1999年6月

红外与毫米波学报 J. Infrared Millim. Waves

Vol. 18, No. 3 June, 1999

0471.4

# GaAs/Al<sub>\*</sub>Ga<sub>1-\*</sub>As 和 Al<sub>\*</sub>Ga<sub>1-\*</sub>As/AlAs 超晶格的喇曼散射对比研究 TN 30423

<u>张</u>旺 韩和相<sup>V</sup>陈 晔 李国华 汪兆平 (半导体超晶格国家重点实验室,中国科学院半导体研究所,北京,100083)

摘要 报道不同层厚的 AlAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 及 GaAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 短周期超晶格的纵光学声子模的室温喇曼散射测量结果·在非共振条件下,观察到 AlAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 中限制在 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 混 晶层中的类 GaAs LO 限制模和限制在 AlAs 层中的 AlAs LO 限制模,还观察到 GaAs/ Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 中限制在 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 混晶层中的类 AlAs LO 限制模和限制在 GaAs 层中的 GaAs LO 限制模、在近共振条件下,还观察到了 AlAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 中 AlAs 的界面模。根据线性链模 型,把溅量的 LO 限制模的频率按照  $q = \frac{m}{n+1} \left(\frac{2\pi}{a_n}\right)$  展开,给出了 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 混晶的类 AlAs 支 和类 GaAs 支光学声子色散曲线、

关键词 超晶格,纵光学声子模,喇曼散射.

研代家



### 引言

近几年来,半导体超晶格的喇曼散射问题吸引了广泛的关注,通过许多实验和理论上的 研究,已基本了解其晶格振动的特征.对于象 GaAs/AlAs 这样已有大量研究的超晶格结 构,由于 GaAs 和 AlAs 体材料的光学声子色散曲线分布在不同的能量范围,当它们构成 GaAs/AlAs 超晶格后,光学声子模不能在整个超晶格中传播,类 GaAs 和类 AlAs 光学声子 模被分别限制在 GaAs 和 AIAs 层中,是限制模<sup>[1,z]</sup>. 但是对于 GaAs/Al<sub>z</sub>Ga<sub>1-z</sub>As 和 AlAs/ Al\_Ga<sub>1--</sub>As 这样的混晶超晶格结构,光学声子的情况比较复杂,主要是因为 Al\_Ga<sub>1--</sub>As 混 晶的长波长光学声子谱呈现双模行为,分为类 GaAs 和类 AlAs 两支光学支<sup>[3]</sup>. 以 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-r</sub> As 为例,由于体 AlAs 和 Al<sub>2</sub>Ga1-2As 混晶中的类 GaAs 支的光学声子在能量分布范围上是 分开的,因此,当它们构成超晶格后,Al,Ga1-,As 中类 GaAs 支的光学声子就限制在该混晶 层中,是限制模。但是对于 Al-Ga1--As 中类 AlAs 支光学声子,由于其光学声子能量与体 AlAs 的光学声子能量在分布范围上是重叠的,构成超晶格后,该类 AlAs 支光学声子就会 出现可传播的非局域模.另外,超晶格结构的喇曼散射测量还可以提供一种确定晶体色散曲 线的新方法,并且提供了 AlAs 晶体的光学声子色散曲线的第一套实验数据<sup>[2,4]</sup>. Jusserand 等<sup>[5]</sup>指出,这一方法同样适用于确定具有双模行为的 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1--</sub>,As 混晶的类 GaAs 和 AlAs 支的光学声子色散曲线,我们曾用这方法首次给出了 AlgarGangeAs 混晶的类 AlAs LO 声 子色散曲线[6]、本文报道室温下,不同层厚的 AlAs/Al<sub>4</sub>Ga1-<sub>2</sub>As 及 GaAs/Al<sub>4</sub>Ga1-<sub>2</sub>As 超晶 格中 LO 声子的喇曼散射结果.

稿件收到日期1998-10-19,修改稿收到日期1998-12-09

#### 1 样品和实验

实验所用的 AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 及 GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 超晶格样品是由 VG-V80H 型 MBE 设备生长的.在(001)晶向的半绝缘 GaAs 衬底上先生长一层 GaAs 缓冲层,然后交替 生长 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层和 AlAs 或 GaAs 层, Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶组分的 x 值是用 X 射线双晶衍射 实验确定的.对短周期超晶格的层厚,习惯上用单层数 n 来表示,一个单层是 2.83 Å,超晶 格结构记为(AlAs)<sub>\*</sub>(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As)<sub>\*</sub>和(GaAs)<sub>\*</sub>(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As)<sub>\*</sub>,样品结构参数见表 1.

