

研究快报

Ge/Si 超晶格喇曼谱研究

金 鹰 张树霖 秦国刚

(北京大学, 物理系, 北京, 100871)

盛 篓 周 铁 城

(复旦大学表面物理实验室, 上海, 200433)

• 1990年9月21日收到

我们用喇曼光散射的方法, 观察了应变层超晶格的折迭声学声子, 从而验证了材料的超晶格多层结构。将实验中观察到的频率和理论计算值进行比较表明, 所研究样品的标称值和喇曼实验是基本相符合的。根据光学限制模的频率移动, 估算了超晶格样品中 Ge 层和 Si 层的应变分布。

主题词 喇曼散射, 超晶格, 折迭声学声子, 限制光学声子

近来, 由于低温分子束外延 (MBE) 技术的发展, 使得由晶格失配达 4.2% 的 Ge、Si 材料制成高质量的应变层 Ge/Si 超晶格成为可能, 从而使 MBE 生长的 Ge/Si 应变层超晶格的研究得到了极大的关注和发展。喇曼散射作为表征这种新型半导体材料的一种有效手段也得到了广泛的应用^[1-4]。目前国内也已开始了这方面的研究^[5], 但迄今为止, 研究的对象还仅限于大约 $300-500\text{cm}^{-1}$ 范围内的光学声子。然而, 那些能量低于 200cm^{-1} 的折迭纵声学声子 (FLA) 对于超晶格的表征却具有更重要的意义, 因为它们不同于只限制于某一种材料或界面附近的光学声子, 是在整个超晶格中形成传播模。因此, 它对超晶格的周期及其均匀性极为敏感, 从而成为表征超晶格材料的一种重要方法。其次, 由于 $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ 合金材料的喇曼谱在超晶格光学声子频率范围内也存在相似的结构, 但是在超晶格的 FLA 频率范围内却不存在比较强的喇曼散射。因此, 喇曼散射中 FLA 的存在与否是判断材料是否形成超晶格结构的直接依据。本文将不仅报道 Ge/Si 应变层超晶格的光学声子, 而且将报道 FLA 的喇曼散射谱。

实验样品是由复旦大学表面物理实验室用 MBE 在 (001) 取向的 Si 衬底上生长的 Ge_m/Si_n 应变层超晶格 (m, n 是指 Ge 层和 Si 层中所包含的相应原子的单原子层层数)。样品的具体结构是 Si 衬底上先生长一定厚度的 $\text{Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}$ 合金缓冲层, 起到调节衬底晶格常数, 增加生长临界厚度的作用^[6]。在合金缓冲层上生长完超晶格后, 又在其上生长 200\AA 左右的 $\text{Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}$ 合金材料作为超晶格的保护层。超晶格的生长是由反射式高能电子衍射 (RHEED) 强度振荡的锁相外延来控制的。所研究样品的编号和结构参数的标称值列于表 1。为了对比, 我们还测量了只在 Si 衬底上生长 1000\AA 的 $\text{Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}$ 合金层而没有生长超晶格的样品的喇曼光谱。

喇曼光谱是在室温, $z(x', x')\bar{z}$ 近背反射的条件下 ($z = [001]$, $x' = [110]$) 测量的, 实验中所用谱仪为 Spex-1403 双单色仪(加有 1442U 第三单色仪)。激发光源为 Ar^+ 激光器的 4880\AA 谱线, 照射在样品的(001)面。探测系统为水冷光电倍增管。谱仪分辨率为 2cm^{-1} 。

表 1 样品结构参数标称值

样品编号	$T_{cap}(\text{\AA})$	N	m	n	$T_{buf}(\text{\AA})$
$R1$	200	20	4	6	1000
$R2$	200	30	4	8	1000
$R3$	210	45	2	8	1600
$R4$	200	200	4	6	400
$R5$	200	85	8	12	1000
$R6$	0	0	0	0	1000

T_{cap} 为 $\text{Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}$ 合金保护层的厚度, T_{buf} 为 $\text{Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}$ 合金缓冲层的厚度, m, n 为 Ge 层和 Si 层中单原子层层数, N 为超晶格的周期数。

