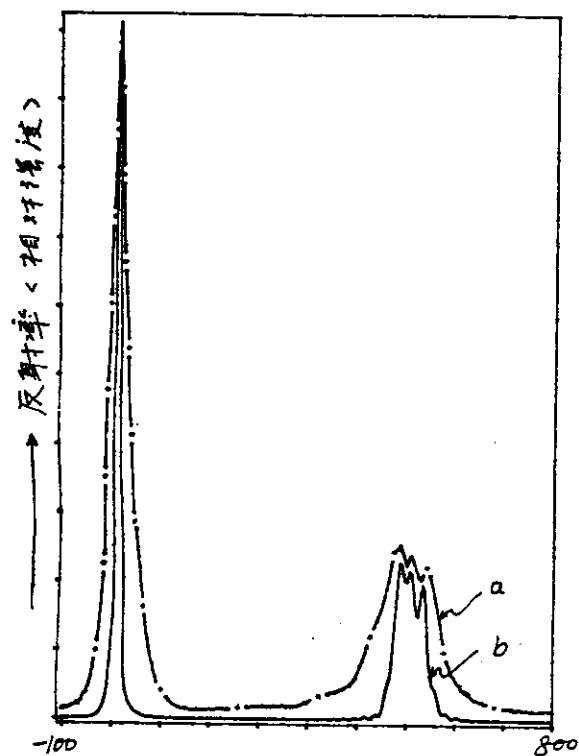


图 5.1 $\text{In}_{0.4}\text{Al}_{0.6}\text{As}/\text{InP}$ 样品的摇摆曲线, InP 004 衍射
(a) --- 实验曲线
(b) — 模拟曲线

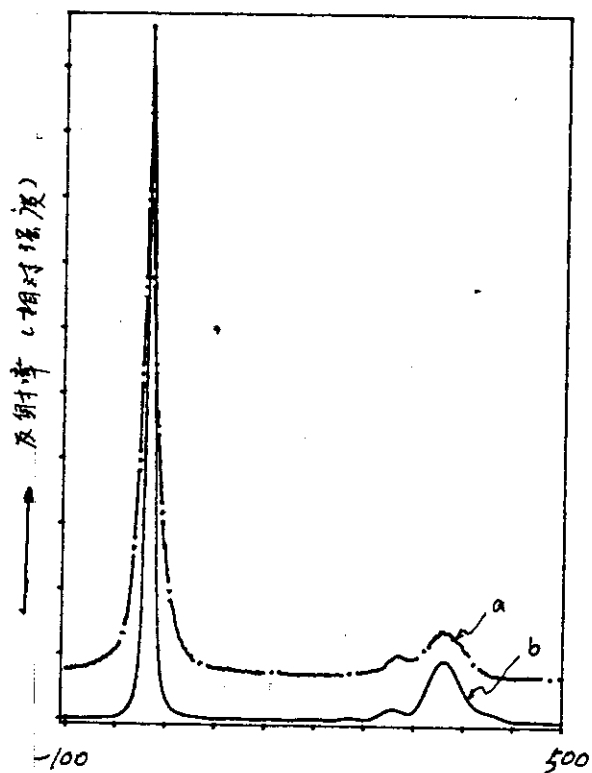


图 5.2 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 样品 2 的摇摆曲线, 004 衍射
(a) --- 实验曲线
(b) — 模拟曲线

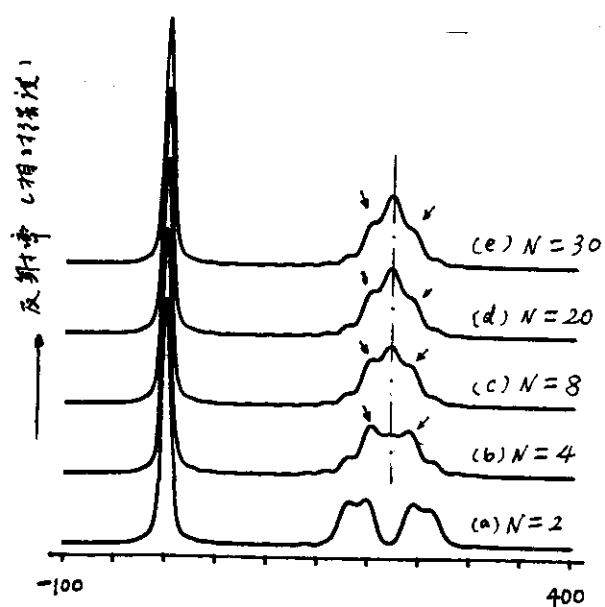


图 5.4 梯度层结构分成不同层数 N 时摇摆曲线。

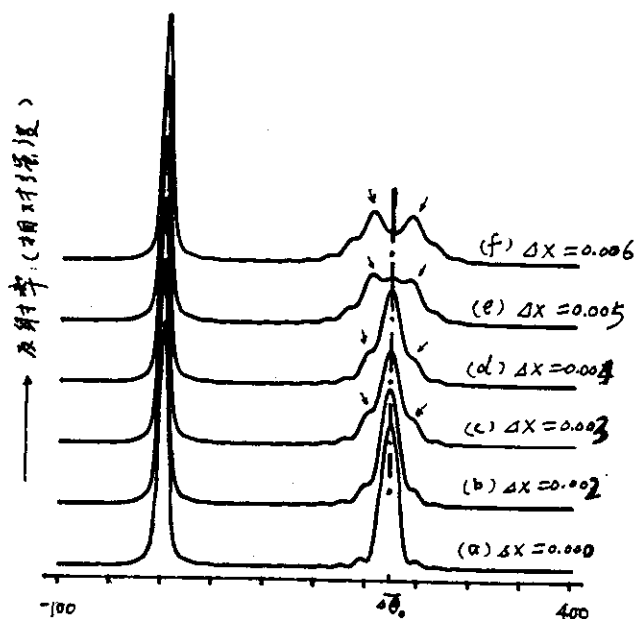


图 5.5 不同 Δx 梯度层结构摇摆曲线。

摇摆曲线与图 5.1(a) 3. 同, 其外延层峰的低角方向衍射明显增强, 高角方向衍射减弱。图 5.2(b) 给出其摇摆曲线, 模拟参数列于表 5.2。可以看出当外延层被分成成分变化的 6 层结构时, 理论曲线与实验曲线吻合较好。二者都显示了外延峰的不对称变化。表 5.2 的参数表明样品 2 是表层有一 $x=0.501$, $t=0.2\mu$ 的 $Al_{1-x}In_xAs$ 层和衬底与它之间成分由 $x=0.505$ 变到 $x=0.5025$ 的渐变层组成。