Table 1 The structure parameters of AlAs/Al<sub>\*</sub>Ga1-.As and GaAs/Al<sub>\*</sub>Ga1-.As superlattices samples 样晶序号 样品名称 (2,2) 组分工 周期数 GaAs 蓋层厚度 ł (AIAs)<sub>n</sub>(Al<sub>2</sub>Ga<sub>3-x</sub>As)<sub>\*</sub> (7,7)0.3 100 Å 70 (AIAs), (Al, Ga1-, As), 无 2 (5.5) 0.3 90 (GaAs), (ALGa1-, As), (6.6) 无 3 0.3 **R4** 

表 1 AlAs/Al.Ga<sub>1--</sub>As 及 GaAs/Al.Ga<sub>1--</sub>As 超晶格样品的结构参数 Table 1 The structure parameters of AlAs/Al.Ga<sub>1--</sub>As and GaAs/Al.Ga<sub>1--</sub>As superlattices sampl

> 喇曼散射光谱用 JY-T64000 型三光栅喇曼光谱仪测量,采用背散射测量配置,激发光 源用 SP-165-09 型氫离子激光器的 514.5nm 线,加在样品上的激光功率小于 30mW.激光 器的输出端加在配套的偏振旋转器,用来微调输出激光的偏振方向,使其在严格的 x'方向. 散射光收集透镜后加在半波片和检偏器.检偏器固定在 x'方向以保证单色仪在偏振谱和退 偏偏振谱中有同样高的效率,加或不加半波片以改变散射光的偏振方向分别在 y'或 x'方向.所有测量都是在室温下进行的.

#### 2 结果和讨论

图 1 和图 2 分别表示室温下氢离子激光器 514.5nm 线激发下 1 号和 2 号样品的喇曼 散射光谱图,图中虚线表示在 z(x'y')z散射配置下的喇曼光谱,即退偏偏振谱;实线表示在 z(x'x')z散射配置下的喇曼光谱,即偏振谱.其中  $x'//(100),y'/(010),z'//(001),AlAs/Al_{z}Ga_{1-x}As 及 GaAs/Al_{x}Ga_{1-x}As 超晶格均具有 D_{20}点群对称性,它们的纵光学声子限制模$ LO<sub>\*</sub>(*m*是限制模的阶数)分别具有 B<sub>2</sub>(*m*是奇数)和 A<sub>1</sub>(*m*是偶数)对称性.当我们取 <math>z(x'x')z这种散射配置,仅仅具有 A<sub>1</sub> 对称性的偶模是喇曼活性的,而在 z(x'y')z散射配置下,只 有 B<sub>2</sub> 对称性的奇模是喇曼活性的<sup>[23</sup>,结果列于表 2.

modes in AIAs/Al.Ga1As and GaAs/Al.Ga1As superinttices					
散射面	人射光偏振方向	散射光偏振方向	散射配置	喇曼機截面	喇曼活性模
(001)	[100]	[100]	2(x'x')z	a^2	
(001)	[100]	[100]	$z(x'y')\overline{z}$	₹ <sup>2</sup>	奇模

表 2 AlAs/Al.Ga1-\_As 及 GaAs/Al.Ga1-\_As 超晶格的 LO 限制模的明曼选择定则 Table 2 Raman selection rules for confined LO





图 3 (AlAs)<sub>6</sub>/(AlasGaarAs)<sub>6</sub> 超晶格的室温喇曼散射光谱 Fig. 3 The room-temperature Raman spectra of (AlAs)<sub>6</sub>/(Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As)<sub>6</sub> superlattices



图 2 (AlAs)<sub>6</sub>/(Al<sub>4</sub> <sub>3</sub>Ga<sub>6</sub> <sub>7</sub>As)<sub>5</sub> 超晶格的室温喇曼散射光谱 Fig. 2 The room-temperature Raman spectra of (AlAs)<sub>5</sub>/(Al<sub>4</sub> <sub>3</sub>Ga<sub>6</sub> <sub>7</sub>As)<sub>5</sub> superlattices

