

用拉曼散射谱与远红外反射谱研究 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶的长波光学声子*

梁帮立^{1,2)} 蒋春萍³⁾ 夏冠群¹⁾ 范叔平²⁾ 褚君浩³⁾

¹⁾中国科学院上海冶金研究所, 国家固体元器件与系统实验室, 上海, 200050;

²⁾苏州大学物理系, 江苏, 苏州, 215006;

³⁾中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海, 200083;

摘要 报道了MBE外延生长的 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶的拉曼散射谱与远红外反射谱, 并从拉曼散射谱中观察到了 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶的晶格振动四模行为; 从实验中还观察到低于 $180cm^{-1}$ 的若干散射峰, 提出它们可能是与次近邻原子间相互作用的晶格振动模式有关; 从拉曼散射谱和红外反射谱中观察到了与 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶多声子吸收过程有关的现象。

关键词 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶, 拉曼散射谱, 红外反射谱。

INVESTIGATION OF LONG-WAVELENGTH OPTICAL-PHONONS IN $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ QUATERNARY MIXED CRYSTAL BY RAMAN SCATTERING SPECTROSCOPIES AND FIR REFLECTION SPECTRA *

LIANG Bang-Li^{1,2)} JIANG Chun-Ping³⁾ XIA Guan-Qun¹⁾

FAN Shu-Ping²⁾ CHU Jun-Hao³⁾

¹⁾National Laboratory of Solid Devices and Systems,

Shanghai Institute of Metallurgy, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China;

²⁾Academy of Physics and Technology, Suzhou University, Suzhou, Jiangsu 215006, China;

³⁾National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract The long wavelength optical phonons in $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ MBE epitaxial layers were investigated by Raman scattering spectroscopies and FIR-reflection spectra. The four-mode behavior and modes below $180cm^{-1}$ related with the interaction between the third-nearest atoms in $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ quaternary mixed crystals were observed from the Raman data, and the related phenomenon possibly arising from the multi-phonon absorption process was observed from the FIR and Raman data.

Key words $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$, quaternary mixed crystal, Raman scattering spectra, IR reflection spectra.

引言

$Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 外延材料是 $1.7-4.3\mu m$ 波段重要的光电子材料, $2-3\mu m Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 红外探测器、激光器等器件可在室温下工作^[1-4],在红外应用领域具有广阔的应用前景。

研究半导体材料的晶格振动是了解晶格振动对载流子的散射作用以及半导体输运性质的重要方面。D. H. Jaw 等^[5]报导了液相以外延生长的 $Ga_xIn_{1-x}As_ySb_{1-y}$ 四元混晶的拉曼散射结果观察到了三模行为。文献^[10,11]利用混晶元素等同位移模型(REIM)和改进的静止离子体模型(MRIM)预言

* 国家 863 高技术研究基金(编号 863-501-0152)资助项目
稿件收到日期 2000-05-24, 修改稿收到日期 2000-08-12

* The project supported by the National 863 High-Techonology Research Foundation of China(No. 863-501-0152).
Received 2000-05-24, revised 2000-08-12

四元混晶为四模体系,但长期以来实验中未观察到 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的四模行为。

本文报导了用激光拉曼散射谱与傅里叶变换红外反射谱研究的 MBE 外延生长 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的长光学波,从实验中观察到了 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的晶格振动四模行为,可能是与次次近邻原子间相互作用与晶格振动模式有关,可能起源于多声子吸收过程的较高频光学振动模式。

1 实验方法

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 样品是用国产 MBE-IV 型设备制备的 PIN 结构材料,先在 Te 掺杂 n 型 ($5 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$) $\text{GaSb}(100)$ 衬底上预生长 $1\mu\text{m}$ 的 Te-掺杂 n 型 ($5 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$) GaSb 缓冲层,再生长 $2\mu\text{m}$ Te-掺杂 n 型 ($5 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$) $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$, 然后生长 $2.6-3.75\mu\text{m}$ 非掺杂 P 型 ($5 \cdot 10^{16}\text{cm}^{-3}$) $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 有源层,最后生长 Zn-掺杂 P 型 ($1 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$) $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 接触层;生长速率为 $1\mu\text{m}/\text{h}$,衬底温度为 $445-470^\circ\text{C}$;样品 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 厚度 $d_1=d_2=5.8\mu\text{m}$, $d_3=5.1\mu\text{m}$, $d_4=6.25\mu\text{m}$, $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 厚度由基本吸收边以下反射谱的干涉条纹确定;组分(见表 2)由反射高能电子衍射(RHEED)测定,组分不均匀性小于 0.03。

