

GaAs/AlAs 超晶格的近共振 喇曼散射研究*

韩和相 汪兆平 李国华 江德生

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

K. PLOOG

德国马普协会斯图加特固体研究所

1991 年 4 月 24 日收到

本文介绍 GaAs/AlAs 超晶格的室温近共振喇曼散射测量结果。由于超晶格中 Fröhlich 相互作用的共振增强效应, GaAs LO 声子偶模的散射得到了很大的增强。和前人的结果一样,在偏振谱我们观察到了偶模。但和前人的结果不同,在退偏振谱中我们观察到的是奇模,而不是偶模。从而证明了在近共振条件下 LO 声子限制模仍遵从与非共振时一样的选择定则。二级喇曼散射实验结果表明,在偏振谱中二级谱是由两个偶模组合而成,而在退偏振谱中的二级谱与前人的结果^[1]不同,由一个奇模与一个偶模组合而成。上述结果与最近提出的黄朱模型的预言是一致的。还简单讨论了所观察到的界面模及其与限制模的组合谱。

PACC: 7830; 6865; 6320K

一、引 言

近 10 年来,半导体超晶格的喇曼散射问题吸引了广泛的关注,通过许多实验和理论上的研究已基本了解了其晶格振动的特性。对于像 GaAs/AlAs 这样已得到大量研究的超晶格结构,声学声子是传播模,在整个结构中传播。然而对光学声子而言,因两种组分材料的光学声子处于被一个能隙隔开的不同的能量区,不能在整個结构中传播,而是局域在各自组分层内,因而称为限制模。超晶格结构中引入的新的周期性以及由此而产生的小布里渊区,使得在喇曼散射中,不象在体材料中那样只有布里渊区中心 Γ 点附近的声子才是喇曼活性的,而是分离地折迭到小布里渊区的各个光学声子都是喇曼活性的,从而可在实验上观察到。像 $(\text{GaAs})_{n_1}(\text{AlAs})_{n_2}$ 这样具有 D_{2d} 对称性的超晶格的 LO 声子限制模 LO_m ($m = 1, 2, \dots, n_1$ 或 n_2) 按其属性奇模 (m 为奇数) 和偶模 (m 为偶数)。奇模是 B_2 对称性的,在退偏振谱中是喇曼活性的。而偶模是 A_1 对称性的,在偏振谱中是喇曼活性的^[1-4]。在分辨率允许的范围内所有这些 LO_m 模均可在喇曼散射中观察到。上述的 n_1 和 n_2 分别是两种组分层 GaAs 和 AlAs 的单层数。一个单层的厚度是 $a_0/2 = 2.83$

* 国家自然科学基金与中国科学院重大项目经费资助的课题。

$\bar{\Lambda}$ (a_0 是晶格常数), 所以 $(n_1 + n_2)a_0/2$ 就表示超晶格结构的周期长度 d . 若把 LO_m 的各个模按其相应的波矢 $\frac{m}{n+1}(2\pi/a_0)$ 展开即可得到相应体材料的 LO 声子色散曲线, 所以超晶格的喇曼散射, 因其固有的特性, 为研究相应体材料的声子色散关系提供了有效的手段. 共振喇曼散射中, 由于共振增强效应, 可以得到在非共振散射情况下得不到的许多信息. 近年来共振喇曼散射方法也常常被应用于超晶格结构的晶格振动机理、电子-声子相互作用以及电子能态结构的研究中. 关于这方面的进展可参阅文献[5—8]. 然而共振喇曼散射需要有可调染料激光器, 实验也复杂费时. 近共振喇曼散射却较易于实现. 如对 GaAs/AlAs 这样的超晶格而言, 用氦离子激光器的 6471 Å 和 6764 Å 线作为激发线, 就可以接近某一个子能带的跃迁能量, 从而易于实施. Sood 等人在 10K 下, 用 6471 Å 线进行的近共振喇曼散射中观测到了 LO 声子偶模^[9]以及在非共振散射实验中难于分辨出来的界面模^[9]和二阶声子模^[10]. 然而他们说, 在近共振条件下在偏振谱和退偏振谱中都只观察到具有 A_1 对称性的 LO 声子偶模. Alexandre 等人通过适当选择量子阱层厚使轻重空穴子能带的分裂正好等于一个或两个 LO 声子的方法, 实现了双重和三重共振喇曼散射^[4]. Gant 等人也在共振散射条件下观测到了类似的结果^[11]. 他们都说在共振散射中用退偏振散射配置观测到的是具有 A_1 对称性的 LO 声子偶模, 而不是具有 B_2 对称性的 LO 声子奇模, 并用杂质或界面缺陷诱导的 Fröhlich 相互作用散射来解释.

