

©1994 г.

## ОПТИЧЕСКИЕ ФОНОНЫ И УПОРЯДОЧЕНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКИ ТВЕРДЫХ РАСТВОРОВ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

*А.М. Минтаиров, Д.М. Мазуренко, М.А. Синицин, Б.С. Явич*

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,  
194021, Санкт-Петербург, Россия  
(Получена 1 февраля 1994 г. Принята к печати 7 февраля 1994 г.)

Обнаружено, что в спектрах комбинационного рассеяния и инфракрасного отражения света двухкомпонентных твердых растворов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.1-0.3$ ) проявляются три типа оптических фононов. Из спектров комбинационного рассеяния определены силы осциллятора ( $S_p$ ) и коэффициенты Фауста-Генри ( $C_p$ ) оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.2$ ). Анализ состояния поляризации в спектрах и значений  $S_p$  и  $C_p$  показал, что оптические фононы с частотами поперечных компонент  $236$  и  $260 \text{ см}^{-1}$  обусловлены колебаниями спонтанно упорядоченной фазы, имеющей структуру монослойной сверхрешетки  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  в плоскости  $(100)$ , а оптические фононы  $267 \text{ см}^{-1}$  — колебанием GaAs-фазы со структурой цинковой обманки. Вывод о частичном упорядочении кристаллической решетки  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с образованием монослойной сверхрешетки  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  подтвердили расчеты функции поперечного отклика в модели линейной цепочки.

В настоящее время в экспериментах по дифракции электронов установлено существование спонтанно упорядоченных фаз в псевдобинарных твердых растворах  $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$  [1]. В двухкомпонентных соединениях эти фазы имеют, как правило, структуры  $\text{CuAuI}$  или  $\text{CuPt}$ , которым соответствуют монослойные сверхрешетки бинарных компонент с плоскостями слоев, перпендикулярными направлениям  $[100]$  и  $[111]$  [1,2]. Частичное упорядочение кристаллической решетки приводит к особенностям в электронных спектрах твердого раствора [2,3]: изменению ширины запрещенной зоны, появлению дополнительных пиков в спектрах электро- и фотоотражения, расщеплению уровней валентной зоны и др. Очевидно, что наличие упорядоченных фаз в твердом растворе должно проявляться и в колебательных спектрах. Однако нам известна только одна работа, в которой была обнаружена связь между изменением ширины запрещенной зоны, обусловленной упорядоченной фазой со структурой  $\text{CuPt}$ , и формой полос оптических фононов в спектре комбинационного рассеяния света  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{P}$  [2].

В данной работе установлено, что в спектрах инфракрасного (ИК) отражения и комбинационного рассеяния (КР) света  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.1-0.3$ ) проявляются три типа оптических фононов. Показано, что трехмодовое поведение оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  обусловлено частичным упорядочением кристаллической решетки в структуру  $\text{CuAuI}$ .

## 1. Методика эксперимента

Исследовались слои  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.05-0.3$ , уровень легирования  $n \approx 10^{15}$  и  $9 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) толщиной 1 мкм, выращенные на полуизолирующих подложках GaAs с ориентацией (100) и (110) методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (МОСГФЭ) при температуре  $640^\circ\text{C}$  на установке, работающей при атмосферном давлении. Отношение потоков элементов V/III равнялось 35. В качестве легирующей примеси использовался кремний. Состав твердого раствора измерялся методами микроанализа и рентгеновской дифракции. Концентрация свободных носителей заряда определялась из холловских измерений.

Спектры КР измерялись в геометрии  $(-40.0)$  [4] при возбуждении линией Ar-лазера 2.41 эВ и анализировались в поляризациях  $\bar{z}(xy)z$  для поверхности (001) и  $\bar{z}'(yx')z'$  для  $(1\bar{1}0)$ , где  $x, y, z, x', z'$  соответствуют кристаллографическим направлениям [100], [010], [001], [011], [011]. Правила отбора и механизмы рассеяния света для этих поляризаций в кристаллах со структурой цинковой обманки [5] приведены в табл. 1. Сильно легированный образец использовался для измерения спектра КР экранированных LO-фононов. При уровне легирования  $n = 9 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  частота плазменных колебаний свободных носителей заряда существенно превышает частоту колебаний кристаллической решетки. При этих условиях плазмоны слабо взаимодействуют с LO-фононами, а электрическое поле, приводящее к продольно-поперечному расщеплению оптических колебаний, полностью экранируется, т.е. частота LO-фонона совпадает с частотой TO-фонона. Для определения частот и полуширин линий оптических фононов спектр КР моделировался набором лоренцовых контуров. Подробно методика измерения и расчетов спектров КР описана в [6].