表 5.1 样品 1 的模拟参数

layer	x	thickness(μm)
1	0.4900	0.2
2	0.4905	0.2
3	0.4915	0.1
4	0.4920	0.1
5	0.4930	0.4

表 5.2 样品 2 的模拟参数

layer	x	thickness(μm)
1	0.5050	0.05
2	0.5045	0.04
3	0.5040	0.04
4	0.5030	0.04
5	0.5025	0.04
6	0.5010	0.20

以上我们得到 $In_xAl_{1-x}As/In$ 样品中梯度层结构, 看到梯度层的存在使外延层摇摆曲线的峰的变化。下面我们将系统地研究梯度层对摇摆线的影响。

§ 5.2 计算结果和讨论

本节所用的计算摇摆曲线的方法是第三章介绍的动力学理论模拟方法。 $In_xAl_{1-x}As/InP$ 样

品为负失配的；外延层总厚度为 $x_{total} = 1\mu m$ ；样品的结构是完美的，只有成分的微小变化。第一晶体为 Si(111) 的 111 衍射；光源为 $CuK\alpha_1$ ；InP 衬底 004 衍射。为应用迭代方程 (3-25)，将梯度层分成若干层，每层内的成分和结构因子是常数。梯度层的成分变化取线性梯度，当它被分为若干层时，成分随深度的变化是阶梯型函数，如图 5.3 所示

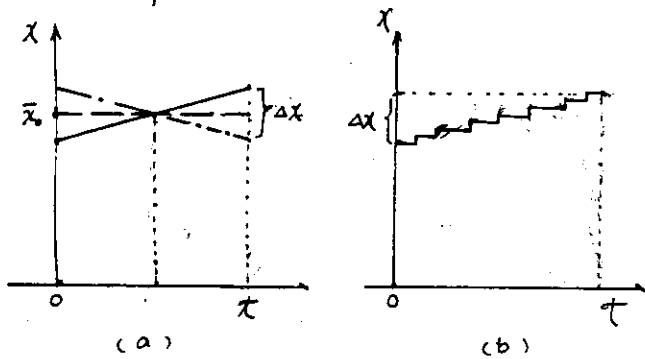


图 5.3 梯度模型

(a) 线性梯度

(b) 阶梯型梯度

§5.2.1 梯度外延层结构

假定外延层中成分的变化^{覆盖}盖整个外延层，我们称之为梯度外延层结构。影响梯度层的因素是成分变化的大小 Δx 。设有一 $In_{0.51}Al_{0.49}As(1\mu m)/InP$ 样品，其中成分变化 $\Delta x = 0.004$ ； $\bar{x} = 0.51$ 是平均成分。把梯度层分别分成 $N = 2, 4, 8, 20, 30$ 层，其摇摆曲线如图 5.4 所示。当 N 小时如 $N = 2$ ，摇摆曲线出现两个极大峰；由于两层 x 相差很小，两峰相隔很近而相互干涉的结果是使峰有微小畸变，如图 5.4 (a)。随着 N 增大，层间干涉使各干涉峰的强度相互加强或减弱， $N \geq 8$ 时，平

均峰变得很大而成为一个最大峰，两边还有层间干涉而形成的峰肩。当层数 N 继续增大，最大峰数目及位置不再改变，如图 5.4(c), (d), (e)。

为了看清成分变化 Δx 对摇摆曲线的影响，我们计算了 In_xAl_{1-x}As (1 μ) / InP 梯度层的曲线，如图 5.5 所示。平均 $x = 0.51$ 。随着 Δx 的增大，外延峰的强度降低且半峰宽增大；从现象看， Δx 较大时，外延峰分裂成两个或几个峰。但我们可以看到从 a $\rightarrow$ e， Δx 增大，平均峰（用虚线标识）和其邻近的干涉峰的相对强度发生变化，一方面平均峰不断降低，而另一方面邻近干涉峰（用箭头标识）增高。当 $\Delta x = 0.005$ 时三个峰可以比拟，如图 5.5(d)；它与实验样品 1 的衍射曲线相似。当 $\Delta x = 0.006$ 时，平均峰降低到低于邻近干涉峰而使摇摆曲线只显示出两个极大峰，(图 5.5(e))。图 5.5 中，各干涉条纹的间距 $\delta\theta$ 不变， $\delta\theta = 19''$ 。这表明梯度层不影响干涉条纹的间距而只引起干涉条纹的强度的相对变化。

§3.2.2 梯度过渡层

如果成分变化只在衬底上面的一定区域存在而没有覆盖整个外延层，我们称之为梯度过渡层。影响梯度过渡层的有两个因素，即梯度层厚度 t 和成分变化 Δx 。

没有 - In_xAl_{1-x}As / InP 样品，表层为层厚 $t_0 = 0.5\mu\text{m}$ 。

$x_0=0.51$ 的 InAlAs 层，它与衬底之间有一成分变化 Δx 的过渡层， $t=0.5\mu\text{m}$ 。定义 x 从 $x_0-\Delta x$ 到 x_0 为正梯度，从 $x_0+\Delta x$ 到 x_0 为负梯度。图 5.6 是一组具有不同 Δx 的正梯度过渡层的 004 衍射摇摆曲线。从图 5.6 中可以看出，当 Δx 增大时，外延层峰降低展宽并逐渐向高角方向漂移。同时高角方向的干涉条纹增强而低角方向条纹减弱，并与外延层峰一样向高角方向漂移。这是因为梯度层有一个逐渐增大的层变，梯度层的干涉使高角区的衍射条纹增强。

图 5.7 是负梯度过渡层的摇摆曲线，其他模拟参数与图 5.6 相同。与图 5.6 相似，当梯度层存在时，外延峰及干涉条纹发生非对称变化；随着 Δx 的增大，它们都向低角方向移动。外延峰也随之降低和展宽。图 5.7 中，低角方向的干涉条纹增强而高角方向的条纹大大减弱。这是因为梯度层的层变比表层小，梯度层干涉的结果使干涉条纹的相对强弱发生变化，低角方向条纹增强。图 5.6 和 5.7 中，干涉条纹的间距 $\delta\theta$ 也没有变化。