本文介绍室温和背散射情况下 GaAs/AlAs 超晶格的近共振喇曼散射测量结果. 我们不仅观察到偏振谱中的 LO 声子偶模, 还观察到退偏振谱中的 LO 声子奇模. 另外又在偏振谱中观察到二阶声子模. 我们的结果与最近由黄昆、朱邦芬发展的微观理论的预言是一致的. 我们用实验方法证明了在近共振喇曼散射中 LO 声子所遵从的选择定则与在非共振情况下是一致的.

二、样品与实验

$(GaAs)_{n_1}(AlAs)_{n_2}$ 超晶格样品是用分子束外延 (MBE) 方法生长在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上. 先生长 GaAs 缓冲层, 然后按照对各组分层单层数的设计要求交替生长 GaAs 和 AlAs. 如此重复 150—200 个周期, 最上面一层为设定层厚的 GaAs, 没有厚的 GaAs 覆盖层. 样品生长的全过程由计算机控制并用 RHEED 振荡峰进行监控. 用 X 射线双晶衍射法测量的超晶格样品的结构参数符合样品设计要求. 关于样品制备和 X 射线双晶衍射测量的具体细节可参阅文献 [12]. 本研究中所用的两个 $(GaAs)_{n_1}(AlAs)_{n_2}$ 超晶格样品中, 各组分层的单层数 (n_1, n_2) 和重复周期数分别是 (10, 3), 150 和 (6, 6), 200.

用 CR-I-100-K3 型氦离子激光器的 6764 Å 和 6471 Å 线激发超晶格样品. 输出的激发光是竖直偏振的. 用小形前置单色仪进一步过滤了激发光中的等离子线. 激发光用柱面透镜聚焦在样品表面上, 从而可避免对样品的加热效应. 样品表面上激发光的功率是 300—500 mW. 用大孔径聚光透镜组收集的散射光通过检偏器进行偏振选择, 从而得

到所需要的散射配置,即偏振的和退偏振的散射光。散射光信号送到 J-Y T800 三光栅单色仪分光后再送到 RCA C31034 GaAs 光阴极光电倍增管接收。又经光子计数器进行信号处理之后送到记录仪记录。所有的喇曼散射实验是在室温和背散射配置下进行。所测的光谱曲线已经平滑处理。

三、结果与讨论

图 1 和图 2 分别表示在氦离子激光器 6764 Å 线激发下 $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_3$ 和

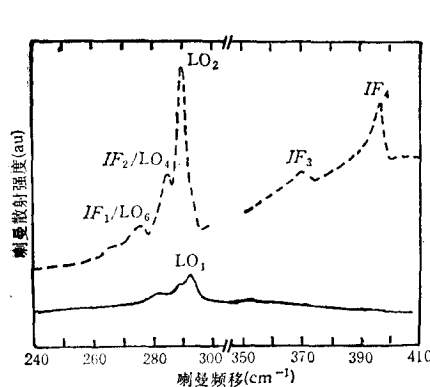


图 1 6764 Å 线激发下 $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_3$ 的室温喇曼光谱
--- 是 $z(xx)z$ 散射组态; — 是 $z(xy)z$ 散射组态

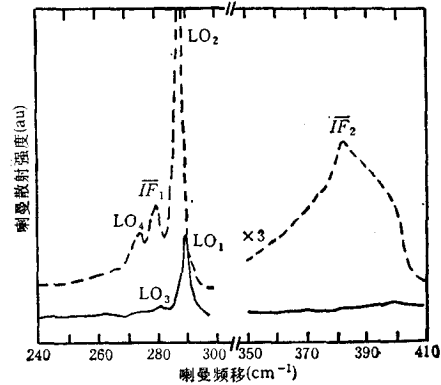


图 2 6764 Å 线激发下 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 的室温喇曼光谱 符号说明同图 1

