

Применение метода рентгеновской рефлектометрии для определения градиентов состава на границе квантовой ямы в лазерных структурах на основе системы AlGaAs/GaAs

© А.В. Березуцкий, Г.Т. Микаелян, С.Д. Таривердиев

ООО „Лассард“,
249032 Обнинск, Россия

E-mail: tekton1321@gmail.com

Поступила в Редакцию 31 мая 2023 г.

В окончательной редакции 14 июня 2023 г.

Принята к публикации 12 декабря 2023 г.

Представлена возможность применения методики рентгеновской рефлектометрии для определения градиентов состава на границах квантовой ямы в гетероструктурах на основе AlGaAs/GaAs, полученных методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений. Показано, что эта методика применима на этапе отработки активной области. Подобраны параметры снятия рефлектометрических кривых. Измерены градиентные составы в экспериментальном образце.

Ключевые слова: рентгеновская рефлектометрия, квантовая яма, гетерограница, переходный слой, GaAs.

DOI: 10.61011/FTP.2023.09.56994.5279

1. Введение

Полупроводниковые инжекционные лазеры (их также называют диодными лазерами) на текущий момент являются одним из наиболее востребованных приборов квантовой электроники и фотоники. Одним из основных этапов технологии изготовления диодных лазеров является рост полупроводниковой гетероструктуры на монокристаллической подложке. На сегодняшнем уровне развития технологий рост осуществляется методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (MOCVD) или молекулярно-лучевой эпитаксией (MBE). У каждого метода есть свои преимущества и недостатки. Одним из недостатков метода MOCVD является образование неоднородностей на границах квантово-размерных слоев лазерной гетероструктуры, которое может оказать существенное влияние на параметры итоговой гетероструктуры [1]. На текущий момент не существует неразрушающих и точных методик для контроля образующихся таким образом переходных слоев для структур на основе арсенида галлия. Известным неразрушающим методом для определения толщин тонких пленок является рентгеновская рефлектометрия [2,3].

Метод рентгеновской рефлектометрии основан на явлении полного внешнего отражения рентгеновского излучения от твердого тела (у которых для рентгеновского излучения показатель преломления всегда меньше 1) под меньшими углами падения (в рефлектометрии углом падения принято называть угол между лучом и поверхностью твердого тела), чем критический (для GaAs $2\theta_{cr} = 0.31^\circ$). Данный метод позволяет определять толщины тонких пленок на поверхности монокристаллов. Он применялся в работах [4–6] для исследования различных оксидных покрытий, гетероструктур на основе кремния (Si/Ge) и для определения толщин квантовых ям в структурах A^{III}B^V. Однако он не применялся для

определения градиентов состава в квантово-размерных слоях лазерных гетероструктур.

На рефлектометрической кривой из двухслойной эпитаксиальной структуры (см. рис. 1, кривая 4), выращенной на монокристаллической подложке, наблюдаются три системы интерференционных максимумов с разными периодами, наложенными друг на друга: две системы соответствуют толщинам отдельных слоев (кривые 1 и 2), а третья (с минимальным периодом) — общей (суммарной) толщине структуры (кривая 3) [7,8].

Расшифровка рефлектометрической кривой происходит следующим образом:

1) методом рентгеновской дифрактометрии определяются составы (по положениям основных пиков) и толщины слоев (по положениям сателлитных пиков);

2) в программе X-pert reflectivity строится расчетная рефлектометрическая кривая от определенной в предыдущем шаге структуры;

3) добавляются тонкие слои (до 8) промежуточного состава на границах квантовой ямы. Толщины подбираются до полного соответствия положения максимумов расчетной и экспериментальной кривых. Предполагается, что градиенты состава по обе стороны от квантовой ямы идентичны.

Рефлектометрическая кривая от N -слойной структуры содержит $N(N + 1)/2$ периодов и может быть корректно расшифрована при сравнении экспериментальной кривой с расчетной для структур, содержащих не более 10 слоев [7,8].

Цель настоящей работы — применение вышеуказанной методики для определения и контроля градиентов состава в квантово-размерных слоях гетероструктур для последующего ее использования в технологических процессах производства полупроводниковых лазеров на основе твердых растворов A^{III}B^V.

