

研究快报

# GaAs/AlAs 超晶格中的纵光学声子模的近共振散射研究\*

汪兆平 韩和相 李国华 江德生

(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)

Klaus Ploog

(Max-Planck-Institute für Festkörperforschung, 7000 Stuttgart 80, Germany)

1990年11月12日收到, 12月19日定稿

在室温和背散射配置下, 测量了 GaAs/AlAs 超晶格的 Raman 散射光谱。样品用分子束外延方法生长在(001)晶向的半绝缘 GaAs 衬底上。激发光源用 Kr 离子激光器的 6471 Å 和 6764 Å 线。在近共振散射下, 由于弗洛里希作用的共振增强效应, 具有  $A_1$  对称性的 LO 偶模的散射强度远远强于具有  $B_1$  对称性的奇模。但偶模仅在偏振谱中观测到, 在退偏振谱中观测到的仍是奇模, 仍然和非共振散射下的情况一样, 有同样的偏振选择定则。此外, 二级散射谱也观测到了。

## 一、引言

对于 GaAs/AlAs 超晶格, 由于体 GaAs 和 AlAs 的光学声子色散曲线分布在不同的能量范围内, 光学声子模不能在整个超晶格中传播, 被分别限制在 GaAs 和 AlAs 层中, 是限制模。超晶格结构习惯上记为  $(\text{GaAs})_{n_1}(\text{AlAs})_{n_2}$ , 其中  $n_1$  和  $n_2$  分别是用单层数表示的 GaAs 和 AlAs 层的层厚, 一个单层厚相当于 2.83 Å。超晶格具有  $D_{2d}$  点群对称性, 分别有  $n_1$  个 GaAs 和  $n_2$  个 AlAs LO 限制模,  $\text{LO}_m$ , ( $m = 1, 2 \dots n_i$ , 是模的阶数,  $i = 1$  或 2) 它们分别属于  $B_2$  ( $m$  是奇数) 和  $A_1$  ( $m$  是偶数) 表象, 并分别在退偏振谱和偏振谱中是 Raman 活性的<sup>[1-3]</sup>。

对半导体超晶格声子谱的实验研究几乎都用 Raman 散射方法。共振 Raman 散射更是非常有效的实验手段。不仅可以研究声子谱, 利用共振增强效应得到比一般 Raman 散射更多的信息, 而且可以研究超晶格结构的电子结构和电声子相互作用<sup>[4-7]</sup>。选择适当的层厚, 使价带的轻重空穴带的分裂正好等于 LO 或 2LO 声子的能量, 可以实现双共振和三共振<sup>[8]</sup>。但共振散射需用染料激光器, 较为复杂和费时。为了方便, 利用 Kr 离子激

\* 国家自然科学基金资助项目。

光器的  $6471\text{\AA}$ ( $1.916\text{eV}$ ) 和  $6764\text{\AA}$ ( $1.833\text{eV}$ ) 线, 激光能量在  $\text{GaAs}/\text{AlAs}$  超晶格量子阱的势阱和势垒之间。由于超晶格中有多个子能带, 共振剖面又有一定带宽, 对大部分样品都可实现程度不同的近共振散射。Sood 等<sup>[4]</sup>利用  $6471\text{\AA}$  线, 在  $10\text{K}$  的温度下实现了近共振激发, 观测到在非共振散射下没有观察到的偶模。但是, 他们不仅在偏振谱中, 而且在退偏振谱中都只观测到具有  $A_1$  对称性的偶模, 后者不符合偏振选择定则, 他们用杂质诱发的弗洛里希作用来解释。后来, 他们又在三共振散射条件下, 再次得到同样的实验结果<sup>[8]</sup>。Gant 等<sup>[9]</sup>在共振散射下, 也得到同样的结果, 在偏振谱和退偏振谱中都只观测到偶模。他们也用同样的机理, 杂质诱发的弗洛里希作用来解释。

本文报道在室温和近共振散射条件下, 在  $\text{GaAs}/\text{AlAs}$  超晶格中 LO 限制模的测量结果。实验结果表明, 在偏振谱中我们观测到具有  $A_1$  对称性的偶模, 在退偏振谱中我们观测到的却是具有  $B_2$  对称性的奇模。因而, 在近共振散射下, 偏振选择定则没有变化, 仍然和非共振散射下一样。此外, 由于共振增强, 我们还观测到  $\text{GaAs}$  LO 限制模和界面模的倍频和组合模。