$(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 超晶格样品的近共振喇曼散射光谱图。图中的虚线表示在 $z(xx)z$ 散射配置下的喇曼光谱,即偏振谱,实线表示在 $z(xy)z$ 散射配置下的喇曼光谱,即退偏振谱,其中 $x \parallel (100)$, $y \parallel (010)$, $z \parallel (001)$ 。如图 1 和图 2 所示,在 $z(xx)z$ 散射配置下分别从 $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_3$ 和 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 样品的喇曼光谱中清楚地看到了三个和两个喇曼散射峰。根据峰值位置的分析,和前人的结果一样,我们把它归结为限制在 GaAs 层中的 LO 声子偶模,分别是 LO_2 , LO_4 和 LO_6 (图 1), LO_2 和 LO_4 (图 2)。然而在退偏振情况下得到的结果与前人不同。如图 1 所示,在 $z(xy)z$ 散射配置下 291.3cm^{-1} 处声子峰比在偏振谱中 LO_2 声子模频率位置还高 2cm^{-1} ,却与非共振条件下退偏振谱中的 LO_1 声子模频率一致。同样,在图 2 的退偏振谱中 289.5cm^{-1} 处声子峰比偏振谱中 LO_2 声子模频率还高 3cm^{-1} ,却与非共振条件下退偏振谱中的 LO_1 声子模频率一致。根据声子峰的位置及与非共振喇曼光谱的比较,我们把退偏振谱中这些峰分别归结为 $(\text{GaAs})_{10}(\text{AlAs})_3$ 的 LO_1 和 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 的 LO_1 和 LO_3 奇模。因在退偏振谱的信号很弱,高阶的奇模就难于辨认清楚。好在用氦离子激光器的 6471Å 线激发 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 样品时,如图 3 所示,由于更强的共振增强效应,能够清楚地分辨出限制在 GaAs 层中的三个 LO 声子偶模和三个奇模。与图 1 和图 2 的情况一样,偶模是在偏振谱中观察到的,奇模是在退偏振谱中观察到的。这些模的频率与以前我们在非共振喇曼光谱中所观察到的相应声子模的频率是一致的^[3]。上述实验结果证明:近共振散射的偏振谱中,和前人的结果一样,具有 A_1 对称性的 LO 声子偶模是喇曼活性的,而具有

B_2 对称性的奇模是喇曼非活性的; 近共振散射的退偏振谱中, 和前人的结果相反, 具有 B_2 对称性的 LO 声子奇模是喇曼活性的, 而具有 A_1 对称性的偶模是喇曼非活性的. 从而

用实验方法证明了在近共振喇曼散射中, GaAs/AlAs 超晶格的 LO 声子所遵从的喇曼散射选择定则与非共振情况下的一致.

已经证明, 和体材料不同, 在多量子阱, 超晶格中 Fröhlich 相互作用散射不再是偶极禁戒的, 所以即使在非共振情况下也能够观察到 A_1 对称性的声子模. 最近黄昆和朱邦芬系统地发展了超晶格中光学声子喇曼散射的微观理论^[13,14], 即黄朱模型, 并给出了光学声子限制模和界面模的喇曼散射效率表达式以及这些模喇曼散射的选择定则. 按照黄朱模型, LO 声子偶模是由 Fröhlich 相互作用散射引起的并在偏振谱中喇曼活性的, 而 LO 声子奇模是由形变势散射引起的并在退

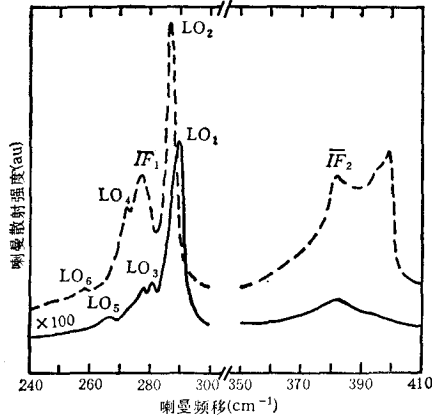


图 3 6471 Å 线激发下 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 的室温喇曼光谱 符号说明同图 1

偏振谱中喇曼活性的. 上述我们的实验结果与黄朱模型的理论预言是一致的.

