

⑥ 187-191

In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs 四元混晶的喇曼散射*

¹⁾韩和相 ¹⁾汪兆平 ¹⁾李国华 ²⁾徐仕杰 ¹⁾丁 琨 ¹⁾刘南竹 ¹⁾朱作明

¹⁾中国科学院半导体研究所, 半导体超晶格国家重点实验室, 北京, 100083;

²⁾国立新加坡大学物理系, 新加坡, 119260

TN304.9
0472.3

摘要 报道了 MBE 生长的 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs 四元混晶中光学声子的喇曼散射实验结果. 光学声子模的频率与强度的组分关系表明 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs 四元混晶中有 3 种光学声子模, 即类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs 模. 喇曼光谱的偏振分析表明 3 种光学声子在退偏振条件下是喇曼活性的, 而在偏振条件下是喇曼非活性的. 由于混晶中的无序效应, 可观察到泄漏的 TO 模叠加在 LO 的低能侧使喇曼峰显现出非对称形状.

关键词 喇曼散射, 四元混晶, InGaAlAs.

砷镓铝砷 半导体 光学声子

引言

晶格匹配的 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 四元混晶半导体因其在光通讯用光电器件中潜在的应用前景, 近年来日益受到人们关注. In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 四元混晶材料中只有 As 是 V 族元素, 而其余 3 种 III 族元素的粘附系数几乎相等(≈1), 所以比较容易用 MBE 法生长. 如果把 In 的组分固定在 0.53, 把 Ga 和 Al 的组分之和 x+y 固定在 0.47, 就能够在 InP 衬底上生长出晶格匹配的 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 四元混晶外延层. 其能隙范围在 0.74~1.45eV, 恰好与光纤的最小损耗区和最小色散区重合. 所以晶格匹配的 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 一经问世就大有取代光通讯用 1.3μm 和 1.5μm 激光器主要材料——InGaAsP 四元混晶的趋势. 对 InGaAsP 喇曼散射的研究多有报道, 但对 InGaAlAs 喇曼散射的报道还很少. Olego 等^[1]在首次报道的 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 四元混晶的喇曼散射研究中观察到两组光学振动模, 并分别指认为类 InGaAs 和类 AlAs 振动模. 后来, Borroff 等^[2]和 Ramam 等^[3]先后观察到光学声子的三模特征, 并指认为类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs 纵光学声子模. 本文报道了 In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs/InP 的喇曼散射测量结果. 观察到类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs 3 种光学声子模. 类 GaAs 和类 AlAs 模的频率分别随 Ga 和 Al 的组分 x 和 y 值的增加而单调地增加, 其强度也随 x 和 y 值的增加而增强. 纵光学声子模喇曼散射的偏振分析实验指出: 3 种 LO 声子模在退偏振条件下是喇曼活性的, 而在偏振条件下是喇曼非活性的. 无序导致的被禁戒的 TO 模的泄漏使光学声子模的喇曼散射峰呈现非对称形状.

1 样品和实验

In_{1-x-y}Ga_xAl_yAs 四元混晶外延层是用 MBE 方法生长在(100)晶向 InP 衬底上的. 外延

* 国家自然科学基金(编号 69576030)资助项目
稿件收到日期 1997-11-10, 修改稿收到日期 1997-12-29

生长温度为 510°C , 外延层厚度为约 $1.5\mu\text{m}$. 通过控制恒定的 In 源束流, 使 In 组分值固定在 0.53 ± 0.01 , Ga 和 Al 的组分值之和 $x+y$ 控制在 0.47 ± 0.01 , x 和 y 值分别在 $0 \sim 0.47$ 范围内改变. 实验样品的具体材料参数列于表 1. 在室温和背散射几何配置下测量了 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶样品中光学声子喇曼散射的 $Z(X, X)\bar{Z}$ 偏振谱和 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振谱, 其中 $X \parallel (100)$, $Y \parallel (010)$, $Z \parallel (001)$. 激发光用 Spectra-Physics 165-09 型氩离子激光器和 Coherent Radiation I-100-K3 型氩离子激光器的红光、绿光、蓝光和紫光线, 这 4 种激发光都没有引起喇曼光谱中的共振现象. 聚焦在样品表面上的激发光功率约为 40mW . 喇曼散射信号经 Jobin-Yvon T64000 光谱仪分光之后用 2000×800 阵列的 CCD 探测器接收.