拉曼背散射光谱测试是在室温下 Super LabRAM 显微拉曼光谱仪上进行的,激发波长为 632.8nm 氦氖激光器,输出功率为 10mW ,在样品上光斑直径约为 $1\mu\text{m}$,散射信号用 CCD 探测器记录,光谱分辨率为 $\pm 1\text{cm}^{-1}$ 。

反射测量用 Nicolet 200SXV FT-IR 光谱仪完成,用镀金的玻片作为反射率为 100% 的参考,测量的反射角为 15° ,探测器是测辐射热计或 TGS 探测器。

1 结果与讨论

图 1 为 MBE 生长的样品 1、2、3、4 的拉曼散射谱,其中 1、3 出现了 4 个明显的峰,2 出现了 3 个明显的峰,4 出现了 3 个明显的峰和 1 个展宽的峰,各散射峰对应的频率见表 2。样品 2、3、4 均在 500cm^{-1} 附近出现了弱的峰,图 2 为 4 个样品的红外反射谱,4 个样品分别在 451cm^{-1} 、 452cm^{-1} 、 490cm^{-1} 、 540cm^{-1} 位置出现了反射极小值。

根据文献[9-11]报导的结果,本文认为:散射峰 226cm^{-1} 与 GaSb TO 晶格振动有关;散射 183cm^{-1} 、 186cm^{-1} 与 InSb (LO+TO) 晶格振动有关;

表 1 二元系材料的晶格振动光学支频率

Table 1 The LO and TO modes of binary alloys

二元系	LO(cm^{-1})	TO(cm^{-1})	参考文献
GaAs	292	230	[9]
InAs	243	223	[9]
GaSb	237	227	[9]
InSb	193	180	[9]

表 2 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的拉曼散射结果

Table 2 The Raman scattering data of $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ quaternary mixed crystals

样品	组分		峰频移位置 (cm^{-1})	参考文献
	x, y	x, y		
1(MBE)	0.210	0.734	111 147 183 226	本文
2(MBE)	0.297	0.708	150 187 226 (260)	本文
3(MBE)	0.267	0.900	107 147 187 226	本文
4(MBE)	0.222	0.669	114 147 233 269	本文
5(LPE)	0.840	0.110	247 260	[9]

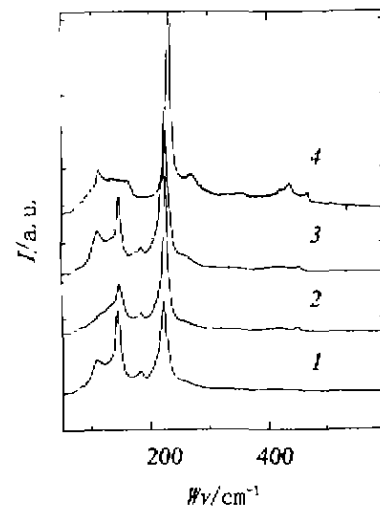


图 1 四个不同组分样品的 Raman 散射谱
Fig. 1 The Raman scattering spectra of four samples with different compositions

散射峰 269cm^{-1} 与 GaAs LO 晶格振动有关;散射峰 233cm^{-1} 与 GaAs TO 晶格振动有关。这表明我们从实验中观察到了 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的晶格振动四模行为。

低于 180cm^{-1} 的峰位 107cm^{-1} 、 110cm^{-1} 、 114cm^{-1} 、 147cm^{-1} 、 150cm^{-1} 、 167cm^{-1} 、 173cm^{-1} 是首次从实验上观察到的,从组成 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的四个二元系的各模(见表 2),可见它们不是二元系的 LO、TO 简单耦合。混晶元素等同位移模型(REIM)和改进的静止离子体模型(MRIM)对四元混晶长光学波的计算都只考虑了最近邻和次

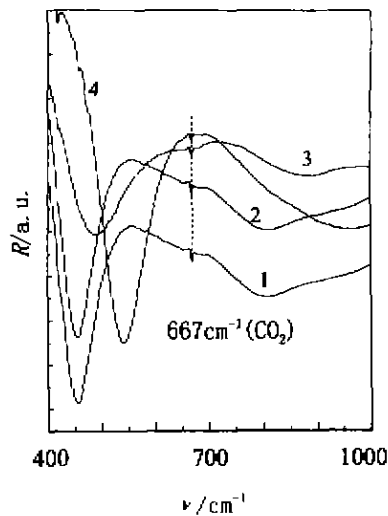


图2 四个不同组分样品的红外反射谱

Fig. 2 The infrared reflection spectra of four samples with different compositions

