六方相 InGaN 外延膜的显微 Raman 散射*

王瑞敏†陈光德竹有章

(西安交通大学理学院,西安 710049) (2005年3月25日收到2005年6月27日收到修改稿)

用 X 射线衍射(XRD)技术和显微 Raman 散射方法对金属有机化学气相沉积(MOCVD)法生长的六方相 $In_x Ga_{1-x}$ N 薄膜样品进行了研究 观察到了相分离现象和 LO 声子-等离子耦合模(LPP⁺),讨论了 $In_x Ga_{1-x}$ N 的 A₁(LO)模被 屏蔽的主要物理机制.同时,对 Raman 谱中 E₂ 和 A₁(TO)声子模进行了分析和讨论.在 $In_x Ga_{1-x}$ N 样品的低温 Raman 谱中还观察到单电子跃迁产生的 Raman 散射信号.

关键词:Raman 散射,X 射线衍射,相分离,应力,LO 声子-等离子耦合 PACC:7830,3320R,7280E

1.引 言

以Ⅲ族氮化物材料为基础的蓝色发光二极管 (LED)和激光二极管不仅是目前全彩色显示所急需 发展的关键元件 而且是光通讯存储系统所需的光 源 具有广阔的应用前景¹¹.在大多数氮化物发光器 件中都利用 In_xGa_{1-x}N 作为激活层,因此近年来对 三元合金 In, Gai, , N 的基本性质的研究引起了很大 的关注^[2].由于 GaN 和 InN 的原子间距差别较大 使 In, Ga1_, N 材料具有较大的固溶隙和应变,从而产生 较为严重的相分离现象^[3].通常认为 相分离在 x >0.31 时就会发生^[4].但也有研究发现在 In 组分较低 的样品中也会出现相分离现象[56],最近又有报道指 出材料中应变的存在对相分离有抑制作用[7].另一 方面,到目前为止,对三元合金 In. Ga1__N 的晶格振 动特性的研究也只限于有限的组分范围,通过理论 和实验研究基本认为 A₁(LO)模是单模行为,而 E₂, A.(TO)模的性质还不能确定^[4].并且在对这些声子 模的研究中尚未考虑电子、等离子与声子之间相互 作用的影响.对 In, Gai, N 合金中 LO 声子-等离子 耦合模的研究报道是目前所期待的 ,因为材料中的 载流子浓度和迁移率对氮化物器件的开发很重 要^{8]}.总之 对 In_{a_1} N 材料中相分离现象和振动 模式的深入研究,将会对进一步了解 In_xGa_{1-x}N 的 光学性质及发光机理起到重要的作用,为氮化物器 件的开发提供有益的指导.

本文对金属有机化学气相沉积(MOCVD)法生 长的六方相 $In_x Ga_{1-x} N$ 薄膜样品进行了研究,在 X 射线衍射(XRD)谱中观察到 In 组分不均匀的现象 并对样品中存在的宏观和微观应力作了分析.在 Raman 光谱中观察到 LO 声子-等离子耦合模 (LPP⁺),根据 LPP⁺模的位置,对 $In_x Ga_{1-x} N$ 中的载 流子浓度进行了计算.同时对光谱中出现的 A_i (LO), E_2 和 A_i (TO)声子模的位置进行了分析讨 论.此外,还观察了78K 温度下 Raman 光谱的变化.

2.实验

实验所用的六方相 InGaN 薄膜样品利用 MOCVD 法在蓝宝石衬底(0001)面上生长,衬底和 InGaN 外延膜之间存在一层 GaN. InGaN/GaN 层总厚 度约 3µm. InGaN 层厚度大约 1µm 左右.

XRD 的测量采用 Philip 公司的四晶高分辨 X 射 线衍射仪(X Pert MRD),其发散角为 5"—15",入射 X 射线波长 $\lambda = 0.15406$ nm, $\Delta\lambda/\lambda = (2-5) \times 10^{-5}$ 光斑 大小约 10mm. Raman 光谱测量采用 Jobin-Yvon T64000 显微 Raman 光谱仪,背散射配置.室温下所用

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10474078)和陕西省自然科学基金(批准号:2004A01)资助的课题

[†] 通讯联系人. E-mail:wangrm@mail.xjtu.edu.cn

显微物镜放大倍率为 100 倍,低温下为 50 倍.激发光 分别为 Ar⁺ 激光器 488nm 和 532nm 的谱线,两谱线到 达样品的功率分别为 1.17mW 和 1.51mW.532nm 和 488nm 谱线激发下光谱分辨率为 0.5—0.6 cm⁻¹左右.