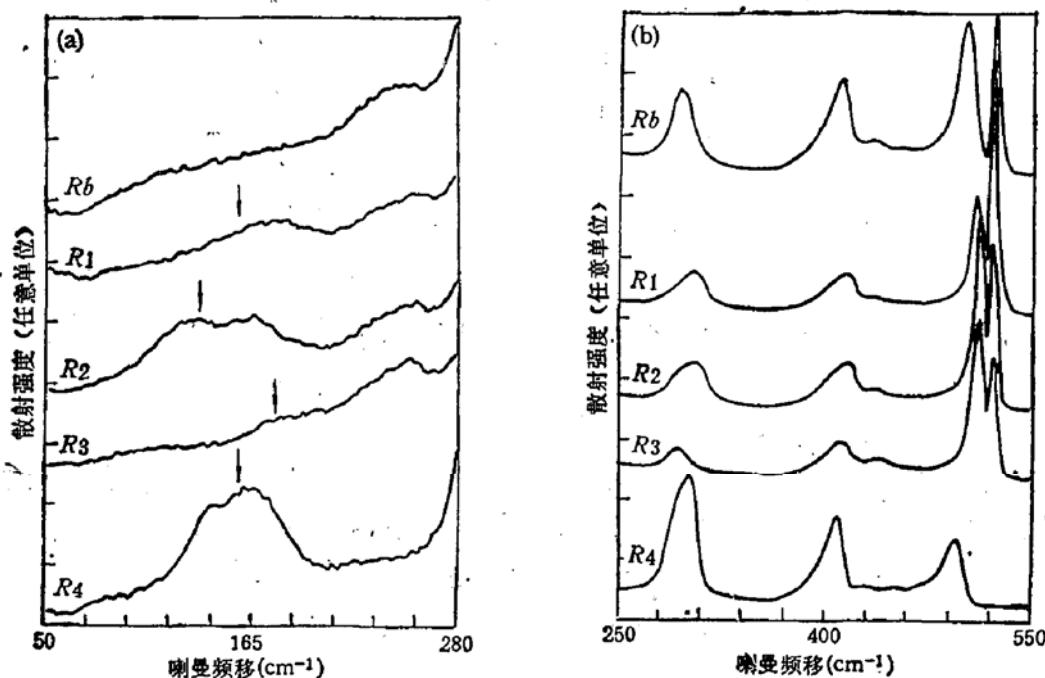
图 1 样品 Rb , $R1$, $R2$, $R3$ 和 $R4$ 在 $50-280\text{cm}^{-1}$ (a) 和 $250-550\text{cm}^{-1}$ (b) 频率区间内的喇曼光谱

图 1(a) 和 (b) 分别为合金参考样品 Rb 和超晶格样品 $R1$, $R2$, $R3$ 和 $R4$ 在声学声子频率范围内和光学声子频率范围内的喇曼光谱。图 1(a) 中超晶格样品在 $100-200\text{cm}^{-1}$ 的区域内都明显存在一个结构。根据下面三个依据, 我们认为这个结构来源于超晶格的 FLA。第一, 在图 1(a) Rb 样品的喇曼谱中观察不到类似的结构。这就排除了该结构来自 Si 衬底或合金缓冲层或合金保护层的可能性。第二, 所有超晶格样品在 200cm^{-1} 以下都存在这种结构, 而且该结构的中心位置随样品结构参数的变化而有所移动。利用表 1 中所给出的超晶格样品结构参数的标称值, 我们用 Rylov 弹性连续介质模型估算超晶格样品 ±1 级 FLA 的频率, 其中心位置用箭头标于图 1(a) 中。从图上

可以观察到,箭头所标的位置接近于该结构的中心位置。第三,为了进一步确认该结构,我们对样品 R3 在 800°C 和真空的条件下退火 30 分钟,然后再进行测量,结果用图 2 中的(b)来表示。图 2 中的(a)是 R3 样品退火前在相同的频率区域内的喇曼光谱。由图中可以发现,在 170cm^{-1} 附近的结构退火后只是强度有所减弱,而结构的中心位置没有明显移动。由于 FLA 的频率主要是由超晶格的周期决定,因此退火不能使它的频率发生明显移动,只能使它的强度减弱^[8]。根据上述三个方面的实验结果,我们认为在 200cm^{-1} 以下观察到的结构为超晶格的 FLA。这样就直接验证了这些样品的超晶格多层结构。同时根据实验中观察到的 FLA 峰位和理论计算值基本相符合的事实,提示了样品结构参数标称值与实际是基本相符合的。