如果过渡层的层厚 t 变化，而 Δx 不变， $\Delta x=0.004$ ，表层 $\text{Al}_{0.49}\text{In}_{0.51}\text{As}$ 层厚为 $(1-t)\mu\text{m}$ 。图 5.8 是一组不同 t 的正梯度过渡层的摇摆曲线。可以看出，随着 t 的增大，外延峰和干涉条纹向高角方向漂移，高角方向干涉条纹增强而低角方向减弱，这种

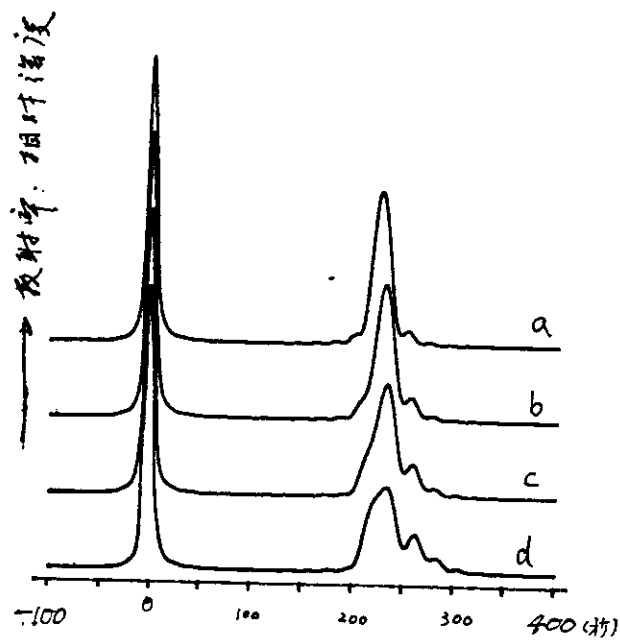


图 5.6 不同 Δx 梯度过渡层的摆
摆曲线, 正梯度;
(a) $\Delta x = 0.001$; (b) $\Delta x = 0.002$
(c) $\Delta x = 0.003$; (d) $\Delta x = 0.004$

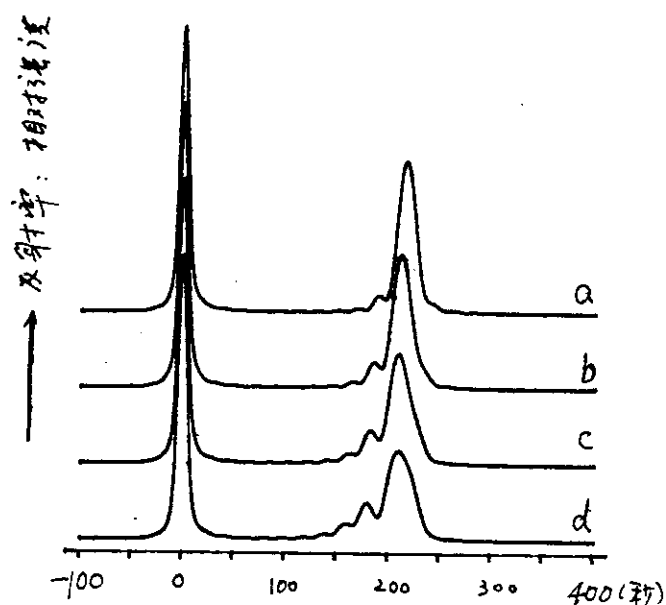


图 5.7 与图 5.6 相似, 负梯度过
渡层的摆摆曲线,
(a) $\Delta x = 0.001$ (b) $\Delta x = 0.002$
(c) $\Delta x = 0.003$ (d) $\Delta x = 0.004$

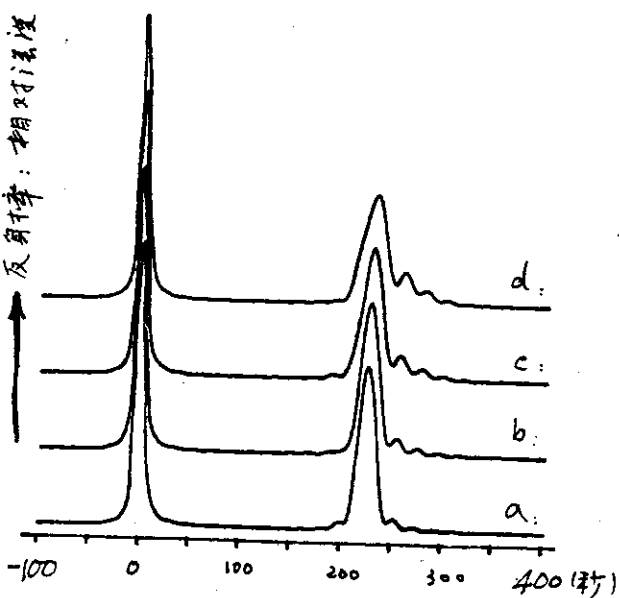


图 5.8 不同厚度 t 梯度过渡层的
摆摆曲线; $\Delta x = 0.004$,
正梯度; (a) $t = 0.1 \mu$, (b) $t =$
 0.2μ , (c) $t = 0.3 \mu$, (d) $t = 0.4 \mu$

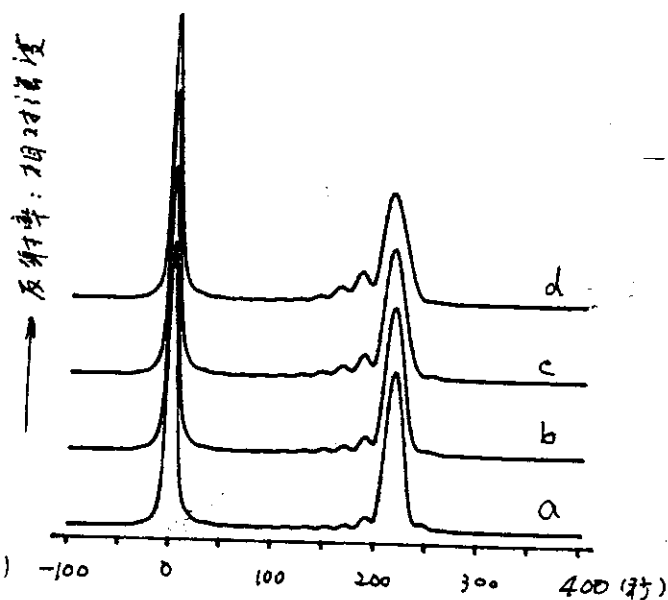


图 5.9 同 5.8 相似, 但梯度为负;
(a) $t = 0.1 \mu$ (b) $t = 0.2 \mu$
(c) $t = 0.3 \mu$ (d) $t = 0.4 \mu$

