

# GaAs/AlAs 超短周期超晶格中的 纵光学声子模\*

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)

1990年9月29日收到,12月12日修改定稿

在室温和非共振条件下,测量了超短周期(1—3个单层)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。实验结果表明,在这种超短周期超晶格中存在两种作用:一种是光学声子的限制效应,另一种是混晶化效应。对于单层超晶格,在各种散射配置下的Raman光谱都与 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 三元混晶的Raman光谱十分相似。而对于4个单层或者更厚的超晶格样品,混晶化效应基本可以忽略,仅仅表现为界面效应,光学声子的限制效应起主导作用。

## 一、引言

对于GaAs/AlAs超晶格的声子谱,在理论上和实验上已经进行了广泛的研究。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中,GaAs/AlAs超晶格中的光学声子是限制模,分别被局域在GaAs和AlAs层中。实验上几乎所有结果都是用Raman散射方法得到的,因此Raman散射是研究超晶格声子谱的非常有效的工具。详细的介绍可参看最近的评论性文章<sup>[1-4]</sup>。由于超短周期GaAs/AlAs超晶格的折迭效应可能产生新的直接光跃迁,这一前景是非常吸引人的。因此,不仅在样品生长技术方面,而且在光学性质的研究以及可能的应用前景的探索方面,GaAs/AlAs超短周期超晶格都是非常有兴趣的前沿课题。但是,由于超短周期超晶格在生长控制技术上的困难,至今研究不多。Nakayama等<sup>[5]</sup>研究了1—4个单层的GaAs/AlAs超晶格,发现局域化在GaAs和AlAs层中的LO基频模(即 $\text{LO}_1$ 模)随着层厚的减少而单调地降低,并解释为光学声子的限制效应。Ishibashi等<sup>[6]</sup>证实了上述结果,并进一步发现AlAs层的厚度对GaAs LO基频模的影响。对于单层GaAs的GaAs/AlAs超晶格,当AlAs从一个单层增加到5个单层时,GaAs基频模的频率逐渐降低,变化幅度达 $8\text{ cm}^{-1}$ 。Cardona等<sup>[7]</sup>在理论上和实验上详细研究了1—3个单层的GaAs/AlAs超晶格。他们发现,GaAs和AlAs LO限制模的频率依赖于激发光源的波长,并在一些样品中观测到由于

\* 国家自然科学基金资助项目。

形成 Al-Ga 对引起的局域化振动模。我们曾测量单层 GaAs/AlAs 超晶格的 Raman 光谱，注意到它们和  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  混晶的 Raman 光谱十分相似。对此我们用分子束外延法制备的样品中岛状(台阶)生长引入的混晶化效应来解释<sup>[8]</sup>。

本文报道 1—4 个单层的 GaAs/AlAs 超晶格的 Raman 散射测量结果。实验结果进一步证实了混晶化效应的存在。在超短周期超晶格中存在两种作用：光学声子的限制效应和混晶化效应。对于 4 个单层以上的样品，混晶化效应基本上可以忽略，主要是光学声子的限制效应在起作用。

## 二、样品和实验

GaAs/AlAs 超短周期超晶格样品用分子束外延法生长在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上。先生长 GaAs 缓冲层，再交替地生长 120—600 周期的 GaAs 和 AlAs 层。样品表面是 GaAs 层，没有特意生长厚的 GaAs 盖层。习惯上，对短周期超晶格的层厚用单层数  $n$  表示。对于 GaAs 和 AlAs 材料，一个单层 =  $a_0/2 = 2.83 \text{ \AA}$  ( $a_0$  是晶格常数)。超晶格结构记作  $(\text{GaAs})_{n_1}(\text{AlAs})_{n_2}$ 。层厚在生长期间由计算机自动控制并用 X 射线双晶衍射法测定。样品生长和层厚测量的详细情况参看文献[7, 9]。实验测量中所用样品的结构参数和部分测量结果列在表 1 中。