图 1 与图 2 的左半图是 GaAs LO 声子 的能量范围(240~300cm<sup>-1</sup>)的喇曼光谱.因 为对于 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层中的类 GaAs LO 模, 其声子色散曲线同 AlAs 的 LO 声子色散曲 线,在能量分布范围上是分开的,因此类 GaAs 的 LO 模是局域化在 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层 中的限制模,如图 1 与图 2 所示,我们在 z (x'x')z散射配置下观测到 1 号及 2 号样品 中 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层中的类 GaAs 的 LO 声子 基频模 LO<sub>1</sub>,其峰值位置略小于 x=0.3 的 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶体材料中的类 GaAs LO (Г)值(277cm<sup>-1</sup>),同时在 z(x'x')z散射配 置下观察到了类 GaAs 的 LO 声子偶模 LO<sub>2</sub>. 另外,我们看到图 1 和 2 中,在两种散 射配置下,于 261cm<sup>-1</sup>附近均出现一个弱的

宽峰,根据峰型、峰位及其偏振特征,我们把它指认为 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层中的类 GaAs 的 TO 声 子模,本来对于(100)晶向的闪锌矿结构的材料而言,在背散射配置下,LO 模是响曼活性 的,TO 模是喻曼禁戒的,这里弱的 TO 峰的出现,可能是界面粗糙、晶向的微小偏离或混晶 无序引起的动量选择定则驰豫的缘故。从图中还可以看到,在两种散射配置下,在类 GaAs 的 TO 声子模的低频一侧,在 245~250cm<sup>-1</sup>附近有一肩峰结构,Kawanwra 等<sup>[7]</sup>识别这一结 构为 Ga 原子在 AlAs 晶格中的声学局域模(AL),对它的识别还有待进一步研究,此外,在 退偏偏振谱中,在 291cm<sup>-1</sup>处的喇曼峰来自 GaAs 缓冲层或覆盖层的体 GaAs 的 LO 声子

\_\_\_

图1和2的右半图是 AlAs 的 LO 声子的能量范围(350~400cm<sup>-1</sup>),图 1 的右半图中的退偏偏振谱所示的 LO'1 是 Al<sub>2</sub>Ga1-2As 层中的类 AlAs LO 声子 的基频模,其峰值位置略小于 x=0.3 的 Al<sub>a</sub>Ga<sub>1-a</sub>As 混晶的 AlAs 的 LO(Γ)值 (381cm<sup>-1</sup>), 在喇曼頻移大于 LO'1 的能 量范围内,体 AlAs 的 LO 声子色散曲线 的能量范围与 Al-Ga1--- As 混晶中的类 AlAs 支不同,因此 AlAs 层中的 LO 模 LO<sub>1</sub>和 LO<sub>2</sub>是限制在 AlAs 层中的限制 模,另外可以看到,当喇曼频移小于LO<sub>t</sub> 的声子能量范围时,在360cm<sup>-1</sup>附近出现 一宽峰. 我们认为它来源于 AlAs 的 TO 声子模,理由与左半图中出现类 GaAs 的 TO 声子模一样,图 2 的右半图显示的 2 号样品在 AlAs LO 声子能量范围的喇曼 散射结果与图 1 所示 1 号样品相比有一 些新的特点,它不仅出现了 AlAs 的限制 模 LO<sub>1</sub> 及 AlAs 的 TO 声子模 (359cm<sup>-1</sup>),在 382cm<sup>-1</sup>处还有一个强的 宽峰,我们认为它是 AlAs 的界面模 IF, 而不是 AlAs 的 LO 声子限制模,这可以 从它的位置、强度、峰型看出: 首先它不 可能属于 Al<sub>z</sub>Ga<sub>1-z</sub> As 层中的类 AlAs 模,因为根据超晶格的量子限制效应,单



scattering vs 
$$q = \frac{m}{n+1} \left( \frac{2\pi}{a_0} \right)$$

(● the like LO (Γ) phonon modes of pure GaAs and AlAs and Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As mixed crystals measured by Raman scattering, ■·▲·▼ represent the Raman scattering data of samples 1.2,3.respectively)