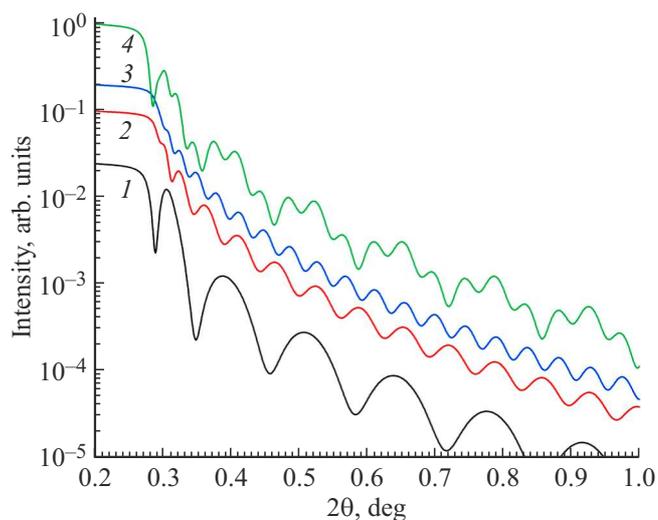


Рис. 1. Кривые 1 и 2 соответствуют интерференционным максимумам отдельных слоев; 3 — суммарной толщине структуры; 4 — рефлектометрическая кривая двуслойной структуры — сложение кривых 1, 2 и 3.

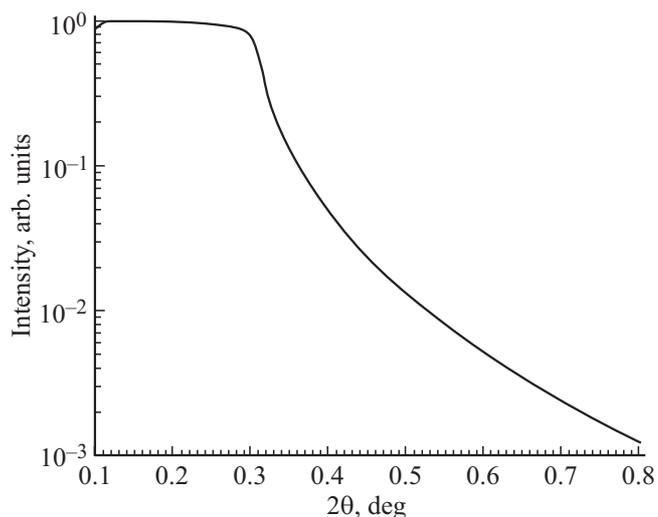


Рис. 2. Расчетная рефлектометрическая кривая лазерной структуры, представленной в табл. 1.

2. Методика и результаты эксперимента

При падении рентгеновского излучения на поверхность реальной (табл. 1) лазерной гетероструктуры под большими углами, для выполнения условия полного внешнего отражения, происходит полное его поглощение в верхних слоях гетероструктуры. В связи с этим отраженное от границ квантовой ямы рентгеновское излучение не регистрируется. Это приводит к отсутствию системы рефлектометрических пиков на кривой (рис. 2), поэтому необходимо использовать специально подготовленные образцы с тонкими верхними слоями.

Таблица 1. Строение классической лазерной гетероструктуры

Слой	Состав	Толщина, мкм
Контактный слой	GaAs	50
<i>p</i> -инжектор	$\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$	1.5
Волновод	$\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$	0.2
Квантовая яма	GaAs	0.013
Волновод	$\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$	0.2
<i>n</i> -инжектор	$\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{As}$	1.5
Подложка	GaAs	450

Таблица 2. Структура экспериментального образца, полученного методом MOCVD*

Слой	Состав	Толщина, мкм
Волновод	$\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$	0.054
Квантовая яма	GaAs	0.013
Волновод	$\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$	0.5
Подложка	GaAs	450

Примечание. * Состав и толщины определены методом рентгеновской дифрактометрии.

Для исследования градиентов состава в квантовой яме в настоящей работе на подложках *n*-GaAs выращивались специальные гетероструктуры, состоящие из волноводного слоя, квантовой ямы и тонкого покровного слоя (табл. 2). В таких структурах метод рентгеновской рефлектометрии применим в связи с возможностью достижения рентгеновского излучения нижней границы квантовой ямы. Точные данные по составу и толщинам определялись с помощью рентгеновской дифрактометрии (рис. 3).