3. 结果与讨论

3.1. X 射线衍射

70

71

图 1 是 InGaN 薄膜 XRD 2*θ-ω* 扫描的结果 给出 了样品(0004)面的衍射峰.图中可观察到四个衍射 峰,通过曲线拟合得到四个峰的位置分别为 72.882°,72.611°,71.846°,71.265°.其中 72.882°的峰 为 GaN(0004)衍射峰,其余三个为 In_xGa_{1-x}N 的衍射 信号,根据六方结构晶格常数的计算公式^[9]





 $2\theta/(^{\circ})$

73

74

75

72

计算 ,可得 GaN 晶格常数 c = 0.5187nn(其中 λ 为 X 射线波长 , β 为布拉格衍射角). 该值大于 GaN 体材 料的晶格常数(c = 0.5187nm)¹⁰¹,说明样品中存在 压应变 ,应变张量 $\varepsilon_z = (c - c_0)/c_0 = 0.00039$. 再根 据 $\varepsilon_z = -(2C_{13}/C_{33}) \cdot \varepsilon_x$ 及面内双轴应力与应变的 关系

$$\sigma_{xx} = \left[\left(C_{11} + C_{12} \right) - 2 \frac{C_{13}^2}{C_{33}} \right] \varepsilon_{xx} \qquad (2)$$

可得 $\varepsilon_{xx} = -0.00072$,双轴压应力 $\sigma_{xx} = 0.35$ GPa.其 中取弹性常数 $C_{11} = 390$ GPa, $C_{12} = 145$ GPa, $C_{13} = 106$ GPa, $C_{33} = 398$ GPa^[11].压应力的存在主要是由于 衬底与 GaN 之间晶格失配及热膨胀系数不同引 起的. 假设 $In_x Ga_{1-x} N$ 的晶格常数从 GaN 到 InN 线性 地变化,根据 Vegard 定律可计算得到 72.611°, 71.846°,71.265°三个衍射峰所对应的合金组分 x 分 别为 0.03 ρ .13 ρ .19.可见在低 In 组分的样品中仍 存在相分离现象. $In_x Ga_{1-x} N$ 材料较大的固溶隙是导 致组分不均匀的主要原因.此外较大的薄膜厚度也 容易引起组分不均匀.Singh 等^{12]}曾报道减小薄膜 厚度有利于抑制相分离.

X 射线衍射不仅可以测量样品中的宏观残余应 力,还可以分析样品的微观应力.在 ω 2θ 扫描中回 摆曲线的半峰宽(FWHM)可以表示为^[13]

$$\delta\theta = \frac{\lambda}{2\theta D\cos\theta} + \varepsilon_{\rm in} \tan\theta , \qquad (3)$$

其中 θ 为布拉格衍射角 ,D 为晶粒尺寸 , ϵ_{in} 为薄膜 中的微观非均匀应变.测量得到 $In_xGa_{1-x}N(0002)$ 回 摆曲线的半峰宽 FWHM = 0.086°,表明样品中的非 均匀应变较小.

图 2 所示是在样品不同的三个点 *A*,*B*,*C*上测 量得到的(0002)回摆曲线.三个曲线的半峰宽基本 相同(分别为 0.086° 0.086° 0.087°),说明样品上三 点的结晶质量均匀.三个峰的位置分别为 17.23°, 17.29°和 17.36°.由于晶体中宏观应力及组分对衍 射峰位置有影响,所以三点的衍射峰位置不同可能 是由于宏观应力和 In 组分不均匀引起的.另外,在 图中可以看到 *A* 点衍射峰的强度明显小于*B* 点和*C* 点 表明 *A* 点处可能存在位错.当晶体中有微小应 力或点阵常数差时,回摆曲线的 *θ* 变化一个小角 度,强度会变化很大.位错线周围存在晶体点阵的微 观畸变,从而使衍射峰强度减小.