近邻原子间的相互作用,没有考虑较弱的相互作用,也没有预言到低于 180cm^{-1} 的晶格振动模式的存在;从图 1 可知,在不同组分的样品中同时观察到低于 180cm^{-1} 的诸散射峰,决非偶然现象,并且峰位随组分改变而发生移动,显然不是来自于杂质,而是与材料体系本身的晶格振动有关,因此,本文认为它们可能是与次次近邻原子间相互作用的晶格振动模式有关。

吸收峰 667cm^{-1} 是 CO_2 垂直 $\text{C}=\text{O}$ 键方向二重简并振动模式,是大气中 CO_2 所产生的假谱,它的位置不随样品组分改变而移动,不是材料体系固有的,可作为一个参考标准,与之相比,样品在 500cm^{-1} 附近的反射极小值位置随样品组分改变按 $\omega_p = 257.3 + 967.6x$ (x 为 Ga 组分) 移动,由于从拉曼散射谱中观察到了位于 $400-500\text{cm}^{-1}$ 附近的弱散射峰,根据文献[12],认为频率在 $400-600\text{cm}^{-1}$ 之间的出现的反射极小值与双声子吸收过程有关,有待进一步进行 KK 变换式拟合计算。

4 结语

本文报导了用激光拉曼散射谱与红外反射谱研究的 MBE 外延生长 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的长光学波,从拉曼散射谱中观察到了 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}$

$\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶的晶格振动四模行为;并从实验中观察到低于 180cm^{-1} 的散射峰,指出它们可能是与次次近邻原子间相互作用的晶格振动模式有关;从拉曼散射谱和红外反射谱中观察到了 $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ 四元混晶中与多声子吸收过程的现象。

REFERENCES

- [1] Tsang W T, Chio T H, Kisker D W, *et al.* Molecular beam epitaxial growth of $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_{1-y}\text{Sb}_y$ lattice matched to GaSb. *Appl. Phys. Lett.*, 1985, **46**: 283
- [2] Aidaraliev M, Zotova N V, Karandashov S A, *et al.* Midwave InAs SbP/InGaAsSb infrared diode laser as a source for gas sensors. *Infrared. Phys. Technol.*, 1996, **37**(1): 82
- [3] Gray A L, Newell T C, Lester L F, *et al.* High-resolution U-ray and transmission electron microscopic analysis of $\text{GaInAsSb}/\text{AlGaAsSb}$ multiple quantum well laser structure. *J. Appl. Phys.*, 1999, **85**(11): 7664
- [4] Charache G W, Baldasaro P F, Danielson L R, *et al.* InGaAsSb thermophoto voltaic diode: physics evaluation. *J. Appl. Phys.*, 1999, **85**(4): 2247
- [5] Garbuzov D Z, Martinelli R U, Menna R J, *et al.* 2.7 μm InGaAsSb/AlGaAsSb laser diodes with continuous-wave operation up to -39C . *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(10): 1316
- [6] Lee H, York P K, Martinelli R U, *et al.* 2.78 μm InGaAsSb/AlGaAsSb multiple quantum well lasers with metastable InGaAsSb well grown by molecular beam epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 1995, **150**(1-4) Pt. 2: 1354
- [7] Lee H, York P K, Menna R J, *et al.* Room-temperature 2.78 μm InGaAsSb/AlGaAsSb quantum well lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**(15): 1942
- [8] Charache G W, Egle J L, Depoy D M, *et al.* Infrared for thermophotovoltaic applications. *J. Electronic. Mater.*, 1998, **27**(9): 1038
- [9] Jaw D H, Stringfellow G B. Long wavelength lattice dynamics of $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}_y\text{Sb}_{1-y}$ quaternary alloys. *Appl. Phys.*, 1989, **66**(5): 1965
- [10] Jaw D H, Cherng Y T, Stringfellow G B, *et al.* Long wavelength lattice dynamics for quaternary alloys: GaInPSb and AlGaAsSb . *J. Appl. Phys.*, 1992, **72**(9): 4265
- [11] Gupta H C, Geeta Sood, Jaishree Malhotra, *et al.* Four-mode behavior in an $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{1-y}$ quaternary alloy. *J. Mater. Res.*, 1987, **2**(3): 382
- [12] Keeler W J, Keeler G A, Harrison D A, *et al.* Raman investigation of molecular beam epitaxy grown InGaAlAs epilayers lattice matched to InP for low Al concentrations. *J. Appl. Phys.*, 1999, **85**(1): 199