表 1 所用样品的结构参数和测量的基频模频率

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
$(n_1, n_2)$	(1,1)	(2,2)	(2,2)	(2,2)	(2,3)	(2,3)	(2,4)	(3,3)	(3,10)	(4,4)
周期数	600	500	500	200	200	180	150	120	150	218
GaAs LO <sub>1</sub> 模频率 ( $\text{cm}^{-1}$ )	273	280	279	275	274	273	274	283	282	287
AlAs LO <sub>1</sub> 模频率 ( $\text{cm}^{-1}$ )	386	393	393	391	397	395	398	397	400	398

Raman 光谱用 JY-T800 型激光 Raman 光谱仪记录，实验曲线经过平滑处理。激发光源用 SP165-09 型 Ar 离子激光器的 5145 Å 和 4880 Å 线。加在样品上的功率约 400 mW。采用柱面透镜聚焦，以避免可能引起的加热效应。激光器输出是竖直偏振的，在散射光收集透镜后面加有偏振分析器，以进行偏振测量。采用  $z(xx)\bar{z}$ ,  $z(xy)\bar{z}$ ,  $z(x'x')\bar{z}$  和  $z(x'y')\bar{z}$  四种散射配置测量，其中  $x/(1\bar{1}0)$ ,  $y/(1\bar{1}0)$ ,  $z/(001)$ ,  $x'/(100)$ ,  $y'/(010)$ 。所有测量都是在室温下进行的。

## 三、结果和讨论

图 1 描绘了  $(\text{GaAs})_1(\text{AlAs})_1$  单层超晶格样品在不同散射配置下的 Raman 光谱。为了比较，一块在同一分子束外延系统和类似条件下生长的  $\text{Al}_{0.52}\text{Ga}_{0.48}\text{As}$  混晶样品的

Raman 光谱也画在图 1 中。从图 1 可见, 在各种散射配置下二者的 Raman 光谱都十分相似。在  $z(xx)\bar{z}$  (图 1(a)) 和  $z(x'y')\bar{z}$  (图 1(b)) 散射配置下, 混晶样品在 273 和 387  $\text{cm}^{-1}$  处有两个峰。众所周知,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  混晶的长波长光学声子有类 GaAs 和类 AlAs 两支, 呈“双模”行为。这两个峰分别是  $x = 0.52$  的混晶的类 GaAs 和类 AlAs LO ( $\Gamma$ ) 模<sup>[10]</sup>。在 292  $\text{cm}^{-1}$  处的弱峰, 我们指派为来自 GaAs 衬底的 LO( $\Gamma$ ) 峰。在  $(\text{GaAs})_1(\text{AlAs})_1$  超晶格的相应曲线中这个峰更强。这是因为超晶格结构的总厚度更小, 来自 GaAs 缓冲层和衬底的峰因而就更强。在  $z(xy)\bar{z}$  散射配置下, LO( $\Gamma$ ) 体模和 LO<sub>1</sub> 限制模都是 Raman 禁戒的, 混晶和单层超晶格的 Raman 散射曲线均无任何散射峰结构, 在图 1 中已略去。在  $z(x'x')\bar{z}$  散射配置下(图 1(b)), 仅在很高灵敏度下, 在 GaAs 和 AlAs 光学声子范围内观测到两个宽而弱的峰。这很可能是由于混晶无序和使用大孔径散射光收集透镜而偏离严格背散射所引起的 GaAs 和 AlAs 光学声子的泄漏。由于混晶中 Al 和 Ga 原子的无规分布, 用分子束外延法生长材料不是均匀地一层层平面生长而是台阶式生长, 以及由于生长时一定的衬底温度引起的 Al 和 Ga 原子互混等原因, 在单层超晶格和  $x = 0.5$  的混晶两种结构中, 有十分相似的 Raman 光谱就不奇怪了。