图 2 In_xGa_{1-x}N 薄膜(0002)衍射峰的 ω-2θ 回摆曲线

3.2. Raman 散射光谱

图 3 是在 $Z(X -)\overline{Z}$ 背散射配置下分别用 488nm和 532nm 光激发得到的 InGaN 薄膜的散射 谱 在图 3(a)中观察到最大峰值位于 143.1 cm⁻¹、 570.3cm⁻¹和 735.7cm⁻¹的三个峰,此外图中还可以 观察到位于 418 cm⁻¹附近的蓝宝石衬底的峰.其中 143.1 cm⁻¹和 570.3cm⁻¹的峰是由 InGaN 外延膜与 蓝宝石衬底之间的 GaN 层所产生的低频支和高频 支的 E₂ 声子模.与 GaN 体材料的 E₂(高频)模(568 cm⁻¹)¹⁴¹相比,我们得到的峰向高频方向移动了 2.3 cm⁻¹,说明样品中存在压应力.根据 E₂ 声子模频移 与面内双轴应力的经验公式 $\Delta \omega = 6.2\sigma_{xx}^{[15]}$ 计算,样 品中双轴压应力 $\sigma_{xx} = 0.37$ GPa,与 XRD 法测量得到 的结果基本一致.



图 3 Z(X –)Z 背散射配置下 InGaN 薄膜的 Raman 谱

目前理论计算^[16]和实验研究^[3,17]都表明 InGaN 的 A₁(LO)模具有单模行为,随着 In 组分 x 的增大, A₁(LO)的频率减小.文献 17 路出了 A₁(LO)模频率 随 In 组分 x 变化的关系 : $\omega_0(x) = (736 \pm 1) - (149 \pm 2)x$.根据上式估算 x = 0.03 时 In_xGa_{1-x} N 的 A₁(LO)的频率应在 731.5 cm⁻¹附近,我们测量得到 的频率(735.7cm⁻¹)向高频方向移动了 4cm⁻¹左右. 由于样品中存在着压应力,考虑应力的影响, A₁(LO)的频率可以表示为

$$\omega(x) = \omega_0(x) + K\sigma_{xx} \mathfrak{Q}$$

$$\omega(x) = \omega_0(x) + \frac{\Delta\omega}{\varepsilon}(x) \cdot \varepsilon(x), \qquad (4)$$

其中 K 为线性应力-频移率.根据 Demangeot 等¹⁸ 报 道的 GaN 的应力-频移率 $K = 0.8 \text{ cm}^{-1}$ GPa 估算 ,应 力引起的频率蓝移为 $\Delta \omega = 0.3 \text{ cm}^{-1}$. 由于不知道 $\Delta \omega(x) \in 5$ 与组分的关系,根据 Correia 等报道的 x =0.19的 In_xGa_{1-x}N 样品中的数据 Δω/ε_z = (16.9 ± 2.1) × 10^2 cm^{-1[19]} $B \Delta \omega / \varepsilon_{rr} = (-10.5 \pm 3.1) \times$ $10^2 \text{ cm}^{-1[17]}$ 来估算,应力引起的频移为 $\Delta \omega = 0.7$ — 0.8cm⁻¹.总之 样品中由于压应力引起的 A(LO)模 的频率蓝移小于 1 cm⁻¹,所以可以认为 735.7cm⁻¹ 的峰仍是由 GaN 层所产生的, 谱中未出现 InGaN 的 A.(LO)模.在 532nm 光激发下的情况相同,只是 E. 和 A.(LO)模向高频方向稍有移动 这是由于所选取 的测试点不同,各点应力不同引起的. Wagner 等^[205] 分别对 12nm 和 50nm 的 InGaN 样品进行了研究 ,发 现在非共振激发的情况下谱中只出现 GaN 层的散 射信号,认为主要是 InGaN 层厚度太小的原因,但我 们的样品厚度远大于 Wagner 等所用的样品,因此 InGaN的 A,(LO)模未出现不完全是厚度的原因造 成的