变化趋势与图 5.6 相似。当 γ 较大时，如图 5.8(d)，干涉峰成为较明显的小峰。类似于图 5.8，我们计算了负梯度过渡层的摇摆曲线^{如图 5.9}。 α 变化由 0.54 至 0.51。与图 5.8 变化类似，但外延峰和干涉条纹变化的方向都与图 5.8 相反，它们向低角方向漂移。较强的干涉条纹在低角方向，而高角方向干涉条纹大大减弱。图 5.8 和图 5.9 中，摇摆曲线与干涉条纹的角距 $\delta\theta$ 仍然不变， $\delta\theta = 19''$ 。

从图 5.6—5.9，可以发现正梯度过渡层低角区的干涉条纹有一定强度，但负梯度过渡层高角区干涉条纹大大减弱，这是因为 $Al_{0.49}In_{0.51}As$ / InP 为负失配外延层，外延层与衬底的干涉使衬底峰与外延峰之间即低角区的干涉条纹增强。对理想外延层的摇摆曲线如图 5.5(a)，低角区的干涉条纹比高角区的强。

从上面的分析，我们得到：

- (1) 梯度层的存在使外延峰降低和展宽；
- (2) 梯度过渡层使外延峰及干涉条纹发生非对称变化。梯度为正时高角方向干涉条纹增强，低角方向干涉条纹减弱，且外延峰与干涉条纹向高角方向漂移；反之亦然。非对称变化的程度与 α 和 γ 有关， α 越大， γ 越大，变化越大；
- (3) 如果外延层总厚度不变，则干涉条纹的间距 $\delta\theta = 19''$ 不变，它不受梯度层的影响。

§5.2.3 讨论

上面我们看到梯度层对摇摆曲线的影响。这些变化是由于梯度层干涉的平均效应所致。我们可以从运动学的观点来理解。根据 Bragg 定律可以得到应变为 $(\Delta a^+ / a)_i$ 的各层衍射峰峰位：

$$\Delta \theta_i^+ = -(\Delta a^+ / a)_i \cdot \tan \theta_B \quad (5-1)$$

在梯度层中由于成分渐变， $(\Delta a^+ / a)_i$ 是渐变的，从而 $\Delta \theta_i^+$ 随之渐变，各衍射峰逐渐分开。它们的相互干涉叠加的结果是外延峰的降低和展宽，且干涉条纹的相对强度发生变化。当 x 变化较大时， $\Delta \theta_i^+$ 相差较大，干涉条纹的强度消长使平均峰低于邻近干涉峰，外延峰就出了几个峰。（如图 5.5 所示）对梯度过渡层， x 变化使平均峰漂移。正梯度即 x 变小时峰向高角方向漂移，这时 $\Delta \theta_i^+$ 是变大的。负梯度时峰向低角方向漂移，这时 $\Delta \theta_i^+$ 是变小的。（如图 5.6-5.9 所示）

当梯度层存在时，公式 (5-1) 不能用来计算外延层中真实应变和成分，因为外延峰发生漂移。但用它来计算外延层中的平均应变。要得到梯度层外延结构的准确的结构参数，最好的方法是用动力学理论模拟样品的摇摆曲线。

结论 (3) 表明干涉条纹的间距不受梯度层的影响。这一点是可以理解的。外延层干涉条纹的间距由下式给出^[20, 23]：

$$\delta \theta = \lambda |2\theta| / T \sin 2\theta_B \quad (5-2)$$

这与超晶格卫星峰的间距同周期的关系^[11]类似。如果外延层的层厚 T 不变，那么 $\delta\theta$ 不变。反过来如果摇摆曲线 I 于洛伦兹纹的间距 $\delta\theta$ 不变，则表明外延层的层厚不变。利用这一特性，可以用 (5-2) 式及高分辨双晶衍射来测外延层的层厚^[17]。

梯度层对摇摆曲线是随 α 或 τ 的增大而增大的。对于超薄型材料如超晶格，其本身层厚较小，梯度层的存在将对其光电性能的影响更大。

§5.3 结语

利用摇摆曲线的动力学模拟方法分析了梯度层对摇摆曲线的影响；梯度层对外延峰和干涉条纹的相对强度影响较大，并引起其漂移。利用双晶衍射及摇摆曲线的模拟，得到 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 样品的梯度成分。这表明，双晶衍射摇摆曲线及模拟提供了一种研究外延层结构中成分变化的有效方法。

第六章 梯度界面和界面粗糙

§ 6.1 概述

在前面的讨论中我们还没有涉及多层膜的界面状况，而认为它是理想完美的。这种假设往往不合实际。即使对高质量的样品，界面处两层的原子相互扩散也可能造成界面的不完美，如界面过渡层或界面的不平整。由于这种过渡层薄，而样品中往往存在其他缺陷，使界面的影响被掩盖。但是对超晶格，界面的影响有时是很重要的，必须加以考虑。界面问题比较复杂，对于晶体，如 GeSi/Si ， GaAlAs/GaAs 或 InGaAs/GaAs 等外延结构的界面，如果原子扩散影响较大，就可能出现一个成分渐变的过渡界面层。对这种过渡层，其成分变化往往呈线性或指数分布，原则上可以引入数学上的分析近似来表述，例如用〈图6.1所示区域〉

$$\langle 1 \rangle \text{ 线性函数: } (\Delta a/a)_j^+ = (\Delta a/a)_0^+ (1 - M_2 z_j/z_0);$$

$$\langle 2 \rangle \text{ 指数函数: } (\Delta a/a)_j^+ = (\Delta a/a)_0^+ (1 - e^{M_2(z_j/z_0 - K)})^{-1};$$