图 2 是  $n_1 = n_2 = 2, 3$  和 4 的三个样品在  $z(x'y')\bar{z}$  和  $z(x'x')\bar{z}$  两种散射配置下的 Raman 光谱。图 2 中的曲线已和  $x = 0.5$  的混晶的 Raman 光谱有明显的差别, 已能看出光学声子的限制效应。除了基频 LO 模的频率随层厚的减少而降低外, 高阶限制模也出现了。特别是  $n_1 = n_2 = 4$  的样品, 局域在 GaAs 层和 AlAs 层中的 LO 限制模都比较清楚地观测到。另一方面, 混晶化效应仍然存在。这些模的频率都比按线性链模型计算的值低。分子束外延的台阶式生长方式和阳离子间的互混效应, 本来只应该存在于界面附近。一般估计, 即使在生长良好的超晶格结构中, 界面效应也只能控制在 1 个单层左右。这样薄的界面对厚层超晶格影响并不大。通常就减去一个单层作为实际层厚<sup>[11]</sup>。

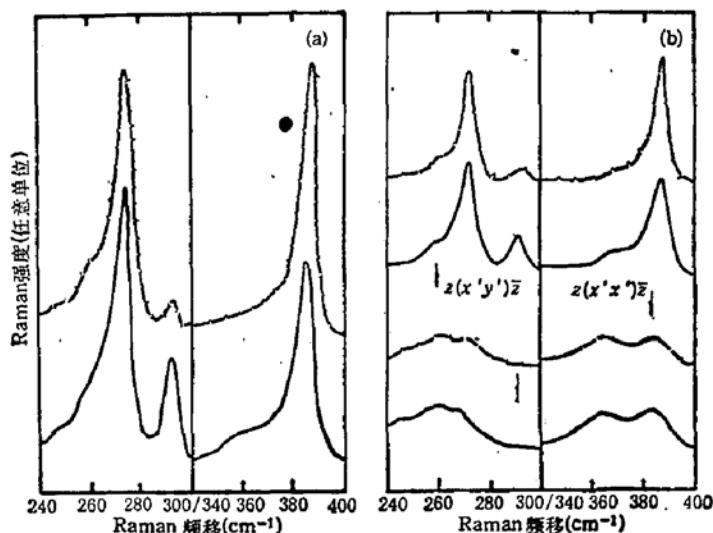


图 1 5145 Å 线激发下,  $(\text{GaAs})_1(\text{AlAs})_1$  超晶格(实线)和  $\text{Al}_{0.52}\text{Ga}_{0.48}\text{As}$  混晶(虚线)的室温 Raman 光谱 (a) 在  $z(xx)\bar{z}$  散射配置, (b) 在  $z(x'y')\bar{z}$  和  $z(x'x')\bar{z}$  散射配置

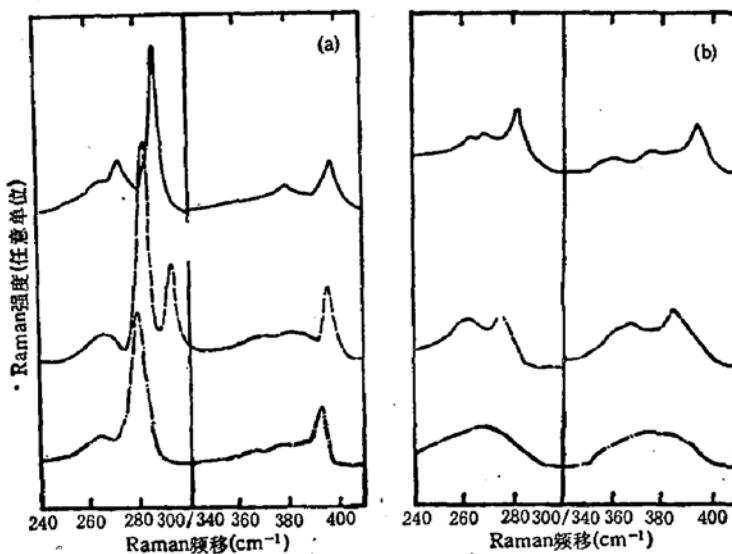


图 2 在  $4880 \text{ \AA}$  线激发下,  $(\text{GaAs})_{n_1}(\text{AlAs})_{n_2}$  超晶格的室温 Raman 散射光谱 (a) 在  $z(x'y')z$  散射配置, (b) 在  $z(x'x')z$  散射配置  
 $\text{—: } n_1 = n_2 = 4, \text{ ---: } n_1 = n_2 = 3, \text{ -.-: } n_1 = n_2 = 2$