层数小的样品量子限制效应强,故2号样品的类 AlAs 基频模应小于1号样品的类 AlAs 基 频模(378cm<sup>-1</sup>);其次它也不可能属于 AlAs 层中的高阶 LO 声子限制模,因为高阶 LO 声子 限制模的强度应小于低阶的限制模,而这里它的峰值强度明显大于 AlAs 的 LO, 模;而且从 峰型上看,一般限制模的半宽较小,而这里半宽却很大,本来按照黄昆等的分析表明<sup>[8,0]</sup>,在 严格背散射条件下,界面模与类体光学模不再能从频率上区分,因此不宜在背散射条件下研 究界面模. 然而由于杂质或界面缺陷引起的无序,具有不同波矢的声子的喇曼散射都是允许 的,因而在近共振散射条件下,界面模就可能以宽峰的结构出现,反映界面模的声子态密度 谱. 另外可以看到在图 1 和 2 所示的偏振谱中,由于信号太弱尚不能分辨其细致结构,对此 我们正在进一步研究.

图 3 给出了 3 号样品的偏振和退偏振条件下的室温喇曼散射光谱,其中虚线和实线所 表示的配置与图 1 和 2 相同,从右半图中退偏偏振谱可以看到,Al<sub>4</sub>Ga<sub>1-4</sub>As 层中的类 AlAs 的 LO<sub>1</sub> 模被观察到. 同时在 350~375cm<sup>-1</sup>范围内、有一个宽而弱的峰,同前,我们指认它为 泄漏的类 AlAs TO 模. 而在偏振谱中由于信号太弱,没有观察到类 AlAs 的 A<sub>1</sub> 偶模. 图 3 的左半图是 GaAs LO 声子能量范围(240~300cm<sup>-1</sup>)的喇曼散射光谱. 退偏偏振谱中的 LO<sub>1</sub> 是 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 层中的类 GaAs LO 声子的基频模,其峰值位置亦略小于 x=0.3 的 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶的类 GaAs LO( $\Gamma$ )值(277cm<sup>-1</sup>). 在喇曼频移大于 LO<sub>1</sub> 的能量范围内,体 GaAs 的 LO 声子色散曲线的能量范围与 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶中的类 GaAs 支不同,因此 GaAs 层中的 LO 模 LO<sub>1</sub> 和 LO<sub>2</sub> 是限制模. 同 AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 的情况一样,我们将这里出现的 一个小峰(266cm<sup>-1</sup>)指认为 GaAs 的 TO 声子模. 但是,在偏振谱中我们只观测到泄漏的 GaAs TO 模,没有观测到具有 A<sub>1</sub> 对称性的偶模. 这同 Jusserand 等<sup>[10]</sup>的观测结果是一致 的. 他们指出,如果考虑 GaAs 和 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 的电极化率分量 a<sub>xx</sub>近似相等,则具有 A<sub>1</sub> 对称 性的偶模的喇曼效率 R<sub>xx</sub>趋于零.

我们曾经指出,超晶格结构的喇曼散射测量可以提供一种确定晶体声子色散曲线的新 方法<sup>[2,4]</sup>,据此我们从线性链模型出发,假设光学声子限制模被严格地限制在相应的层内,则 光学声子限制模的频率对应于在波矢  $q = \frac{m}{n+1} \left( \frac{2\pi}{a_0} \right)$ 处相应体材料的光学声子频率<sup>[11,12]</sup>,这 里 *n* 是指超晶格的单层数,*m* 是指限制模的阶数.由此我们得到了具有双模行为的 Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-x</sub> As 混晶的类 GaAs 支和类 AlAs 支光学声子色散曲线.图 4 给出了结果.

3 结论

我们用喇曼散射方法研究了不同层厚的 GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 和 AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 短周 期超晶格的纵光学声子模.在室温和非共振条件下,我们观察到了 AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 中限 制在 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶层中的类 GaAs LO 限制模和限制在 AlAs 层中的 AlAs LO 限制模 以及 GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 中限制在 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶层中的类 AlAs LO 限制模和限制在 GaAs 层中的 GaAs LO 限制模.另外,在近共振条件下,我们还观察到了 AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 中 AlAs 的界面模.根据线性链模型,我们把测量的 LO 限制模的频率按照  $q = \frac{m}{n+1} \left( \frac{2\pi}{a_0} \right)$ 展 开,给出了 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 混晶的类 AlAs 支和类 GaAs 支光学声子色散曲线.