图 4 InGaN 及 GaN 薄膜的 A₁(LO)声子模.(1)488nm 光激发; (2)532nm 光激发(3)532nm 光激发

图 4 所示是在 488nm 和 532nm 光激发下 InGaN 样品 A₁(LO)模的放大的谱,为了比较,图中还给出 了用相同方法生长的六方相 GaN 薄膜的散射谱.谱 中都减去了蓝宝石衬底在 750cm⁻¹附近产生的散射 信号.在 InGaN 样品的谱中可以看到 750—800cm⁻¹ 之间存在着一个宽峰,图 4(a)中宽峰中心位于 778 cm⁻¹附近,该峰是 LO 声子-等离子相互作用产生的 耦合模(LPP⁺).根据 LPP⁺峰的位置计算得到样品 中自由载流子浓度在 10¹⁸ cm⁻³的数量级.由于此宽 峰只在 InGaN 样品的谱中观察到,一般 InGaN 样品 中自由载流子浓度在 10¹⁸ cm⁻³的数量级且随 In 组 分的增加而增大^[3],所以可以认为 778cm⁻¹的宽峰 是由 InGaN 层产生的. 图 4(b)中 LPP⁺ 峰与图 4(a) 相比明显向高频方向移动了,说明样品在该点处的 自由载流子浓度较大.样品中各点的自由载流子浓 度不同应该是 In 组分不均匀的结果,这与在 XRD 谱中观察到的相分离现象是吻合的.关于 LO 声子-等离子耦合模在 GaN 中已有大量研究报道^[21 22],而 在 InGaN 中很少见到这方面的报道,目前对 InGaN 的 A_i(LO)模的研究中,也只考虑了 In 组分和应力 的影响. 在 InGaN 中由于 LO 声子-等离子耦合, A₁(LO)模会被高频支(LPP⁺)和低频支(LPP⁻)的两 个耦合模取代,因此观察不到 InGaN 的 A₁(LO)散射 峰.谱中没有观察到低频支 LPP⁻模,这可能与等离 子的衰减有关.而在等离子衰减较大的情况下, A₁(LO)模不会被 LPP 模取代,声子-等离子相互作用 的结果会使 A₁(LO)模非对称性展宽,并向高频方向 移动^[23].因此,确定 A₁(LO)模频率时还应考虑 LO 声子-等离子相互作用的影响.

569 6



Н

图 5 X(Y-) X 配置下 InGaN 不同测试点的 Raman 谱

如图 5 采用 $X(Y -)\overline{X}$ 配置 ,在样品横截面上 选取 5 个不同的点进行了测试,其中 D = F = -F在 GaN 层中, G 点靠近 InGaN 与 GaN 的分界面, H 点选在表面的 InGaN 层中. 图中给出了 D, H 两点 的 Raman 谱 其他各点的最大峰值频率列入表1中. 在 X(Y-) x 配置下 E₂, A₁(TO)和 E_i(TO)模是选择 定则允许的模式,由于 E.(TO)与 E. 峰接近 图中只 清楚地观察到 E2 和 A1(TO)信号. GaN 层中 D, E, F 三点的 E₂ 模分别位于 570.5 cm⁻¹,570.4 cm⁻¹, 570.4 cm⁻¹,而 InGaN 层中的 E, 散射峰位于 569.6 cm^{-1} 与 GaN 层中相比向低频方向移动了 $0.8cm^{-1}$, E₂ 峰的红移是由于 In 的掺入引起的,随 In 组分增 加 E, 模会向低频方向移动. 但目前还不能确定 E, 模是单模还是双模行为^[4]. H 点与 D 点 A,(TO)模的 频率相比也向低频方向移动了 0.8cm⁻¹左右,与 E, 模有相似的性质.同时在 D 点的谱中 417.8 cm^{-1} 处 还出现了蓝宝石衬底的散射峰,这主要是由于实验 的收集孔径角较大,入射光和散射光与样品横截面

不完全垂直所至.

表1 样品不同点处 E2 和 A1(TO)模的频率

	D	Ε	F	G	Н
E_2/cm^{-1}	570.5	570.4	570.4	569.6	569.6
A_{l} (TO)/cm ⁻¹	533.3	533.3	533.2	532.9	532.4

H点的 Raman 谱与 D 点相比还有一个显著特 点是从 400 cm⁻¹(散射光波长 497.7 nm)以后存在一 个很强的荧光背底,根据发光谱可知该处对应着 InGaN 黄带发光的位置,说明在 488 nm 光激发下 InGaN 层的黄带发光明显强于 GaN 层.关于黄带的 产生机制目前还不明确,但一般认为 V_{Ga}及其复合 体是黄色荧光的主要来源,实验发现费米能级越接 近导带,V_{Ga}及其复合体的浓度越高^[24].