但对于 1—3 个单层的超薄层超晶格, 1 个单层左右的界面几乎相当于整个层厚了。我们认为, 在这种情况下, 称为混晶化效应更为确切。这在下面图 4 中可以得到进一步的表明。按照线性链模型, 假设 LO 限制模是完全局域化的, 没有向邻层的渗透效应。超晶格中纵光学声子限制模  $\text{LO}_m$  的频率应相当于体材料 LO 声子色散曲线在波矢

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

处的频率值<sup>[12]</sup>。在图 3 中, 我们按上述公式标绘出 GaAs 的 LO 声子色散曲线。图 3 中的实线是从中子散射实验得到的 GaAs 在 10 K 下的 LO 声子色散曲线<sup>[13]</sup>, 锁线是我们从  $n_1 = n_2 = 6$  和 8 的 GaAs/AlAs 超晶格的室温 Raman 散射测量到的  $\text{LO}_m$  限制模的频率得到的 GaAs LO 声子色散曲线<sup>[14]</sup>。如果考虑到温度变化, 除了在大  $q$  值范围以外, 二者符合得相当好。图 3 中的虚线是我们从  $n_1 = n_2 = 4$  的超晶格样品的  $\text{LO}_m$  限制模频率得到的 GaAs LO 声子色散曲线, 它与厚层样品的结果基本一致, 只是略为偏低一点。但是, 从  $n_1, n_2 = 1—3$  的样品得到的  $\text{LO}_m$  限制模频率就显著地偏低, 并有较大的散布, 这是由于混晶化效应的影响。对于  $n_1, n_2 \geq 4$  的超晶格样品, 基本上是光学声子的限制效应在起作用, 混晶化效应的影响可以忽略不计, 仅仅表现为界面效应。这里应该指出, 在超短周期超晶格的情况下, 线性链模型本身就有局限性。而且, GaAs 限制模不是严格局域化的, 向 AlAs 层的渗透不再能忽略, 层厚测量的相对误差也增大。因此, 基于线性链模型的分析是相当粗略的。另一方面, 对于局域在 AlAs 层中的限制模, 这种超薄层超晶格中 LO 声子限制模频率降低的情况并不显著。这或许与 AlAs 模的局域化比 GaAs 模更强有关<sup>[15]</sup>。另外, 体 AlAs 的 LO 声子色散曲线在  $q = 0.5$  处的频率值, 即单层超晶格 AlAs LO 限制模的频率恰好与  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  混晶的类 AlAs LO 模的频率相等。

在图 4 中, 我们给出一系列  $n_1 = 2, n_2 = 2—4$  的超晶格样品在 GaAs 范围内的

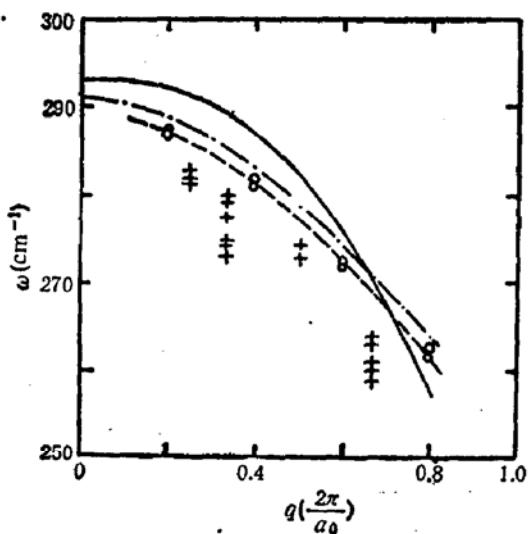


图3 从不同层厚的 GaAs/AlAs 超晶格的 LO 限制模的频率按照公式  $\omega = \frac{m}{n+1} \left( \frac{2\pi}{a_0} \right)$  展开得到的 GaAs LO 声子色散曲线