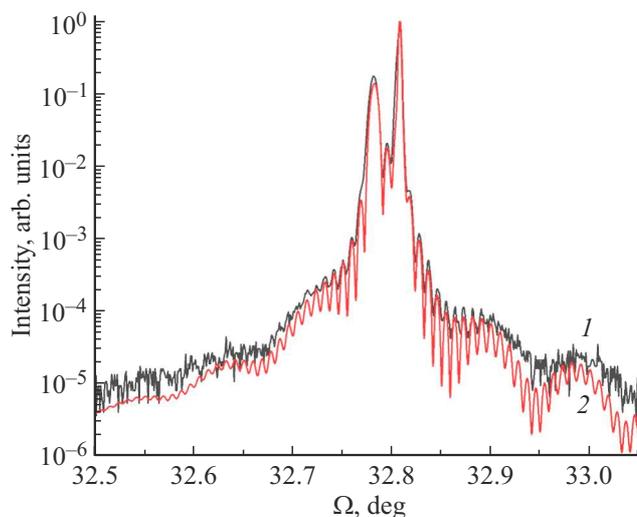


Рис. 3. Рентгеновская дифрактометрия экспериментального образца. 1 — экспериментальная кривая, 2 — расчетная кривая, подогнанная под эксперимент. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

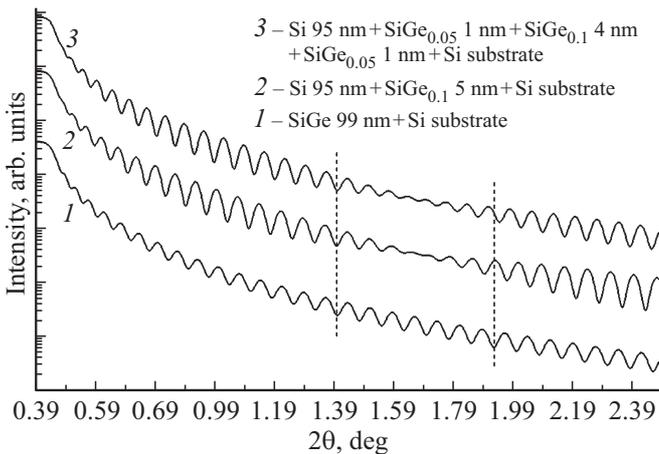


Рис. 4. Расчетные кривые для структуры на основе кремния [8].

В структуре, состоящей из тонкой квантовой ямы ($\approx 5\text{--}12\text{ нм}$) и покровного слоя поверх ямы ($\approx 50\text{--}100\text{ нм}$), должны наблюдаться три системы интерференционных картин, соответствующих отражениям от следующих границ:

- а) поверхность гетероструктуры — верхняя граница квантовой ямы;
- б) поверхность гетероструктуры — нижняя граница квантовой ямы;
- в) верхняя граница квантовой ямы — нижняя граница квантовой ямы.

Однако из-за малой толщины квантовой ямы система максимумов, соответствующая двум границам квантовой ямы в рассматриваемом диапазоне углов падения, не наблюдается, в связи с большим периодом.

На систему рефлектометрических максимумов, соответствующую отражениям от поверхности гетероструктуры и верхней границы квантовой ямы, накладывается отраженная в противофазе волна от границы раздела квантовой ямы и менее оптически плотного слоя гетероструктуры. Это приводит к уменьшению интенсивно-

сти интерференционных пиков на рефлектометрической кривой, что согласуется с данными работ [7,8].

На рис. 4 изображены расчетные рефлектометрические кривые для структуры, содержащей квантовую яму SiGe [8]. На кривой 2 до затухания от квантовой ямы толщиной 5 нм фаза рефлектометрических минимумов совпадала с фазой на кривой 1 от одиночного слоя SiGe (левая вертикальная штриховая линия на рис. 4). После затухания максимуму на кривой 2 примерно соответствует минимум на кривой 1. Появление неоднородностей на границах квантовой ямы приводит к дополнительному сдвигу фазы (кривая 3 на рис. 4). Этот эффект используется для выявления переходных слоев, возникающих в процессе роста гетероструктуры. Данным методом можно определять толщины слоев с точностью до 0.1 нм [8].

В настоящей работе экспериментальные измерения проводились с помощью рентгеновского дифрактометра Panalytical X'pert 3 MRD, принципиальная схема которого изображена на рис. 5. В качестве образца использовалась структура с квантовой ямой GaAs толщиной 13 нм, расположенной между двумя широкозонными слоями Al_{0.35}Ga_{0.65}As толщиной 50 нм и 1 мкм (табл. 1), выращенная на подложке n-GaAs методом MOCVD на установке AIX 2800G4-TM (IC2).