来近似模拟 $(\Delta a/a)_j^+$ 与深度 z_j 的关系。Fewster^[40] 和 Baumbach^[59] 等人曾用这种近似研究一些界面问题。当过渡层“较厚”时，可以采用第五章讨论梯度层的方法来研究它，原则上可以将它们分成若干层。如果界面过渡层很薄，可以用运动学近似计算它对外延层结构因子的影响。^[38] 对界

面原子仍为晶态排列时，我们可以采用一种简单的计算方法。如图 6.2 所示的 $\text{InAlAs}/\text{GaInAs}$ 界面，由于原子在界面处的重排，界面没有清楚的分界线。从总体上看是凹凸的“矩形波”式的。它导致外延层局部厚度的微小变化。对 x 射线衍射，由其凹凸的尺寸比 x 射线照射面小得多，实际的衍射结果是这一照射区域内局部层厚略有不同的外延层衍射的平均效应。可以通过计算这种平均来模拟界面粗糙对 x 射线双晶衍射的影响。

§ 6.2 界面粗糙对摇摆曲线的影响

假定界面粗糙度相对外延层厚是较小的。它引起的局部层厚变化分布是无规的，相对于平均界面（即图 6.2 中的点划线所示），层厚变化为 δt_i 。可以用产生随机数的方法来模拟它。界面粗糙度用平均界面粗糙 $\langle \delta \rangle$ 来定量描述，它是所有局部厚度变化的均方根，即

$$\langle \delta \rangle = \left[\sum_{i=1}^N (t_i - \bar{t})^2 \right]^{1/2} = \left[\sum (\delta t_i)^2 / N \right]^{1/2} \quad (6-1)$$

x 射线双晶衍射摇摆曲线取一区域的平均。

根据这种假设我们计算了 InGaAs/InP 单层膜和 $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}$ 超晶格的摇摆曲线。第一晶体为 $\text{GaAs}(001)$ 的 004 衍射，光源为 $\text{CuK}\alpha_1$ 辐射。

图 6.3 是 $\text{In}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}(0.5\mu\text{m})/\text{InP}(001)$ 样品的 InP 224 衍射的摇摆曲线。图中 a、b、c、d、e 代表

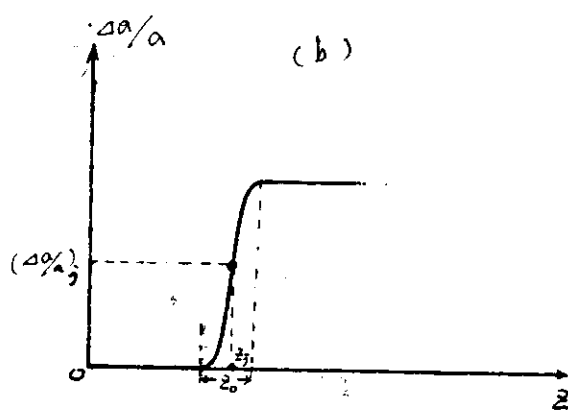
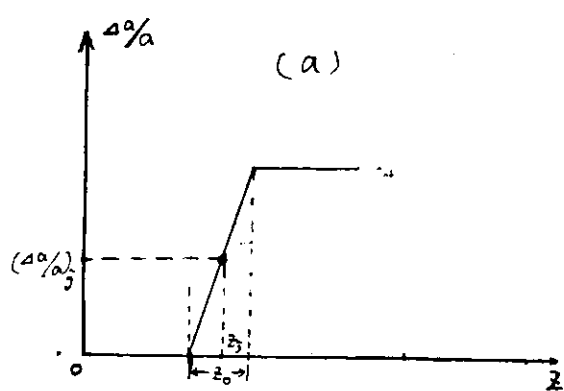


图 6.1 单异质结构梯度界面示意图 (a) 线性函数 (b) 指数函数
界面过渡层宽度为 z_0 。

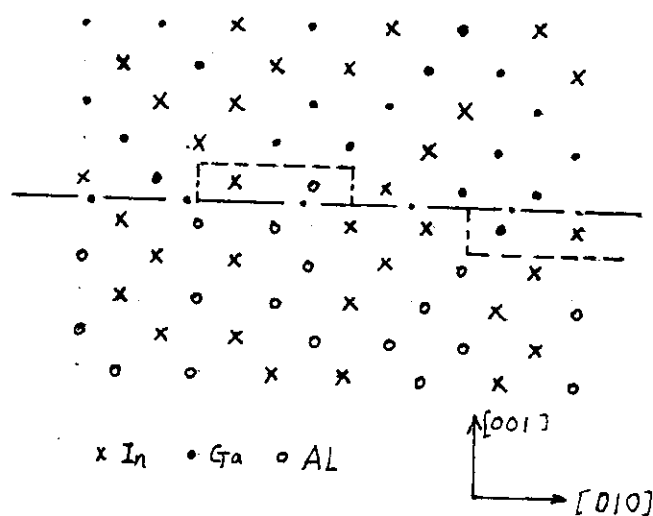


图 6.2 $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}$
界面示意图

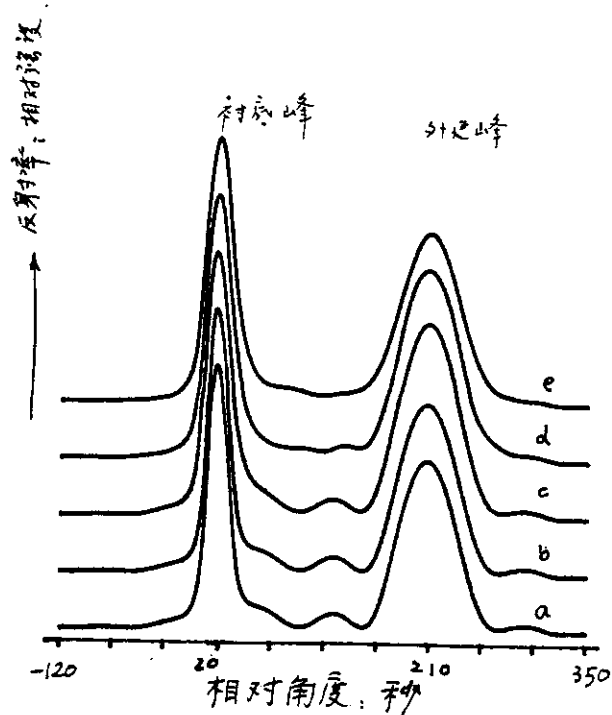


图 6.3.