2 结果和讨论

图 1 给出了 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振条件下用氩离子激光器的 647.1nm 线激发的 6 块不同组分 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 样品的喇曼光谱, 其它谱图也是在类似的条件下测量的. 在 $200 \sim 400\text{cm}^{-1}$ 的能量范围内有 3 种光学声子模, 即图中的 A、B 和 C 峰. 它们分别位于 $200 \sim 400\text{cm}^{-1}$ 、 $250 \sim 300\text{cm}^{-1}$ 和 $330 \sim 400\text{cm}^{-1}$. Borroff 等^[2] 和 Ramam 等^[3] 也得到了类似的结果. B 和 C 模的频率分别随 Ga 的组分值 x 和 Al 组分值 y 的增加而单调地增加, 但从不同组分样品中得到 A 模的频率却基本上没有变化.

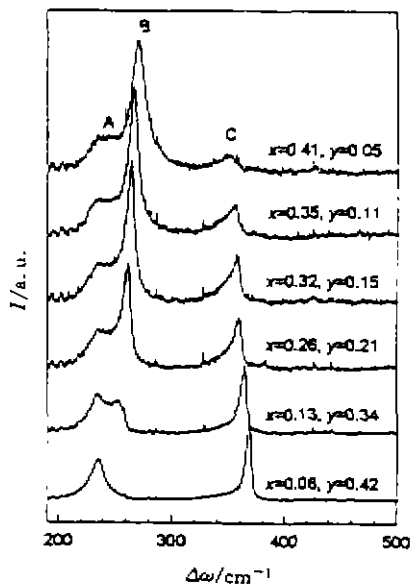


图 1 在 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振条件下不同组分 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 外延样品的喇曼光谱 (激发光是氩离子激光器 647.1nm 线)
Fig. 1 Raman spectra of $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ quaternary alloy samples with different composition values excited by the 647.1nm line of krypton ion laser and at $Z(X, Y)\bar{Z}$ configuration

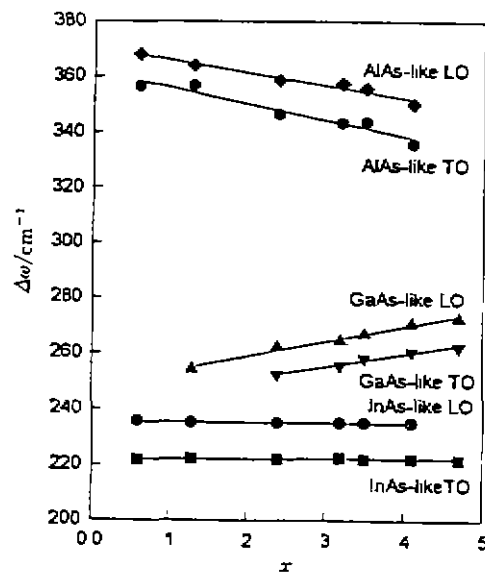


图 2 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 中 3 种光学声子模的频率的组分关系 (实线是用最小二乘法线性拟合各种模的实验数据而得)
Fig. 2 Composition dependence of three optical phonon modes in $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ quaternary alloys, the least square fit of the experimental data is represented by solid lines

图 2 给出了 3 种光学声子模频率的组分关系,图中的实线表示用最小二乘法线性拟合实验数据的结果.从图 2 可以看出,3 种光学声子模频率的组分关系均为近似的线性关系.我们知道,体 InAs、体 GaAs 和体 AlAs 材料的 LO(Γ)声子和 TO(Γ)声子模频率分别为 242cm^{-1} (LO_{InAs}) 和 220cm^{-1} (TO_{InAs}), 292cm^{-1} (TO_{GaAs}) 和 269cm^{-1} (TO_{GaAs}), 403cm^{-1} (LO_{AlAs}) 和 361cm^{-1} (TO_{AlAs}). 所以我们将图 1 中的 A, B 和 C 模分别指认为类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs 光学声子模.表 1 中列出了从不同样品得到的 3 种光学声子模的频率. $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶中晶格振动的三模特征还可从光学声子模强度的组分关系进一步得到验证^[4].因为在所有实验样品中,In 的组分值近似为 0.53,保持不变,因而可以假定类 InAs 模的强度并不依赖组分值 x 和 y .图 1 中的喇曼光谱已经对 InAs 模的强度归一化了,从图 1 的喇曼谱中可以看到,当 x 值小(y 值大)时,喇曼光谱中以类 InAs 和类 AlAs 模的散射峰为主,类 GaAs 模的峰很弱,而当 x 值大(y 值小)时,喇曼光谱中以类 InAs 和类 GaAs 模为主,类 AlAs 模很弱.类 GaAs 和类 AlAs 光学声子模的强度分别随 Ga 和 Al 组分 x 和 y 的增加而单调地增强.这种模的频率和模的强度的组分关系类似于具有双模行为的三元混晶特性,也证明了 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶晶格振动的三模行为特征.