—: 从 10 K 的中子散射实验数据得到的 GaAs LO 声子色散曲线<sup>[13]</sup>, ---: 从较厚层 ( $n_1 = n_2 = 6$  和 8) 的超晶格样品得到 GaAs LO 声子色散曲线<sup>[14]</sup>, -·-·-: 从  $n_1 = n_2 = 4$  的超晶格样品得到的 GaAs LO 声子色散曲线, 本工作及参考<sup>[14]</sup>, +: 从  $n_1, n_2 = 1-3$  的超晶格样品的 GaAs LO 限制模频率得到的实验数据, 本工作

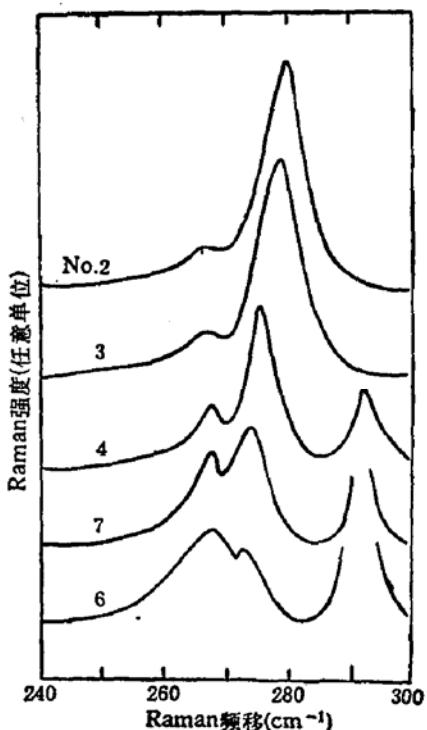


图4  $n_1 = 2, n_2 = 2-4$  的 5 个样品在 GaAs 范围内的 Raman 光谱激发光为 4880 Å, 在室温和  $z(x'x')\bar{z}$  散射配置下测量

Raman 光谱。激发光源用 Ar 离子激光器的 4880 Å 线, 用 5145 Å 线激发也得到了类似的结果。从图 4 和表 1 可见, 尽管同样是  $n_1 = 2$  的 5 个样品, GaAs LO 基频模的频率却散布在 273—280 cm⁻¹ 的范围内, 相差达 7 cm⁻¹。在图 4 中, 最下面的一条曲线, 我们把在 268 cm⁻¹ 处的主峰归结为无序激活的 TO 模, 而把在 273 cm⁻¹ 处的小肩峰指认为 LO<sub>1</sub> 模。在  $z(x'x')\bar{z}$  散射配置下, 相应的 Raman 光谱中, 只有 268 cm⁻¹ 的一个主峰。因为在这种配置下, LO<sub>1</sub> 限制模是 Raman 禁戒的, 只剩下无序激活的 TO 模。这说明我们的上述指认是正确的。Nakayama 等<sup>[4]</sup>已经注意到, GaAs/AlAs 超晶格中无序激活的纵声学声子模 (DALA) 的相对强度随层厚减小而增强, 可以作为超晶格结构完美性的度量。我们注意到, 无序激活的 TO 模的相对强度可以给出一个更为方便和适当的度量标准。从图 4 可见, 即使对同样是  $n_1 = 2$  的几个样品, LO<sub>1</sub> 模的频率越低, 即越偏离理想值, 无序激活的 TO 模越强。Ishibashi 等<sup>[6]</sup>已经注意到, 不同 AlAs 层的厚度会影响 GaAs LO<sub>1</sub> 模的频率。同是单层 GaAs 的 LO<sub>1</sub> 模, AlAs 层越厚, GaAs 层 LO<sub>1</sub> 模的频率越低。但在我们的实验结果中, 同是 (2, 2) 结构的 3 块样品, 尽管有同样的 AlAs 层厚 (2 个单层), 局域化在 GaAs 层中的 LO<sub>1</sub> 模的频率分别是 280, 279 和 275 cm⁻¹, 相差达 5 cm⁻¹。并且, (2, 4) 结构样品的 LO<sub>1</sub> 模的频率在 274 cm⁻¹, 反而比 (2, 3) 结构样品的 273 cm⁻¹ 还高。因此我们认为, 尽管 AlAs 层的厚度会影响 GaAs LO<sub>1</sub> 模的频率, 但在当前超晶格样品的制备水平下, 更主要的因素是样品结构的完美性, 即混晶化程度。而无序激活的 TO 模的相对强度, 以及 LO 基频模的频率相对理想值的偏离大小可以作为