$\text{In}_{0.525}\text{Ga}_{0.475}\text{As}/\text{InP}(001)$
的摇摆曲线, InP
224 衍射.

(a) $\langle \delta \rangle = 0$

(b) $\langle \delta \rangle = 10 \text{ \AA}$

(c) $\langle \delta \rangle = 30 \text{ \AA}$

(d) $\langle \delta \rangle = 85 \text{ \AA}$

(e) $\langle \delta \rangle = 100 \text{ \AA}$

$\langle \delta \rangle = 0, 10 \text{ \AA}, 30 \text{ \AA}, 85 \text{ \AA}$ 和 $100 \text{ \AA}$ 时的曲线。可以看出，外延膜与衬底间的界面粗糙度存在时，外延峰相对理想状态下 (a) 的曲线变化很小。表 6.1 给出外延峰的峰宽及相对峰高，半峰宽展宽很小，峰高也无多大变化。但是干涉条纹的强度随 $\langle \delta \rangle$ 的增大而减弱，当 $\langle \delta \rangle$ 较大时，呈现消失趋势。

图 6.4 是 50 周期 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.49}\text{As} (85 \text{ \AA}) / \text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As} (85 \text{ \AA}) / \text{InP} (001)$ 面配超晶格 $\text{InP } 004$ 衍射的摇摆曲线。表 6.2 列出 $\langle \delta \rangle = 1.26 \text{ \AA}, 2.6 \text{ \AA}, 3.14 \text{ \AA}, 5.2 \text{ \AA}$ 和 $6.04 \text{ \AA}$ 时摇摆曲线与 -1 级峰的半峰宽随 $\langle \delta \rangle$ 的变化。计算结果给出了 0 级峰距衬底峰 60° ，它随 $\langle \delta \rangle$ 几乎没有变化。 ± 1 级峰的变化趋势相同。从表 6.2 可以看出，随着 $\langle \delta \rangle$ 的增大， -1 级峰的半峰宽逐渐增大，表明超晶格的完美性有所降低。

我们知道外延层的峰和超晶格的零级峰是反映外延结构平均衍射效应，它的随 $\langle \delta \rangle$ 的变化不大说明界面的轻微粗糙度不影响外延层的平均应变。外延层的干涉峰和超晶格的卫星峰反映外延层的完美性和结构特点。由于粗糙度的存在影响了 x 射线衍射的相干长度，从而导致外延层 x 射线衍射细节的变化，即干涉条纹的减弱和超晶格卫星峰的展宽； $\langle \delta \rangle$ 越大，这种变化越大，说明外延层的完美性受到影响的

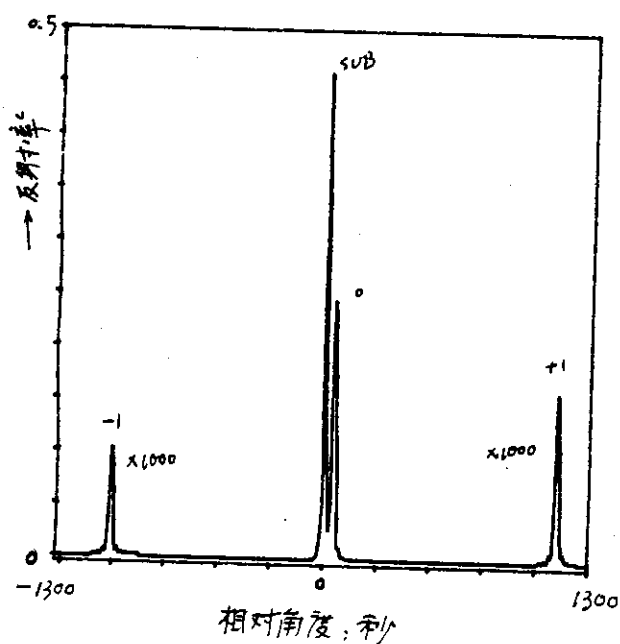


图 6.4. InAlAs(85Å)/

InGaAs(85Å)/InP(001), 50
周期匹配超晶格的摆
摆曲线, InP 004 衍射
±1 级峰放大 1000 倍

表 6.1 InGaAs/InP 单层膜摇摆曲线对延峰的半峰宽和相对峰高

$\langle \delta \rangle$ (Å)	0	10	30	85	100
FWHM (秒)	63	64	64.5	64.7	65
相对峰高	1.0	0.980	0.976	0.894	0.858

表 6.2 InGaAs/InAlAs 超晶格 -1 级峰的半峰宽 (FWHM)

$\langle \delta \rangle$ (Å)	1.26	2.30	3.14	5.20	6.04
FWHM (秒)	25.7	29.6	32.3	58.0	75.0

程度越大。我们还看到单层膜外延峰随 δ 变化趋势与超晶格卫星峰的变化趋势相似，说明超晶格的周期性结构具有单层晶体的某些结构特性，其卫星峰和干涉条纹分别表征这种特性X射线衍射的性质。

可以从运动学的角度来理解上面的变化。外延层的干涉条纹间距为

$$\delta 0^\circ = \lambda |R_g| / t_i \sin 2\theta_0$$

局部厚度 t_i 的微小变化引起 $\delta 0^\circ$ 的变化。对于一系列 t_i 不同的衍射的平均效果，其干涉条纹相互叠加而减弱。 t_i 相差越大， $\delta 0^\circ$ 相差越大，条纹的变化越大，直至消失。与 t_i 不同，由于层中应变分布不变，外延峰的位置不变，强度变化也不大。对超晶格，式中 t_i 为 t_p 即超晶格周期， $\delta 0^\circ$ 为 ΔW_p° 即卫星峰间距。如果平均应变不变，零级峰不变，那么界面粗糙引起的局部层厚变化也导致 t_i 的变化，从而卫星峰的变化如同干涉条纹一样也会减弱和展宽。因而界面的不完美性也是引起超晶格卫星峰变化以至消失的因素。

从图中还看到反映外延层平均效果的峰受界面粗糙影响大小。这一点可这样理解，对应变为 $(\Delta a/a)_i^\circ$ 的外延层，其峰与衬底^峰的间距为

$$\Delta 0^\circ = -(\Delta a/a)_i^\circ (\cos \theta_p \cos \theta_0 + \frac{1}{2} \sin 2\theta)$$