图 6 是在 78K 温度下,利用 532nm 光激发得到的 InGaN 样品的 Raman 谱.图 6 中曲线 *A*, *B* 表示在样品不同的两点上得到的两条谱线.与室温下的谱线相比,各声子模的线宽均减小并蓝移,这是声子散射的温度效应引起的.声子频率和线宽对温度的依



图 6 InGaN 薄膜的低温 Raman 谱(78K 532nm 光激发)

赖关系主要取决于声子振动哈密顿量中的非简谐 项,它是由于晶格热扩散和声子-声子相互作用而产 生的,随温度升高声子模的线宽会增宽并向低频方 向移动^[25].除此之外,在低频方向还出现了位于 227.1 cm⁻¹和 323.2 cm⁻¹的两个峰.其中 323.2 cm⁻¹ 的峰在很多掺杂的 GaN 中都观察到,一般认为是无 序化激发的散射模^{26]}.在室温下 320 cm⁻¹左右也可 以观察到一个很宽的散射带,在低温下峰形变窄.而 227.1 cm⁻¹的峰在 InGaN 样品中很少报道,虽然理 论计算 InN 的 B₁ 模位于 225 cm^{-1[27]},但此模是选择 定则禁戒的,而且我们没有观察到其他与 InN 有关 的散射峰,因此排除是InN产生的可能性.由于此峰 只在低温下出现,我们认为可能是与单电子跃迁有 关的散射模. Jiang 等^[28]曾报道在 10K 下 GaN 的 Raman 谱中观察到位于 218.4 cm⁻¹的电子散射信 号,并发现在 2.35eV(532nm)光激发下得到共振增 强,这与我们的结果相近.由于共振能量低于样品带 隙而接近黄带发光峰,因此认为此散射峰是从浅施 主到深受主的电子跃迁引起的.

4.结 论

在样品的 XRD 谱中观察到三个 InGaN 的衍射 峰 相应的 In 组分分别为 0.03,0.13,0.19,说明样 品存在相分离现象.对(0002)回摆曲线的观测发现 样品中存在位错缺陷.XRD 和 Raman 谱对应力的测 量结果一致,都显示样品中存在双轴压应力.

在 InGaN 样品的 Raman 谱中观察到 LO 声子-等 离子耦合模 LPP⁺),由此计算得到 InGaN 层中自由 载流子浓度在 10^{18} cm⁻³的数量级.LO 声子-等离子 相互作用是 InGaN 的 A₁(LO)模被屏蔽的主要原因, 应力对 InGaN 的 A₁(LO)模的影响较小.

在 $X(Y -)\overline{X}$ 配置下观察发现 InGaN 的 E_2 模频 率与 GaN 相比向低频方向移动了 0.8 cm⁻¹, A₁(TO) 模具有相似的性质.在 488 nm 光激发下 InGaN 层的 黄带背底明显强于 GaN 层.在 InGaN 样品的低温 Raman 谱中观察到位于 227.1 cm⁻¹的峰,认为是从 浅施主到深受主的电子跃迁引起的散射.

- [1] Xu B, Yu Q X, Wu Q H, Liao Y, Wang G Z, Fang R C 2004 Acta Phys. Sin. 53 204(in Chinese)[徐 波、余庆选、吴气虹、廖 源、王冠中、方容川 2004 物理学报 53 204]
- [2] Lin T Y 2003 Appl. Phys. Lett. 82 880
- [3] Alexson D ,Bergman L ,Nemanich R J ,Dutta M ,Stroscio M A ,Parker C A ,Bedair S M ,El-Masry N A , Adar F 2001 J. Appl. Phys. 89 798
- [4] Qian Z G Shen W Z Ogawa H Guo Q X 2003 Progress in Physics
 23 257 (in Chinese)[钱志刚、沈文忠、小川博司、郭其新 2003
 物理学进展 23 257]
- [5] Behr D , Wagner J , Ramakrishnan A , Obloh H , Bachem K H 1998 Appl. Phys. Lett. 73 241
- [6] Silveira E ,Tabata A ,Leite J R ,Trentin R ,Lemos V ,Frey T ,As D J , Schikora D ,Lischka K 1999 Appl. Phys. Lett. 75 3602
- [7] Tabata A ,Teles L K Scolfaro L M R ,Leite J R ,Kharchenko A ,Frey T ,As D J ,Schikora D ,Lischka K ,Furthmüller J ,Bechstedt F 2002 Appl. Phys. Lett. 80 769