Для проведения измерений использовался детектор 1, перед которым расположены две параллельные пластинки германия, от которых падающее рентгеновское излучение трижды отражается, прежде чем попасть в детектор. Такая конфигурация приводит к отсеиванию диффузного рассеяния в области критического угла, но также и значительно уменьшает интенсивность сигнала. Поэтому параметры дифрактометра подбирались из максимизации отношения сигнал/шум. При снятии экспериментальных рефлектометрических кривых были заданы следующие параметры рентгеновской установки: время накопления сигнала — 0.6 с; ширина щели после монохроматора — 1 мм; ширина щели перед детектором — 0.5 мм. При этих значениях соотношение сигнал/шум составило $6.4 \cdot 10^4$.

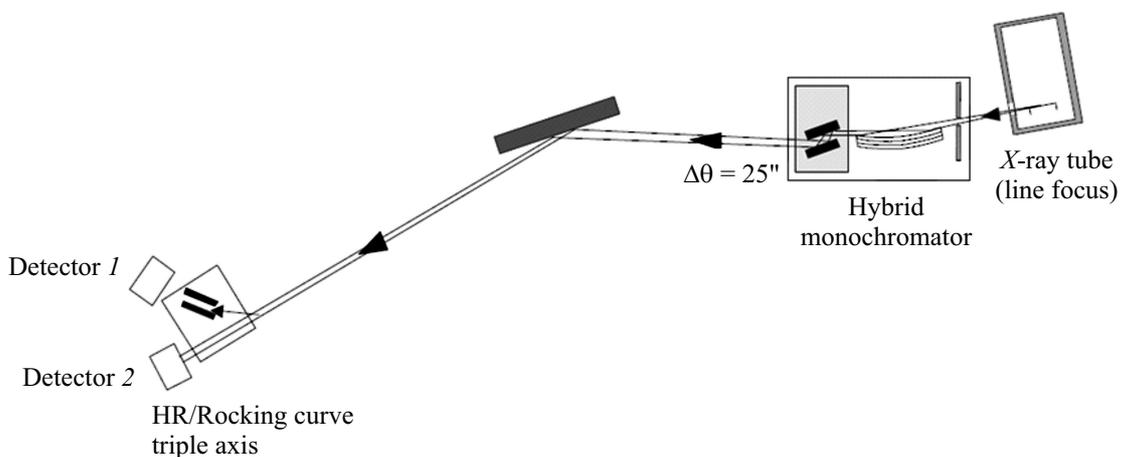


Рис. 5. Принципиальная схема установки.

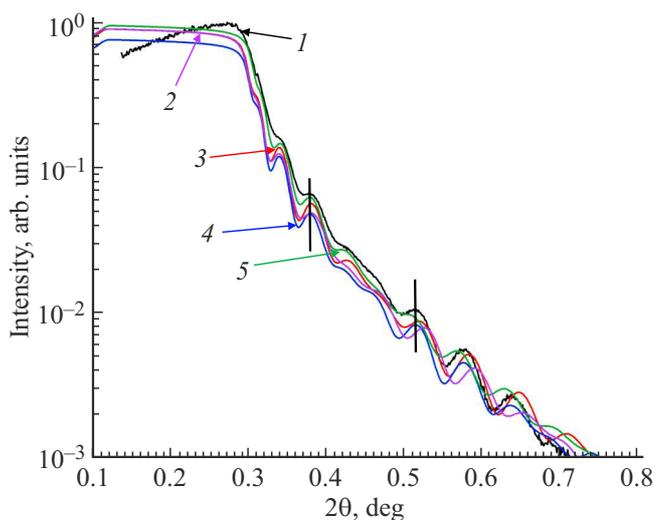


Рис. 6. Сопоставление экспериментальной рефлектометрической кривой с моделированными. 1 (черная кривая) — экспериментальная, 2 (лиловая) — моделированная без учета неоднородностей, 3 (красная) — моделированная с учетом наличия неоднородностей толщиной 1 нм, 4 (синяя) — моделированная с учетом наличия неоднородностей толщиной 1.2 нм, 5 (зеленая) — моделированная с учетом наличия неоднородностей толщиной 1.5 нм. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