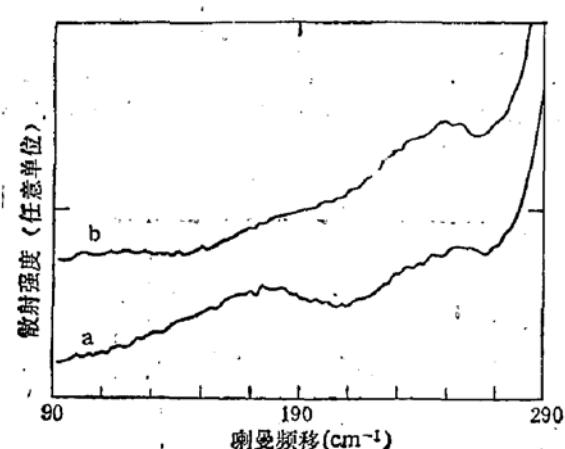


图 2 样品 R3 在退火前(a)和退火后(b)的喇曼光谱

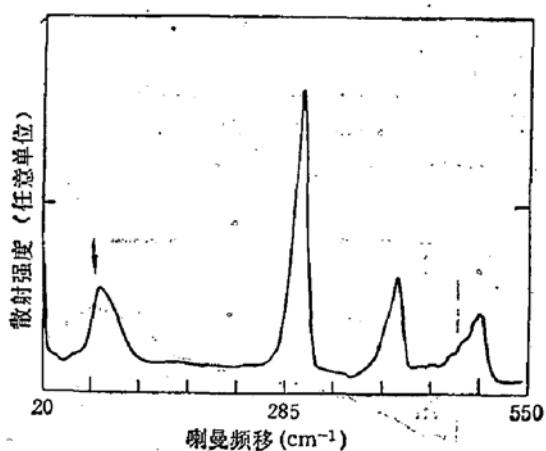


图 3 样品 R5 的喇曼光谱

我们还测量了一个周期比较长的超晶格样品 R5 的喇曼光谱(图 3)。该样品的喇曼光谱在低波数端的 FLA 结构是很明显的,而且该结构的峰位也和用 Rytov 模型计算的理论值(箭头所指位置)是大体一致的。

从图 1 中可以发现,在 R1, R2 和 R3 的喇曼光谱中在 245cm^{-1} 附近都存在一个宽结构,在 520cm^{-1} 处存在一个锐峰。根据这两个结构的位置,同时考虑到合金参考样品 Rb 中也同样存在这两个结构的事实,我们认为前者为合金缓冲层和合金保护层中 $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ 合金的横声学声子双声子散射和无序感应纵声学声子散射^[9],后者为 Si 衬底中的光学声子散射。出现这两个结构可能主要是由于激光穿透了超晶格层进入了缓冲层和衬底中,而合金保护层由于厚度比较小,对散射信号贡献不大。如果是这样,那么超晶格层总厚度增大时,穿透超晶格的激光越来越少,这两个结构应也越来越弱。样品 R4 的超晶格总厚度为 $0.28\mu\text{m}$,要比 R1, R2 和 R3 的厚,在它的喇曼谱中已观察不到上述两个结构,说明了上述分析的正确性。

在图 1(b)超晶格样品的喇曼光谱中 $300, 400$ 和 500cm^{-1} 附近的三个强峰分别为超晶格的 Ge 光学限制模, Ge-Si 振动模和 Si 光学限制模。由于 Ge-Si 振动模是由界面的无序化所感应的,它相对于 Ge 和 Si 的光学限制模的强度大小,定性地反映了超晶格界面的完整性。超晶格的 Ge 和 Si 光学限制模的频率相对于体材料相应喇曼峰的频率有移动,这种移动是由超晶格的限制效应和应力作用导致的,而且应力和限制对这些光学限