图 3 给出了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.26}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ 样品中类 AlAs 光学声子模的喇曼光谱放大图,从图 3 可见,AlAs 模显示出明显的非对称形状,在类 AlAs LO 声子峰的低能一侧明显地叠加着其它的喇曼信号,这可能是由于混晶中的无序使得被禁戒的 TO 模泄漏的缘故.基于这种认识,按高斯线形把图 3 中的喇曼峰分解为用虚线表示的 2 个峰,即 LO 峰和 TO 峰.从图 4 可见,类 GaAs 和类 InAs 模也呈现类似的非对称性,同样是由于类 GaAs 和类 InAs TO 模

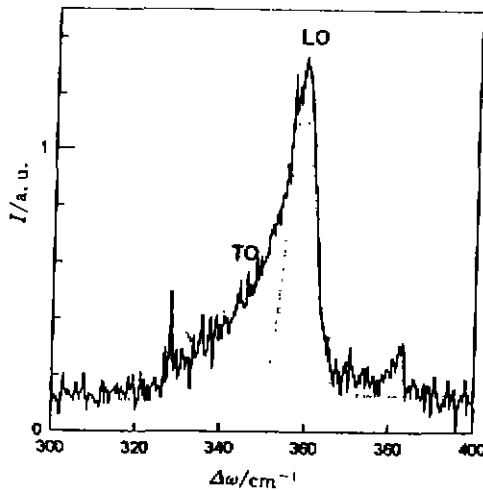


图 3 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.26}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ 样品中类 AlAs 光学声子模的喇曼光谱(虚线是高斯线形拟合分解的类 AlAs LO 模和 TO 模)

Fig. 3 Raman spectra of AlAs-like optical phonon modes in $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.26}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ (AlAs-like LO and TO modes are resolved by Gaussian line shape fit of the experimental spectra)

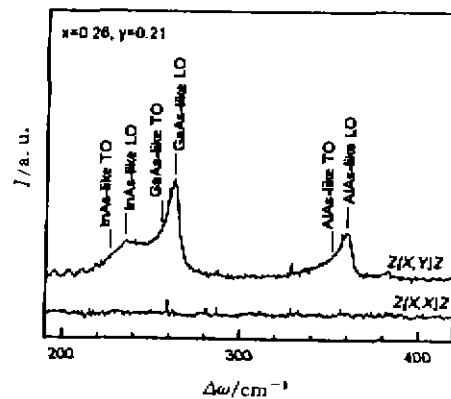


图 4 在 $Z(X,Y)\bar{Z}$ 和 $Z(X,X)\bar{Z}$ 两种偏振条件下 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.26}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ 样品喇曼光谱

Fig. 4 Raman spectra of $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.26}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ alloy at $Z(X,Y)\bar{Z}$ and $Z(X,X)\bar{Z}$ configurations

被无序激活的缘故,除了个别样品(如 x 或 y 值很小的样品,类 GaAs 或类 AlAs 模很弱,甚至于观察不到)外,所有样品的 3 种光学声子模都显示出这种非对称形状,从而可用同样的高斯线拟合的方法分解为 LO 和 TO 模.图 2 中也给出类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs TO 模频率的组分关系,和 LO 模一样,TO 模频率呈现出近似的线性组分关系.