Полученная экспериментальная рефлектометрическая кривая, а также результаты моделирования представлены на рис. 6. Наблюдаются три участка с разными амплитудами интерференционной картины. Положения максимумов всех пяти кривых совпадают от угла $2\theta = 0.31^\circ$ до диапазона углов, соответствующих отражению от нижней границы квантовой ямы. Однако после него наблюдается небольшой сдвиг у моделированной кривой без размытия, что однозначно говорит о наличии неоднородных слоев в квантовой яме. Подгонкой расчетной кривой под экспериментальную получают характеристики градиентов состава квантово-размерного слоя. Заметные изменения в результатах расчета с увеличением количества подгоночных слоев более 2-х не происходят. Поэтому в ходе подгонки расчетной кривой под экспериментальную были использованы две пары (всего 4) переходных слоев промежуточного состава. Таким образом, предполагалось, что неоднородность квантово-размерного слоя представляется в виде двух пар тонких слоев разного (промежуточного) состава. Для каждой из четырех расчетных кривых был вычислен критерий χ^2 . Для кривой 2 он составил $1.7 \cdot 10^{-3}$, для кривой 3 — $4.5 \cdot 10^{-4}$, для кривой 4 — $2.2 \cdot 10^{-6}$ и для кривой 5 — $4.9 \cdot 10^{-4}$. Таким образом, можно сделать вывод, что кривая 4 наиболее соответствует экспериментальной.

Итоговая конфигурация квантовой ямы (табл. 3) содержит два переходных слоя общей толщиной ~ 1.2 нм, расположенных, предположительно, на границах ямы толщиной 10.6 нм.

Таблица 3. Состав структуры. Толщины квантовой ямы и градиентов состава определены с помощью подгонки расчетных рефлектометрических кривых под экспериментальную

Слой	Состав	Толщина, мкм
Верхний слой	$\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$	0.054
Переходный слой	$\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$	0.0002
Переходный слой	$\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$	0.001
Квантовая яма	GaAs	0.0106
Переходный слой	$\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$	0.001
Переходный слой	$\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$	0.0002
Нижний слой	$\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$	0.5
Подложка	GaAs	450

3. Заключение

Методика определения толщин градиентных слоев на границах квантовых ям полупроводниковых квантово-размерных гетероструктур с помощью рентгеновской рефлектометрии применена для гетероструктур GaAlAs/GaAs. Предложенный способ определения характеристик переходных слоев может быть использован на этапе отработки технологии изготовления полупроводниковых гетероструктур, для задания оптимальных параметров и корректировки условий процесса роста. Методика позволяет контролировать, в пределах технологических возможностей установки роста, толщины и градиенты состава квантово-размерных слоев при изготовлении сложных многослойных квантово-размерных структур, в том числе сверхрешеток.

Методика применена на экспериментальных образцах GaAlAs/GaAs, полученных методом MOCVD на установке AIX 2800G4-TM (IC2). Определена толщина градиентных слоев на границе между $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ и квантовой ямой GaAs, которая составила 1.2 нм.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] L. Gottwaldt, K. Pierz, F.J. Ahlers, E.O. Gbel, S. Nau, T. Torunski, W. Stolz. *J. Appl. Phys.*, **94** (4), 2464 (2003).
- [2] I. Kojima, B. Li. *Rigaku J.*, **16** (2), 31 (1999).
- [3] K. Stoev, K. Sakurai. *Rigaku J.*, **14** (2), 22 (1997).
- [4] M.E. Vickers, M.J. Kappers, T.M. Smeeton, E.J. Thruch, J.S. Barnard, C.J. Humphreys. *J. Appl. Phys.*, **94** (3), 1565 (2003).
- [5] M.E. Vickers, J.L. Hollander, C. McAleese, M.J. Kappers, M.A. Moram, C.J. Humphreys. *J. Appl. Phys.*, **111** (4), 43502 (2012).
- [6] L.I. Goray, E.V. Pirogov, M.S. Sobolev, I. Ilkiv, A.S. Dashkov, Yu.A. Vainer, M.V. Svechnikov, P.A. Yunin, N. Chkhalo, A. Bouravlev. *Semiconductors*, **53** (14), 1910 (2019).
- [7] E. Spiller. *Rev. Phys.*, **23**, 1687 (1988).

[8] В.П. Мартовицкий. Автореф. докт. дис. (М., Физический ин-т им. П.Н. Лебедева РАН, 2012).

Редактор А.Н. Смирнов

Application of the X-ray Reflectometry method for determination of composition gradients at the quantum well boundary in laser structures based on the AlGaAs/GaAs system

A.V. Berezutskiy, G.T. Mikayelyan, S.D. Tariverdiev

LLC „Lassard“,
249032 Obrinsk, Russia

Abstract Devoted to the application of X-ray reflectometry to determine composition gradients at the boundaries of a quantum well in heterostructures based on AlGaAs/GaAs obtained by the MOCVD method. It is shown that the method is applicable at the stage of working out the active area. The parameters for recording reflectometric curves have been selected. The composition gradients in the experimental sample have been measured.