#### REFERENCES

- 1 Sood A K, Menendez J, Cardona M, et al. Resonance Raman scattering by confined LO and TO phonons in GaAs-AlAs superlattices, Phys. Rev. Lett. ,1985,54:2111
- 2 WANG Zhao-Ping, JIANG De-Sheng. confined longitudinal optical phonon modes in GaAs/AlAs short period superlattices, Chinese Journal of Semiconductors(汪兆平,江德生, GaAs/AlAs 短周期超晶格中 的纵光学声子限制模,半导体学报),1987,8:558
- 3 WANG Zhao-Ping, HAN He-Xiang, ZHAO Xue-Shu, et al. Long-wavelength optical phonon spectra of Ga1-zAlzAs and GaAs1-zPz mixed crystals. *Chinese Journal of Semiconductors*(汪兆平,韩和相,赵学 恕,等.Ga1-zAlzAs and GaAs1-zPz混晶的长波长光学声子谱,半导体学报),1985,6,634
- 4 WANG Zhao-Ping, HAN He-Xiang, LI Guo-Hua, et al. Confined TO phonon modes in GaAs/AlAs superlattices. Chinese Journal of Semiconductors(汪兆平,韩和相,李国华,等.GaAs/AlAs 超晶格中的 TO 声子限制模,半导体学报),1988.9:559

- 5 Jusserand B. Paquet D, Mollot F. Dispersive character of optical phonons in GaAl/As alloys from Raman scattering in superlattices, *Phys. Rev. Lett.*, 1989.63:2397
- 6 WANG Zhao-Ping, HAN He-Xiang, LI Guo-Hua. Longitudinal optical phonon modes in GaAs/ Al<sub>2</sub>Ga:<sub>-</sub>As superlattices, *Chinese Journal of Semiconductors*(汪兆平,韩和相,李国华, GaAs/Al<sub>2</sub>Ga:-As 超晶格中的纵光学声子模. **半导体学报**),1990,11:73
- 7 Kawamure H, Tsu R, Esaki L. Disorder-activated acoustic mode in Raman spectrum of Ga1. Al. As. Phys. Rev. Lett., 1972.29:1397
- 8 Huang K, Zhu D F, Tang H. Microscopic theory of optical phonon Raman scattering in quantum-well systems, *Phys. Rev. B*, 1990, **41**:5825
- 9 Huang K, Zhu B. F. Dielectric continuum model frohlich interaction in superlattices, Phys. Rev. B, 1988,38:13377
- 10 Jusserand B, Paquet D, Regreny A. "Folded" optical phonon in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1.x</sub>As superlattices. Phys. Rev. B, 1984.30:6245
- 11 Jusserand B, Paquet D. Resonance Raman scattering by confined LO and TO phonons in GaAs-AlAs superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 1986, 56, 1752
- 12 Sood A K, Menendez J, Cardona M. et al. Resonance Raman scattering by confined LO and TO phonons in GaAs-AlAs superlattices. Phys. Rev. Lett. ,1986.56:1753

## COMPARATIVE RAMAN SCATTERING STUDIES OF GaAs/Al<sub>\*</sub>Ga<sub>1-\*</sub>As and Al<sub>\*</sub>Ga<sub>1-\*</sub>As/AlAs SUPERLATTICES

ZHANG Wang HAN He-Xiang CHEN Ye LI Guo-Hua WANG Zhao-Ping (National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Benjing 100083, China)

Abstract The room-temperature Raman scattering studies of longitudinal optic phonons in AlAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-x</sub>As and GaAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-x</sub>As short-period superlattices with different layer thicknesses were reported. The AlAs LO modes confined in AlAs layers and GaAs-like LO modes confined in Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-x</sub>As layers were observed in AlAs/Al<sub>2</sub>Ga<sub>1-x</sub>As superlattices under off-resonance conditions. And the GaAs LO modes confined in GaAs layers and AlAs-like LO modes confined in Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As layers were observed in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As superlattices. In addition, the AlAs interface mode in AlAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As was also observed under near-resonance conditions. Based on the linear chain mode, the frequencies of confined LO modes measured by Raman scattering were unfolded according to  $q = \frac{m}{n+1} \left(\frac{2\pi}{a_0}\right)$ , by which the dispersion curves of AlAs-like and GaAs-like LO phonons in Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As mixed crystal were obtained.

Key words superlattices, LO modes, Raman scattering.

Received 1998-10-19, revised 1998-12-09