众所周知, 在非共振散射中, LO 声子奇模的强度远大于偶模的^[1-3]. 然而在近共振散射中, 如图 1 至图 3 所示, LO 声子偶模的强度远大于奇模的. 按照文献 [13,14], 对于形变势散射, 只有 LO 声子奇模是喇曼活性的, 而对于 Fröhlich 散射, 只有 LO 声子偶模是喇曼活性的. 另外对于窄阱宽的样品(如本文所用的样品), 轻重空穴子带的分裂大于 LO 声子能量, 所以子带内跃迁的散射占绝对的优势, 而子带间的散射可以忽略不计. 再加上子带内形变势散射对喇曼散射的贡献很弱, 所以 LO 声子奇模的共振增强很弱, 只有偶模得到显著的共振增强. 上述黄朱模型的理论预言与我们的实验结果是一致的.

我们曾报道过 GaAs/AlAs 超晶格中限制在 AlAs 层的 LO 声子非共振喇曼散射测量结果^[3]. 然而在近共振散射中, 如图 1 至图 3 所示, 在 AlAs 光学声子区内的喇曼散射光谱结构与非共振的结果完全不同. 根据对喇曼散射峰的形状, 共振增强效应以及散射峰位置的分析, 我们认为在偏振谱中 AlAs 光学声子区内的宽而弱的散射峰是界面模, 而不是 AlAs LO 声子限制模. 已经证明, 与限制模的情况不同, 由介电模型完全可以确定界面模, 所得结果与零色散情况下用微观模型计算的结果完全一致^[10,15]. 按照介电模型, 对于每一个波矢都有两个 GaAs 界面模 IF_1 , IF_2 和两个 AlAs 界面模 IF_3 , IF_4 与之对应. 在严格背散射情况下波矢允许的界面模的频率非常接近 LO_1 和 TO_1 限制模, 因而难以从实验分辨出来. 然而由于杂质或界面缺陷引起的无序, 具有不同波矢的所有声子的喇曼散射都是允许的, 因而界面模就以两个宽峰结构出现, 反映界面模的声子态密度谱. 图 1 中示出 GaAs 界面模 IF_1 和 IF_2 和 AlAs 界面模 IF_3 和 IF_4 . 另一方面因激发能量只与 GaAs 势阱中的激子发生共振, 对 AlAs LO 声子限制模几乎没有共振效果而只有 AlAs 界面模得到共振增强的效果. 所以如图中所示, 得到共振增强的 AlAs 界面模 IF_3 和 IF_4 掩盖了 AlAs LO 声子限制模. 当 $n_1 = n_2$ 时, 每对界面模中

的带隙消失,简并成一个带。图 2 中 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 样品的喇曼谱正好说明了这一点, GaAs 界面模和 AlAs 界面模各自简并成一个带,即 $\overline{\text{IF}}_1$ 和 $\overline{\text{IF}}_2$ 。图 2 的偏振谱很类似于 Sood 等人在类似样品上得到的结果^[9]。从图 3 可以看出,当改用 6471 \AA 线激发时,AlAs 区中的偏振谱不同于图 2 的,很类似于 Merlin 等人早期得到的结果^[16]。在 AlAs 界面模 $\overline{\text{IF}}_2$ 带的高能端迭加一个位于 399 cm^{-1} 的小峰。仅就频率位置而言,这个小峰似在 AlAs LO_1 处,但它不可能是 AlAs LO 声子限制模 LO_1 。已经很清楚,在 GaAs/AlAs 这样的超晶格中 LO 声子奇模只在退偏振谱中才是喇曼活性的,不可能出现在偏振谱中。另一方面,它也不太可能是扩展的界面模。虽然在背散射情况下,其频率趋近于 LO_1 而且其电势有一个近常数项扩展到邻近的 GaAs 层中,但由于电子的 Fröhlich 相互作用散射和空穴 Fröhlich 相互作用散射相互抵消,对喇曼散射的贡献很小,可以忽略不计^[13,15]。总之,对于迭加在 $\overline{\text{IF}}_2$ 界面模上的这个小峰还得不到确切的解释,有待进一步研究。

因用 6471 \AA 线激发 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 样品时得到比较大的共振增强,除了一级喇曼光谱外,还可以观察到较清楚的二级喇曼散射谱。图 4 和图 5 分别表示 6471 \AA 线激发时 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 样品的偏振和退偏振喇曼散射光谱。可以清楚地看到: 在一个宽的发光峰上迭加一级和二级喇曼散射峰。发光峰位于 1.856 eV 处,与 Kronig-Dennoy 模型计算的以及室温光荧光测量中得到的 E_{11}^c 跃迁能量很接近^[17]。另外还发现,虽然这个发光峰的退偏振分量很少,但并非是完全偏振的。图 4 和图 5 中的插图是放大的二级