## 二、样品和实验

$\text{GaAs}/\text{AlAs}$  超晶格样品用分子束外延方法生长在(001)晶向的半绝缘  $\text{GaAs}$  衬底上。首先生长一层  $\text{GaAs}$  缓冲层, 然后交替生长  $150-200$  周期的  $\text{GaAs}$  和  $\text{AlAs}$  层。表面层是规定层厚的  $\text{GaAs}$  层, 未另外生长厚的  $\text{GaAs}$  盖层。层厚在生长期间由计算机自动控制。结构参数用双晶 X 射线衍射方法测量, 测量结果和设计样品时预期的参数值相当好地一致。本工作所用的两块  $(\text{GaAs})_{n_1}(\text{AlAs})_{n_2}$  超晶格样品的结构参数 ( $n_1, n_2$ ), 周期数分别是  $(10, 3)$ ,  $150$  周期和  $(6, 6)$ ,  $200$  周期。样品制备和双晶 X 射线衍射测量的详情参看文献[10]。

Raman 光谱用配有三光栅单色仪的 JY-T800 型激光 Raman 光谱仪测量。采用背散射配置, 包括测量偏振谱的  $z(xx)\bar{z}$  配置和测量退偏振谱用的  $z(xy)\bar{z}$  配置, 其中  $x/(100)$ ,  $y/(010)$ ,  $z/(001)$ 。激发光源用美国相干辐射公司的 I-100-K3 型 Kr 离子激光器的  $6471\text{\AA}$  和  $6764\text{\AA}$  线。输出激光经过前置单色器进一步抑制等离子线。加在样品上的激光功率约  $400-600\text{mW}$ 。采用柱面透镜聚焦, 以避免可能的样品加热效应。激光输出是竖直偏振光, 散射光收集透镜后加有偏振分析器, 可获得所需要的偏振配置。散射光分光后由冷却的 RCA C31034A 型光电倍增管接收, 经光子计数器用记录仪记录。实验曲线经过平滑处理。所有测量在室温下进行。

## 三、结果和讨论

图 1 给出  $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_3$  超晶格样品在  $z(xx)\bar{z}$  和  $z(xy)\bar{z}$  两种散射配置下在  $\text{GaAs}$  LO 声子能量范围内的 Raman 散射光谱。在非共振散射下, 奇模的散射强度远比偶模强<sup>[2-3]</sup>, 但在近共振散射下, 偶模的散射强度要比奇模强得多。奇模的散射强度在这块样品中甚至比非共振散射下还要弱。从图 1 可见, 在  $z(xx)\bar{z}$  偏振谱中观测到的是具

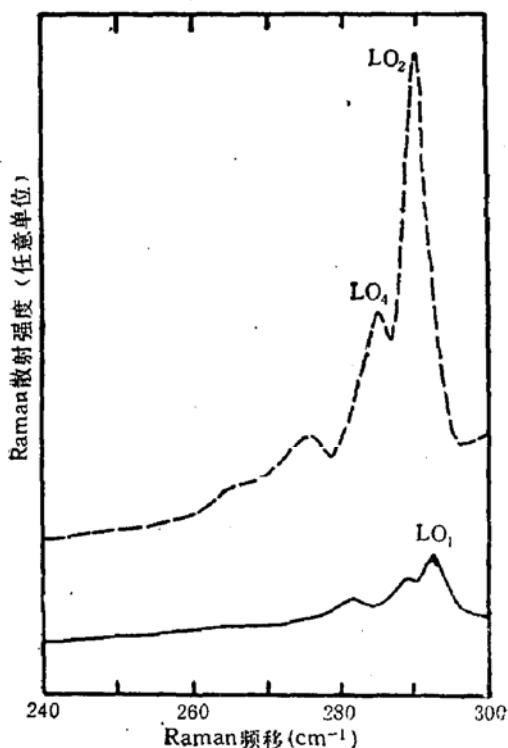


图1 在室温和6764 Å线激发下,  $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_6$  超晶格样品的 Raman 散射光谱  
—— $z(\text{xx})\bar{z}$ , —— $z(\text{xy})\bar{z}$  散射配置