局部厚度的变化只是使峰高的微小变化，其速

加的平均效果使外延峰的变化很小。对匹配超晶格 $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}/\text{InP}$ ，超晶格的平均应变为：

$$\langle \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp}^+ \rangle = \frac{n_1}{n_1+n_2} \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp,1}^+ + \frac{n_2}{n_1+n_2} \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp,2}^+$$

n_1, n_2 分别为原子层数。由于匹配 $\text{InAlAs}/\text{GaInAs}$ 超晶格的两组元点阵常数基本相等，并都近似等于 InP 的点阵常数，而 InGaAs 和 InAlAs 的弹性常数相差很小，这样就有 $\langle \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp}^+ \rangle = \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp,1}^+ = \left(\frac{\Delta a}{a} \right)_{\perp,2}^+$ ，与组元的层数无关，因而局部厚度的变化的影响使超晶格的零级峰变化不大。这一点与单层膜的外延峰相似。

L. Taffer 等人^[58]曾报导 $\text{InAlAs}(85\text{\AA})/\text{InGaAs}(85\text{\AA})/\text{InP}$ 50 周期匹配超晶格的 X 射线双晶摇摆曲线，其组分和厚度是严格控制的。表 6.3 列出他们的实验结果与我们计算结果的比较。

表 6.3 $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}$ 超晶格摇摆曲线模拟曲线与实验结果比较

Order	Theoretical (秒)				Experimental (秒)	
	Position		FWHM		Position	FWHM
	$\langle \delta \rangle = 0$	$\langle \delta \rangle = 3.14$	$\langle \delta \rangle = 0$	$\langle \delta \rangle = 3.14$		
0	+60	+60	24	24	+57	26
-1	-1035	-1040	24	32.3	-1040	33
+1	+1160	+1155	24	32.0	+1153	33

从表6.3可以看出，实验曲线的零级峰与计算结果接近，相对峰位分别为 $+57''$ 和 $60''$ ；半峰宽分别为 $26''$ 和 $24''$ 。但±1级峰的半峰宽有差异，实验值为 $33''$ ；而 $\langle \delta \rangle = 0$ 时为 $24''$ ； $\langle \delta \rangle = 3.14 \text{ \AA}$ 时为 $32''$ 。根据我们前面的分析，超晶格的界面存在平均 $3.14 \text{ \AA}$ 的粗糙，相当于界面 $1 \sim 2$ 原子层的起伏。

§ 6.3 结语

我们用初力学理论模拟方法分析了界面粗糙对摇摆曲线的影响，得到了粗糙度与峰宽变化的关系，并与实验进行了比较。说明尽管高质量 InGaAs/AlInAs 样品成分和厚度的准确控制，但界面的状态往往是不十分完美的。界面问题是很复杂的，这里只是一种简单模型的初步结果。深入的工作需要继续进行。

结 论

从畸变晶体X射线衍射动力学理论导出基本方程，并给出适合于计算机计算的多层结构反射率的迭代形式。测展GeSi/Si超晶格样品的不同衍射面的双晶衍射摇摆曲线。模拟计算给出3样品1的成分和层厚跃变的结构；样品2部分松驰的界面状态。模拟计算分析表明，超晶格中成分跃变影响其平均应变，从而导致摇摆曲线卫星峰的漂移和非对称变化。当成分变小时峰移向高角方向，并且卫星峰的高角方向出现较强的衍射条纹；反之亦然。超晶格的层厚跃变不仅可以影响卫星峰的漂移，而且造成卫星峰的分裂；层厚变化越大，卫星峰级次越高，分裂程度越大。层厚的变化是卫星峰分裂的主要原因。

模拟方法分析3 $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ 样品梯度层对摇摆曲线的影响。梯度层的存在导致外延层峰的减弱和漂移以至峰的畸变；干涉条纹随梯度过渡层的成分变化增大或厚度增加而发生越来越大的非对称变化。对负失配样品，正梯度使高角方向干涉条纹大大增强并向高角方向移动；负梯度使低角方向干涉条纹的强度增大并向低角方向移动。但只要外延层厚度不变，梯度层只影响干涉条纹相对强度而不影响其间距。实验测量3 InAlAs/InP 样品的摇摆曲线，当外延层

被分成适当层成分微变的梯度层结构时，理论模拟曲线和实验曲线吻合较好。

用一种简单模型计算了界面粗糙的 InGaAs/InP 和 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}/\text{InP}$ 匹配超晶格样品的摇摆曲线。界面粗糙对干涉条纹和卫星峰影响较大，但对反映平均效应的外延峰和零级峰影响较小。与其他实验结果比较说明即使高质量的 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$ 匹配超晶格界面，仍存在 1~2 个原子层的起伏。