超晶格结构质量检验的一个较好的标准。

我们感谢西德马普协会固体研究所 Dr. K. Ploog 提供测试所用的样品。

### 参 考 文 献

- [1] B. Jusserand and M. Cardona, in «Light Scattering in Solids» ed. by M. Cardona and G. Güntherodt, (Springer-Verlag, Heidelberg, 1989), p. 49.
- [2] J. Sapriel and B. Djafari Rouhani, *Surf. Sci. Reports*, **10**, 189(1989).
- [3] J. Menendez, *J. Luminescence*, **44**, 285(1989).
- [4] M. Cardona, *Superlattices and Microstructures*, **5**, 27(1989).
- [5] M. Nakayama, K. Kobota, H. Kato, S. Chika and N. Sano, *Solid State Commun.*, **53**, 493(1985).
- [6] A. Ishibashi, M. Itabashi Y. Mori, K. Kaneko, S. Kawado and N. Watanabe, *Phys. Rev.*, **B33**, 2887(1986).
- [7] M. Cardona, T. Suemoto, N. E. Christensen, T. Isu and K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B36**, 5906(1987).
- [8] 汪兆平, 韩和相, 李国华, 红外研究, **7A**, 355(1988).
- [9] T. Isu, D. S. Jiang and K. Ploog, *Appl. Phys.*, **A43**, 75(1987).
- [10] 汪兆平, 韩和相, 赵学恕, 李国华, 徐相征, 半导体学报, **6**, 634(1985).
- [11] B. Jusserand, F. Alexandre, D. Paquet and G. Roux, *Appl. Phys. Lett.*, **47**, 301(1985); B. Jusserand, F. Mollot, J. M. Moison and G. Roux, *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 560(1990).
- [12] B. Jusserand and D. Paquet, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 1752 (1986).
- [13] E. Richter and D. Strauch, *Solid State Commun.*, **64**, 867(1987).
- [14] 汪兆平, 江德生, 半导体学报, **8**(1987)558.
- [15] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fisher, H. Morkoc and A. C. Gossard, *Phys. Rev.*, **B31**, 2080(1985).

## Longitudinal Optic Phonon Modes in Super Short Period GaAs/AlAs Superlattices

Wang Zhaoping, Han Hexiang, Li Guohua and Jiang Desheng

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Academia Sinica)

### Abstract

Room temperature Raman spectra of super short period GaAs/AlAs superlattices under offresonance conditions are reported. Samples were grown by MBE method on (001) oriented semi-insulating GaAs substrates. Our experimental results show that there are two effects: confinement effect of optical phonons and alloy effect. It is found that Raman spectra of one monolayer superlattice measured in various scattering configurations are very similar to those of Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As triple alloy. In the case of monolayer numbers  $\geq 4$ , however, confinement effect of the optical phonons is prominent, while the alloy effect is only shown as interface effect and can be neglected.