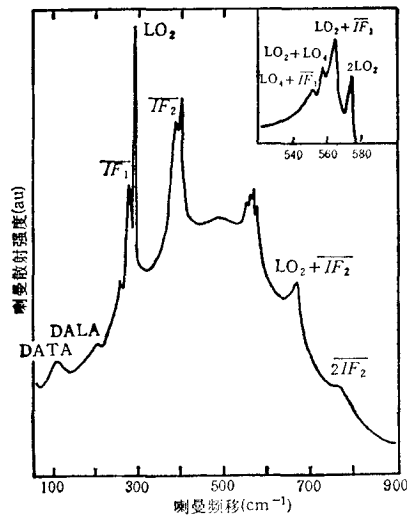


图 4 在室温下用 6471 \AA 线激发的 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 的一级和二级喇曼散射偏振谱

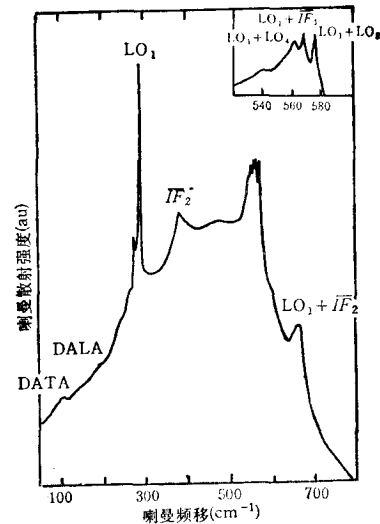


图 5 在室温下用 6471 \AA 线激发的 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 的一级和二级喇曼散射退偏振谱

喇曼光谱图。表 1 中列出了这些一级、二级喇曼散射峰的频率位置及对它们的指认。从表 1 中可以看到,二级喇曼散射峰的频率与一级喇曼谱中各种模的倍频模和组合模的频率很好地互相对应。二级喇曼散射的偏振谱与前人的结果十分相似^[4,10],由偶模或界面模的倍频模与由它们的组合模组成。Alexandre 等人^[4]报道的二级喇曼散射的偏振谱和退

表 1 $(\text{GaAs})_6(\text{AlAs})_6$ 超晶格的声子模及其频率 (cm^{-1})

偏振谱	声子模	LO_2	LO_4	LO_6	IF_1	IF_2	$\text{LO}_4 + \text{IF}_1$	$\text{LO}_2 + \text{LO}_4$	$\text{LO}_2 + \text{IF}_1$	2LO_2	$\text{LO}_2 + \text{IF}_2$	2IF_1
	频率		286.5	272.5	259	277.5	382.5	551	558	564	573	667
退偏振谱	声子模	LO_1	LO_3	LO_5	IF_1	IF_2		$\text{LO}_1 + \text{LO}_3$	$\text{LO}_1 + \text{IF}_1$	$\text{LO}_1 + \text{LO}_2$	$\text{LO}_1 + \text{IF}_2$	
	频率		289.5	281	266	277.5	382.5		562	566.5	575.5	668

偏振谱均由一个偶模的倍频模、两个偶模的组合模及偶模与界面模的组合模组成。我们的二级喇曼散射退偏谱,与他们的结果完全不同,是由一个奇模与一个偶模或与一个界面模的组合模组成,上述关于我们的二级喇曼散射的实验结果及其喇曼谱组成的指认与最近朱邦芬等人^[11]用理论分析得到的关于超晶格二级喇曼散射的选择定则一致。图 4 和图 5 的低波数区还出现了弱的峰和肩,我们把它们指认为无序激活的横向声学声子模和纵向声学声子模,即 DATA 和 DALA。