- [8] Hiroshi Harima 2002 J. Phys: Condens. Matter 14 R967
- [9] Chen D J Shen B ,Bi Z X ,Zhang K X ,Gu S L , Zhang R ,Shi Y , Zheng Y D 2003 Optical Materials 23 127
- [10] Angerer H ,Brunner D ,Freudenberg F ,Ambacher O ,Stutzmann M , Höpler R ,Metzger T ,Born E ,Dollinger G ,Bergmaier A ,Karsch S , Körner H 1997 Appl. Phys. Lett. 71 1504
- [11] Polian A ,Grimsditch M ,Grzegory I 1996 J. Appl. Phys. 79 3343
- [12] Jain S C , Willander M , Narayan J , Overstraeten R Van 2000 J. Appl. Phys. 87 965
- [13] Chen Y F, Bagnall D, Yao T K 2000 Materials Science and Engineering B 75 190
- [14] Perlin P , Jauberthie-Carillon C , Itie J P , Miguel A S , Grzegory I , Polian A 1992 Phys. Rev. B 45 83
- [15] Kozawa T Kachi T ,Kano H ,Nagase H ,Koide N ,Manabe K 1995 J. Appl. Phys. 77 4389
- [16] Grille H ,Schnittler Ch ,Bechstedt F 2000 Phys. Rev. B 61 6091
- [17] Correia M R ,Pereira S ,Pereira E ,Frandon J ,Alves E 2003 Appl. Phys. Lett. 83 4761

- [18] Demangeot F ,Frandon J ,Renucci M A ,Briot O ,Gil B ,Aulombard R L 1996 Solid State Commun. 100 207
- [19] Correia M R ,Pereira S ,Pereira E ,Frandon J ,Renucci M A ,Alves E Sequeira A D ,Franco N 2002 Phys. Stat. Sol. C 0 563
- [20] Wagner J , Ramakrishnan A , Obloh H , Maier M 1999 Appl. Phys. Lett. 74 3863
- [21] Wetzel C, Walukiewicz W, Haller E E, Ager III J, Grzegory I, Porowski S Suski T 1996 Phys. Rev. B 53 1322
- [22] Li Z F, Lu W, Ye H J, Yuan X Z, Shen X C 2000 Acta Phys. Sin. 49 1614 (in Chinese)[李志锋、陆 卫、叶红娟、袁先璋、 沈学础 2000 物理学报 49 1614]
- [23] Weber W H, Merlin R 2000 Raman Scattering in Materials Science (Berlin : Springer) p85

- [24] Xu X L Shi C S ,Fung S ,Beling C D 2001 Progress in Physics 21 1 (in Chinese)[许小亮、施朝淑、Fung S, Beling C D 2001 物理学 进展 21 1]
- [25] Li W S , Shen Z X , Feng Z C , Chua S J 2000 J. Appl. Phys. 87 3332
- [26] Chen D J, Shen B, Zhang K X, Deng Y Z, Fan J, Zhang R, Shi Y, Zeng Y D 2003 Acta Phys. Sin. 52 1788 (in Chinese)[陈敦 军、沈 波、张开骁、邓咏桢、范 杰、张 荣、施 毅、郑有 2003 物理学报 52 1788]
- [27] Bungaro C ,Rapcewicz K ,Berholc J 2000 Phys. Rev. B 61 6720
- [28] Jiang D S ,Ramsteiner M ,Ploog K H ,Tews H ,Graber A ,Averbeck R ,Riechert H 1998 Appl. Phys. Lett. 72 365

Micro-Raman scattering study of hexagonal InGaN epitaxial layer*

Wang Rui-Min[†] Chen Guang-De Zhu You-Zhang

(School of Science, Xi 'an Jiaotong University, Xi 'an 710049, China) (Received 25 March 2005; revised manuscript received 27 June 2005)

Abstract

Hexagonal $\ln_x \operatorname{Ga}_{1-x} N$ film grown by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) was studied by Micro-Raman scattering and X-ray diffraction. The phase separation was observed in $\ln_x \operatorname{Ga}_{1-x} N$, the biaxial stress was measured by both Raman and X-ray diffraction. In Raman spectroscopy, the $A_1(\text{ LO})$ mode of $\ln_x \operatorname{Ga}_{1-x} N$ is absent. Instead, the LO phonon-plasmon coupled mode (LPP⁺) was observed at about 778 cm⁻¹. The carrier concentration was determined by the frequency of the coupled mode. The E_2 and $A_1(\text{ TO})$ modes of $\ln_x \operatorname{Ga}_{1-x} N$ layer exhibit a down-shift compare to those of GaN layer. At low temperature, the peak induced by electronic transition was observed in Raman spectra of $\ln_x \operatorname{Ga}_{1-x} N$.

Keywords : Raman scattering , X-ray diffraction , phase separation , stress , LO phonon-plasmon coupled mode PACC : 7830 , 3320R , 7280E

 $[\]ast$ Project supported by the National Natural Science Foundation of China Grant No. 10474078).

 $[\]ensuremath{^{\ddagger}}$ Corresponding author. E-mail : wangrm@mail. xjtu.edu.cn