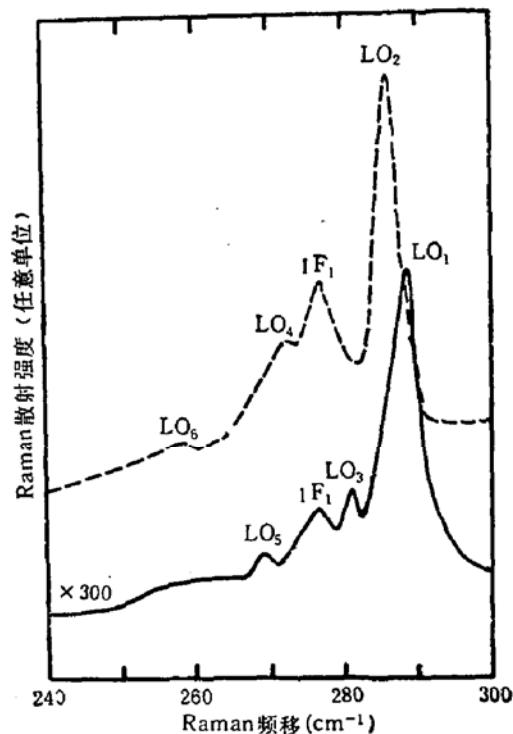


图2 在室温和6471 Å线激发下,  $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$  超晶格样品的 Raman 散射光谱  
—— $z(\text{xx})\bar{z}$ , —— $z(\text{xy})\bar{z}$  散射配置

有  $A_1$  对称性的偶模  $LO_2$ ,  $LO_4$  等, 与前人的实验结果<sup>[1, 8, 9]</sup>是相同的。但在  $z(\text{xy})\bar{z}$  退偏振谱中我们观测到的主峰位于  $291.3\text{cm}^{-1}$ , 与  $LO_1$  奇模的频率位置相符。并且与我们在偏振谱中观测到的  $LO_2$  偶模的频率  $289.7\text{cm}^{-1}$  相差近  $2\text{cm}^{-1}$ , 在我们的实验中能清楚地区分出来。尽管在  $z(\text{xy})\bar{z}$  退偏振谱中我们仅仅清楚地观测到  $LO_1$  基频模, 高阶奇模由于信号太弱不能清楚地分辨和指认。但在图2中给出的  $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$  超晶格样品的 Raman 散射光谱中, 3个 GaAs LO 奇模和3个 GaAs LO 偶模分别在退偏振谱和偏振谱中都清楚地观测到了。并且, 它们的频率位置以及偏振特性与我们以前在非共振散射下得到的实验结果<sup>[3]</sup>相当好地一致。因而, 我们的实验结果清楚地表明, 在近共振散射条件下, 在偏振谱中, 具有  $A_1$  对称性的 GaAs LO 偶模是 Raman 活性的, 而在退偏振谱中, 具有  $B_2$  对称性的 GaAs LO 奇模是 Raman 活性的。在近共振散射下, 偏振选择定则仍和非共振散射下一样。

最近, 黄昆等<sup>[11, 12]</sup>发展了超晶格中光学声子 Raman 散射的系统的微观理论。他们考虑了以激子为中间态和以电子空穴对为中间态两种情况, 给出了各种光学声子和界面模的 Raman 散射效率的表达式和偏振选择定则。他们的理论分析结果清楚地表明, LO 奇模由形变势散射产生, 在  $z(\text{xy})\bar{z}$  退偏振谱下是 Raman 活性的, 而 LO 偶模由弗洛里希散射产生, 在  $z(\text{xx})\bar{z}$  偏振谱下是 Raman 活性的。我们的实验结果与上述理论分析是一致的。黄昆等的理论分析还清楚地指出, 尽管在 GaAs 体材料中, 弗洛里希散射是偶极禁戒的, 但在量子阱超晶格中却是允许的, 并且包含子带内和子带间散射两项。而对形变势散射, 子带内散射很弱, 子带间散射在 GaAs 轻重空穴带分裂大于 LO 声子能量时