制模的作用是相互独立的^[3]。因此在已知超晶格结构参数的前提下，可以利用体材料 Si(Ge) 的光学声子色散关系，计算出限制效应对 Si(Ge) 光学限制模频率移动的贡献。将它们从观察到的 Si(Ge) 光学限制模的频移中扣除掉，剩余部分则为超晶格 Si(Ge) 层中的应变或应力的贡献，由此可以计算出超晶格层中的应力或应变分布^[10]。用这种方法，我们估算了超晶格样品 R3 中 Si 层和 Ge 层在垂直于生长方向平面内的横向晶格常数，它们分别为 5.46 Å 和 5.47 Å。估算出的超晶格 Si 层和 Ge 层中横向晶格常数基本一致，以及它们均大于体材料 Si 的晶格常数(5.43 Å)而小于 Ge_{0.4}Si_{0.6} 合金取相应单晶的几何平均所得到的晶格常数(5.52 Å)，说明了估算出的结果是合理的。

图 1 中超晶格样品的喇曼光谱中在 400—500 cm⁻¹ 之间都存在二个弱结构，在 500 cm⁻¹ 强峰的低波数端都存在一个肩膀。根据它们的峰位及在 Rb 中也存在这三个结构的事实，我们认为这些结构是由存在近邻 Ge 原子而导致的合金中 Si-Si 局域振动模形成的^[9]。

总之，喇曼散射谱中的 FLA，直接地反映了所研究材料的超晶格多层结构。通过将实验中观察到的 FLA 频率和理论计算值相比较，证实了所研究的超晶格样品结构参数的标称值和实际是基本相符合的。此外，根据光学限制模的频率移动，定量地估算出了超晶格样品 R3 中的应变分布。

参 考 文 献

- [1] E. Friess, H. Brugger, K. Eberl, G. Krotz, and G. Abstreiter, *Solid State Commun.*, **69**, 899 (1989).
- [2] M. I. Alonso, F. Cerdeira, D. Niles, M. Cardona, E. Kasper, and H. Kibbel, *J. Appl. Phys.*, **66**, 5645 (1989).
- [3] E. Friess, K. Eberl, U. Menczigar, and G. Abstreiter, *Solid State Commun.*, **73**, 203 (1990).
- [4] M. W. C. Dhama-Wardana, G. C. Aers, D. J. Lockwood, J. -M. Baribeau, *Phys. Rev. B*, **41**, 5319 (1990).
- [5] H. H. Sun, J. B. Wang, S. D. Zheng, C. Sheng, M. R. Yu, and X. Wang, in *Sino-Soviet Seminars on Spectroscopy and Optoelectronics in Semiconductors and Related Materials*, P4 (1990).
- [6] E. Kasper, H. Kibble, H. Jorke, *Phys. Rev. B*, **38**, 3599 (1988).
- [7] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fisher, H. Morkoc and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B*, **31**, 2080 (1985).
- [8] D. Levi, Shu-Lin Zhang, M. V. Klein, J. Klem and H. Morkoc, *Phys. Rev. B*, **36**, 8032 (1987).
- [9] M. I. Alonso and K. Winer, *Phys. Rev. B*, **39**, 10056 (1989).
- [10] B. Jusserand and M. Cardona, in: *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Heidelberg, 1989), P 127.

Raman Spectra Investigation on Ge/Si Superlattices

Jin Ying, Zhang Shulin, Qin Guogang
(*Physics Department, Peking University*)

Sheng Chi and Zhou Tiecheng
(*Laboratory of Surface Physics, Fudan University*)

Abstract

We have observed the folded longitudinal acoustical phonons (FLA) of Ge/Si superlattices. The existence of the FLA indicates that the samples studied are of the superlattice structure. By comparing the observed frequencies of FLA with the calculated ones, we come to the conclusion that the nominal values of the structure parameters for the samples used are approximately consistent with the actual ones. The distribution of the strain in sample R3 is estimated from the observed frequency shifts of confined optical phonons.

Key words Raman scattering, Superlattice, Folded longitudinal acoustical phonon, Confined optical phonon