四、结 论

在室温和背散射配置下测量了 GaAs/AlAs 超晶格的近共振喇曼散射谱。我们用实验方法证明,在近共振条件下 GaAs/AlAs 这样的超晶格 LO 声子的喇曼散射选择定则与非共振散射时是一样的,即具有 A_1 对称性的 LO 声子偶模是左偏振谱中喇曼活性的;而具有 B_2 对称性的 LO 声子奇模是左退偏振谱中喇曼活性的。不仅介绍了二级喇曼散射的偏振谱,还报道了二级喇曼散射的退偏振谱。结果证明,二级喇曼散射的偏振谱是由一个偶模或界面模的倍频模、两个偶模的组合模以及一个偶模与一个界面模的组合模组成,而二级喇曼散射的退偏振谱与前人的结果截然不同,是一个奇模与一个偶模或与一个界面模的组合模组成。

感谢黄昆教授和朱邦芬研究员的指导和有益的讨论。

- [1] A. K. Sood, J. Menendez, M. Cardona and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.*, **54**(1985), 2111.
- [2] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoc and A. C. Gossard, *Phys. Rev.* **B31**(1985), 2080.
- [3] Z. P. Wang, D. S. Jiang and K. Ploog, *Solid State Commun.*, **65**(1988), 661.
- [4] A. Alexandre, M. Cardona and K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B38**(1988), 2196.
- [5] M. Cardona, *Superlatt. and Microstr.*, **5**(1989), 27.
- [6] J. Menendez, *J. Luminescence*, **44**(1989), 285.
- [7] J. Sapriel and B. Djafari Rouhuni, *Surf. Sci. Rep.*, **10**(1989), 189.
- [8] B. Jusserand and M. Cardona, in *Light Scattering in Solids V*, ed. by M. Cardona and G. Guntherodt, Springer-Verlag Heidelberg, (1989), p. 49
- [9] A. K. Sood, J. Menendez, M. Cardona and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.*, **54**(1985), 2115.
- [10] A. K. Sood, J. Menendez, M. Cardona and K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B32**(1985), 1412.
- [11] T. A. Gant, M. Delaney, M. V. Klein, R. Houdre and H. Morkoc, *Phys. Rev.*, **B39**(1989), 1696.
- [12] T. Isu, D. S. Jiang and K. Ploog, *Appl. Phys.*, **A43**(1987), 75.
- [13] K. Huang, B. F. Zhu and H. Tang, *Phys. Rev.*, **B41**(1990), 5825.
- [14] B. F. Zhu, K. Huang and H. Tang, *Phys. Rev.*, **B40**(1989), 6299.
- [15] K. Huang, B. F. Zhu and H. Tang, *Phys. Rev.*, **B38**(1988), 13377.

- [16] R. Merlin, C. Colvard, M. V. Klein, H. Morkoc, A. Y. Cho and A. C. Gossard, *Appl. Phys. Lett.*, **36**(1980), 43.
- [17] G. H. Li, D. S. Jiang, H. X. Han, Z. P. Wang and K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B41**(1989), 10430.
- [18] B. F. Zhu, K. Huang and H. Tang, 20th Int. Conf. on Physics of Semiconductors, Thessaloniki, Greece, Aug. 6-10, 1990, ed. by E. M. Anastassakis and J. D. Joannopoulos, World Scientific, Singapore, (1990), p. 1409.

NEAR RESONANT RAMAN SCATTERING FROM GaAs/AlAs SUPERLATTICES

HAN HE-XIANG WANG ZHAO-PING LI GUO-HUA JIANG DE-SHENG

National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Academia Sinica, Beijing, 100083

K. PLOOG

Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 7000 Stuttgart 80, Germany

(Received 24 April 1991)

ABSTRACT

This article presents the results of near resonant Raman scattering measurement of GaAs/AlAs superlattices at room temperature. A strong enhancement of GaAs LO phonon even modes resulted owing to dipole allowed Fröhlich interaction in superlattices. Similar to the previous results, the LO phonon even modes in polarized configuration is observed. In contrast to the previous works, however, what we observed in depolarized configuration is the LO phonon odd modes instead of even modes. And it is confirmed that the selection rules of near resonant Raman scattering from LO phonons in this kind of superlattices is the same as that of off resonant scattering. From the second-order Raman scattering, it is confirmed that polarized second-order Raman scattering spectra consist of overtone and combinations of two even modes and depolarized second-order Raman scattering spectra consist of combinations of an even mode and an odd mode. Our experimental results coincide with the predictions using recently developed Huang-Zhu model. A brief discussion on interface modes and their combination with confined modes are also presented.

PACC: 7830; 6865; 6320K