图 4 给出了 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.25}\text{Al}_{0.21}\text{As}$ 样品在 $Z(X, X)\bar{Z}$ 偏振和 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振条件下得到的喇曼光谱.对闪锌矿结构的(100)晶面散射,LO 声子在 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振条件下是喇曼活性的,而在 $Z(X, X)\bar{Z}$ 偏振条件下是喇曼非活性的. Ramam 等^[3]在 InGaAlAs/InP 喇曼散射研究中观察到 $Z(X, X)\bar{Z}$ 散射配置下的 LO 声子喇曼散射强度基本上与 $Z(X, X+Y)\bar{Z}$ 散射配置下的相同,而在 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 散射配置下的 LO 声子喇曼散射强度却非常弱.我们的实验结果与 Ramam 等的结果不一致,如图 4 所示,我们在 $Z(X, Y)\bar{Z}$ 退偏振条件下观察到 InGaAlAs 混晶外延层中的 3 种光学声子模,而在 $Z(X, X)\bar{Z}$ 偏振条件下光学声子的喇曼散射峰都消失了,所有被测样品均显示出完全相同的偏振特性.类似的结果在 InGaP 三元混晶和 InGaAsP 四元混晶中也已观察到^[5].我们的结果证明, $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶尽管有 3 种 III 族元素随机地分布在阳离子格位,其喇曼散射的偏振选择定则仍和闪锌矿结构的 T_d 点群对称性一致,因而仍不失具有闪锌矿结构的二元纯晶的基本特征.

表 1 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶实验样品的组分值和光学声子模的频率值
Table 1 The Composition values and frequencies of optical phonon modes
in $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ quaternary alloys

样品	组分值			类 InAs 模		类 GaAs 模		类 AlAs 模	
	x	y	1-x-y	LO(cm^{-1})	TO(cm^{-1})	LO(cm^{-1})	TO(cm^{-1})	LO(cm^{-1})	TO(cm^{-1})
1	0.06	0.42	0.52	235.5	222			368.1	356.5
2	0.13	0.34	0.53	235.1	222.4	254.1		364.1	356.9
3	0.26	0.21	0.53	235.3	222.2	262.3	252.2	358.8	346.5
4	0.32	0.15	0.53	235.1	222.6	264.6	255.6	357.5	343.4
5	0.35	0.11	0.54	235.1	222.2	267.0	258.3	355.8	343.6
6	0.41	0.05	0.54	235.1	222.4	270.8	260.6	350.1	335.8
7	0.47	0.00	0.53	234.9	222.0	272.7	262.3		

3 结论

我们用喇曼散射方法研究了晶格匹配的 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶外延层的晶格振动特性,测到的光学声子模的频率与强度的组分关系表明 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶具有 3 种光学声子模,即类 InAs、类 GaAs 和类 AlAs 光学声子模.喇曼散射的偏振分析表明 $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ 四元混晶仍不失闪锌矿结构的晶体特征.

REFERENCES

- 1 Olego D, Chang T Y, Silberg E, et al. *Inst. Phys. Conf. Ser.*, 1982, **65**:195
- 2 Borroff R, Merlin R, Chin A, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**:1652
- 3 Ramam A, Chua S J. *J. Appl. Phys.*, 1996, **80**:7157
- 4 Barker Jr A S, Siever A J. *Rev. Mod. Phys.*, 1975, **47**:S1
- 5 Jusserand B, Slempek S. *Solid State Commun.*, 1984, **49**:95

RAMAN SCATTERING FROM $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}$ QUATERNARY ALLOYS*

HAN He-Xiang¹⁾ WANG Zhao-Ping¹⁾ LI Guo-Hua¹⁾ XU Shi-Jie²⁾
DING Kun¹⁾ LIU Nan-Zhu¹⁾ ZHU Zhuo-Ming¹⁾

¹⁾National Laboratory for superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China

²⁾Department of Physics, National University of Singapore, 119260 Singapore

Abstract Raman scattering studies were reported of $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ lattice matched quaternary alloys. The quaternary alloys were grown on (100) oriented InP substrates by MBE method. The composition and intensity dependence of optical phonon mode frequencies show that the quaternary alloys exhibit three-mode behavior, i. e. InAs-like, GaAs-like and AlAs-like modes. Polarization analysis of the Raman spectra shows that the LO phonon modes are Raman active in the depolarized configuration and Raman inactive in the polarized configuration. TO phonon modes were also observed due to disorder effects, resulting in the asymmetrical shapes of the Raman peaks of the optical phonons.

Key words Raman scattering, quaternary alloys, InGaAlAs.

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China
Received 1997-11-10, revised 1997-12-29