当然不是有效的。因此，在共振散射下，LO 偶模显著地共振增强，奇模则相对变弱了，这正是我们和前人的实验结果所表明的情况。另一方面，用作 Raman 散射测量的 GaAs/AlAs 短周期超晶格样品都是用分子束外延方法生长的，都是未故意掺杂的，应该有很低的杂质浓度。即使个别样品由于生长系统的碳沾污等原因引入较多的杂质，而导致杂质诱发的弗洛里希作用，至少，在退偏振谱中，原来 Raman 活性的奇模不应该观测不到。

在图 2 中，在偏振谱和退偏振谱中，在  $277\text{cm}^{-1}$  处都有一个峰，按照前人的分析<sup>[13]</sup>，我们指认它为 GaAs 界面模 IF<sub>1</sub>。黄昆等的分析表明<sup>[12,14]</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，不适宜在背散射下研究界面模。在我们的实验中，或许由于使用大孔径的散射光收集透镜而偏离严格的背散射条件。因而，在近共振散射条件下，观测到界面模。

对于  $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$  样品，用  $6471\text{\AA}$  线激发，得到比较大的共振增强，以致于除一级谱外，还可以清楚地观测到二级 Raman 谱。在图 3 中，我们给出这个样品的一级和二级 Raman 偏振谱。从图 3 可见，声子谱明显地叠加在一个宽的发光峰上。发光峰的峰值能量是  $1.856\text{eV}$ ，它与用 Kronig-Penney 模型计算的以及室温光致发光谱测量到的  $E_{1\text{bb}}$  跃迁的能量<sup>[15]</sup>是相当接近的。图 3 中的插图是 GaAs LO 限制模和界面模的二级谱的展宽图。其中的 4 个峰我们分别指认为  $2\text{LO}_2(573.5\text{cm}^{-1})$ ， $\text{LO}_2 + \text{IF}_1(564\text{cm}^{-1})$ ， $\text{LO}_2 + \text{LO}_4(557.5\text{cm}^{-1})$  和  $\text{LO}_4 + \text{IF}_1(551.5\text{cm}^{-1})$ ，它们的频率值与相应的一级谱中的  $\text{LO}_2(286\text{cm}^{-1})$ ， $\text{LO}_4(272.5\text{cm}^{-1})$  和  $\text{IF}_1(277\text{cm}^{-1})$  的频率值的倍频与组合频是对应得相当好的。在低波数的峰和肩，我们分别指认为无序激活的横声学声子模 (DATA) 和纵声学声子

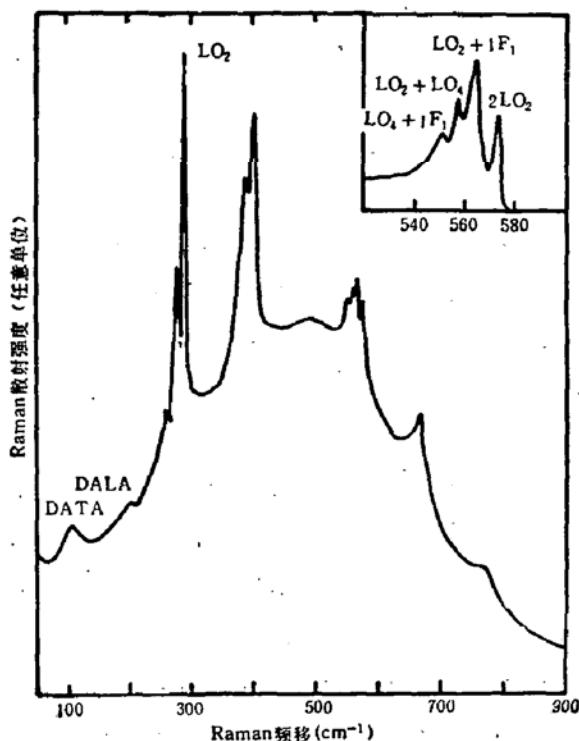


图 3 在室温和  $6471\text{\AA}$  线激发下， $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$  超晶格样品在  $z(x)xz$  散射配置下的一级和二级 Raman 散射光谱