1. J.E. Davey and T. Pankey, J. Appl. Phys. 39, 1941 (1968).
2. L.L. Chang and L. Esaki, J. Vac. Sci. Technol. 10, 655 (1973).
3. U. Gnutzmann and K. Clauseker, Appl. Phys. 3, 9 (1974).
4. A. Madhukar, J. Vac. Sci. Technol. 20, 149 (1982).
5. I.J. Fritz and L.R. Dawson, Appl. Phys. Lett. 43, 846 (1983).
6. J.H. Vandermerwe, J. Appl. Phys. 34, 117 (1983).
7. G.C. Osbourn, J. Appl. Phys. 53, 1586 (1982).
8. G.C. Osbourn, R.M. Beifeld and P.L. Gourley, Appl. Phys. Lett. 41, 172 (1982).
9. H. Holloway, "in Use of Thin Films in Physical Investigations", edited by J.C. Anderson. (Academic, New York, 1966).
10. L.C. Bobb, H. Holloway, K.H. Maxwell and E. Zimmerman, J. Phys. Chem. Solids. 27, 1679 (1966).
11. H. Holloway, J.L. Richards. L.C. Bobb, J. Peery and E. Zimmerman, J. Appl. Phys. 37, 4694 (1966).
12. A. Iida, Phys. Stat. Sol. 54, 701 (1979).
13. B.G. Cohen, Solid State Electronic. 10, 33 (1967).
14. S. Weissmann and T. Saka, "Adv. X-ray Anal." vol.20, 227 (Plenum, New York, 1977).
15. W.J. Bartels, J. Vac. Sci. Technol. B1, 338 (1983).
16. M.A.G. Halliwell, M.H. Lyons and M.J. Hill, J. Cryst. Growth 68, 523 (1984).
17. I.C. Bassignana and C.C. Tan, J. Appl. Cryst. 22, 269 (1989).
18. T. Hattanda and A. Takeda, Jpn. J. Appl. Phys. 12, 1104 (1973).
19. L. Tapfer and K. Ploog, Phys. Rev. B33, 5565 (1986).
20. W.J. Bartels and W. Nijman, J. Appl. Phys. 44, 518 (1978).
21. V.S. Speriosu, J. Appl. Phys. 52, 6094 (1981).
22. V.S. Speriosu and T. Vreeland. Jr., J. Appl. Phys. 56, 1591 (1981).
23. S. Takagi, Acta Cryst. 15, 1311 (1962).
24. S. Takagi, J. Phys. Soc. Jpn. 26, 1239 (1969).
25. D. Taupin and Bull, J. Phys. Soc. Franc. Miner. Crist. 87, 469 (1964).
26. R.N. Kyutt, P.V. Petrashen and L.M. Sorokin, Phys. Status Solidi. A60, 381 (1980).
27. W.J. Bartels, J. Hornstra and D.J.W. Lobeek, Acta Cryst. A42, 539 (1986).
28. W.T. Stacy and M.M. Janssen, J. Cryst. Growth 27, 282 (1974).
29. B.K. Tanner and M.J. Hill, "Adv. X-ray Anal." 29, 337 (1986).
30. X. Chu and B.K. Tanner, Appl. Phys. Lett. 49, 1773 (1986).
31. X. Chu and B.K. Tanner, Semicond. Technol. 2, 765 (1987).
32. C.R. Wie, J. Appl. Phys. 65, 1036 (1989).
33. S. Bensoussan, C. Malgrange and M. Sauvage-Simkin, J. Appl. Cryst. 20, 222 (1989).

34. S.J. Barnett, G.T. Brown, S.J. Courtney, S.J. Bass and L.L. Taylor, *J. Appl. Phys.* 64, 1185 (1988).
35. Z.H. Mai, S.F. Cui and C.G. He, *Phys. Rev.* B41, 9930 (1990).
36. I. Umebu, S. Komiyo, T. Nakamura, S.I. Mutch and A. Iida, *J. de Physique* 48, C5-41 (1987).
37. P. Auvray, M. Baudet, A. Regeny and B. Guenals, *J. de Physique* 48, C5-105 (1987).
38. S.C. Woronik, B.X. Yang, A. Krol and H. Munrkata, *J. de Physique* 48, C5-51 (1987).
39. D. Chrzan and P. Dutta, *J. Appl. Phys.* 59, 1504 (1986).
40. P.F. Fewster, *J. Appl. Cryst.* 21, 524 (1988).
41. 谢忠信等 <<X-射线光谱分析>> P134, 科学出版社, (1982).
42. 冯端, 许顺生编 <<X射线衍射照相学>> 科学出版社, (1987).
43. Z.G. Pinsker "Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals", (Springer-Verlag Barlin, Heideberg, New York, 1978).
44. C.G. Darwin, *Phil. Mag.* 27, 315 (1914).
45. P.P. Ewald, *Ann. Physik* 54, 519 (1915).
46. M.V. Laue, *Ergeb. Exakt.* 10, 133 (1931).
47. W.H. Zacharisen, "Theory of X-ray Diffraction in Crystals", (J. Wiley and sons, New York, 1945).
48. 贺楚光, 麦振洪, 崔树范 <<物理学报>> 39, 778 (1990).
49. International Tables for X-ray Crystallography. (edited by Ibers and W.C. Hamilton, C.Kynoch, Birmingham, 1974) Vol.4.
50. K. Kamigaki, *Appl. Phys. Lett.* 49, 1071 (1986).
51. R. People, *IEEE J. QE-22*, 1696 (1986).
52. G.L. Patton, S.S. Iyer, S.L. Delege, S. Tiwari and J.M.C. Stork, *IEEE Eletron Device Lett.* 9, 165 (1989).
53. J.C. Bean, *J. Vac. Sci. Technol.* 42, 436 (1984).
54. S.F. Cui, Z.H. Mai, C.Y. Wang, L.S. Wu, J.T. Ouyang and J.H. Li (unpublication).
55. J. Milteat, *IEEE Tran. Mag.* 20, 1114 (1984).
56. D.S. Cao, C.H. Chen, K.L. Fry, E.H. Reihlen and G.B. Stringfellow, *J. Appl. Phys.* 65, 2451 (1989).
57. T. Baumbach, H.G. Bruhc, H. Rhan and U. Pietsch, *J. Appl. Cryst.* 21, 386 (1988).
58. L. Tapfer, W. Stolz and K. Ploog, *J. Appl. Phys.* 65, 3217 (1989).

论文期间的文章

1. “薄膜界面缺陷的计算机模拟研究” 第二届全国固体薄膜学术会 1990.9. 承德
2. “薄膜界面粗糙对双晶摇摆曲线的影响” 已投“物理学报”
3. “X-ray Diffraction analysis of $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ Superlattices.” 投 J. Appl. phys.
4. “Effects of Graded layer on Double-Crystal Rocking Curves” 投 J. Appl. phys.

致谢

本文是在麦振洪研究员的悉心指导下完成的。先生严谨求实，学识广博为晚辈景仰。先生在理论和实验中传授了大量知识和经验使学生受到莫大教益。唯望日后加倍努力，方能不负师望。

本文的工作得到崔树范副研究员的热情指导和帮助，并进行了许多有益的讨论，在此向崔老师表示衷心感谢。实验中得到吴兰生、王超英、戴道扬老师的大力帮助，在此向他们表示衷心感谢，并祝他们生活幸福。

论文工作中得到周钧铭、黄琦老师及江潮、半导体所的王玉田老师和电镜中心段晓峰老师的帮助，在此表示衷心感谢。

三年的工作和学习生活中与诸位兄弟建立了深厚的友谊，特别是与李超荣、孙小松、徐路和李建华的多次讨论和交流，使我受益匪浅。在此表示良好的祝愿，希望他们有个幸福的小家庭和活泼可爱的小宝。