Спектры ИК отражения измерялись на фурье-спектрометре ЛАФС-1000 и рассчитывались в модели «эпитаксиальный слой на полубесконечной подложке». При моделировании спектров ИК отражения коэф-

Таблица 1. Правила отбора для поляризаций спектров КР оптических фононов в кристаллах со структурой цинковой обманки [5]

Ориентация подложки	Конфигурация рассеяния	Тип оптического фонона	Механизм рассеяния света
(100)	$z(xy)z$	LO(T)	$d_Q + d_E$
(110)	$\bar{z}'(yx')z'$	TO(T)	$d_Q$

Примечание.  $d_Q$  и  $d_E$  — компоненты тензора КР, обусловленные соответственно деформационным потенциалом и электрооптическим эффектом.

коэффициент отражения  $R(\omega)$  рассчитывался как функция показателя преломления эпитаксиального слоя  $n(\omega)$ , толщина эпитаксиального слоя  $D$  и показателя преломления подложки  $n_s(\omega)$  [7]. Для показателя преломления использовалась формула Максвелла  $n(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}$ , в которой низкочастотная функция диэлектрической проницаемости эпитаксиального слоя  $\varepsilon(\omega)$  моделировалась набором осцилляторов. Параметры осцилляторов (частоты  $LO$ - и  $TO$ -фононов —  $\omega_l$  и  $\omega_t$ , затухание  $TO$ -фононов —  $\gamma$ ) и их число варьировались для получения лучшего согласия с экспериментом.

Все измерения проводились при комнатной температуре.

## 2. Экспериментальные результаты

На рис. 1, *a-c* приведены спектры КР образцов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.2$ ) с различными ориентациями подложки и уровнями легирования, измеренные в области  $220\text{--}300\text{ см}^{-1}$ , а на рис. 1, *a, b* наряду со спектрами слабо легированных слоев приведены также спектры КР подложек GaAs. В соответствии с выбранными экспериментальными условиями (поляризация, ориентация подложки и уровень легирования) полосы в спектрах, представленных на рис. 1, *a-c*, соответствуют: *a* —  $LO(\Gamma)$ -фононам, *b* —  $TO(\Gamma)$ -фононам, *c* — экранированным  $LO(\Gamma)$ -фононам. Полоса, обозначенная на рис. 1, *c* как  $LO_1$ , обусловлена неэкранированными  $LO$ -фононами GaAs-типа из обедненного поверхностного слоя толщиной  $\sim 4.6$  нм. В этом же образце в спектре КР наблюдалась плазменная полоса на частоте  $\sim 1000\text{ см}^{-1}$ .

Сопоставление и анализ спектров, приведенных на рис. 1, *a-c*, показывает, что в исследованных слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.2$ ) оптические фононы имеют трехмодовое поведение. Кроме типичных для двухкомпонентных твердых растворов полос оптических фононов, которые обычно относят к колебаниям элементарных ячеек GaAs- и InAs-типов [8–15], отмеченных индексами 1 и 2 соответственно, во всех спектрах проявляется дополнительная полоса, отмеченная индексом *C*. Три полосы в спектрах, приведенных на рис. 1, *a*, обусловлены продольными, а на рис. 1, *b* — поперечными компонентами длинноволновых оптических колебаний решетки  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , что подтверждается хорошим совпадением положения и интенсивности полос в спектре экранированных  $LO$ -фононов  $L_1$ ,  $L_2$  и  $L_C$  (рис. 1, *c*) с положением и интенсивностью полос  $TO_1$ ,  $TO_2$  и  $TO_C$  (рис. 1, *b*).

Обращает на себя внимание существенное различие в соотношении интенсивностей  $LO$ - и  $TO$ -компонент фононов типа 1 и *C*. Так, интенсивность максимума полосы  $LO_1$ -фонона примерно в 4 раза больше интенсивности максимума полосы  $TO_1$ -фонона, в то время как интенсивность максимума полосы  $LO_C$ -фонона на порядок меньше интенсивности максимума полосы  $TO_C$ -фонона. При этом интенсивность линии  $LO_C$ -фонона примерно на 2 порядка меньше интенсивности линии  $LO_1$ -фонона, в то время как линия  $TO_C$ -фонона оказывается немного интенсивнее линии  $TO_1$ -фонона.

Трехмодовое поведение оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  наблюдалось нами в спектрах КР и при других составах твердого раствора (при других  $x$ ) (рис. 2), а также в спектрах ИК отражения (рис. 3, *a*).

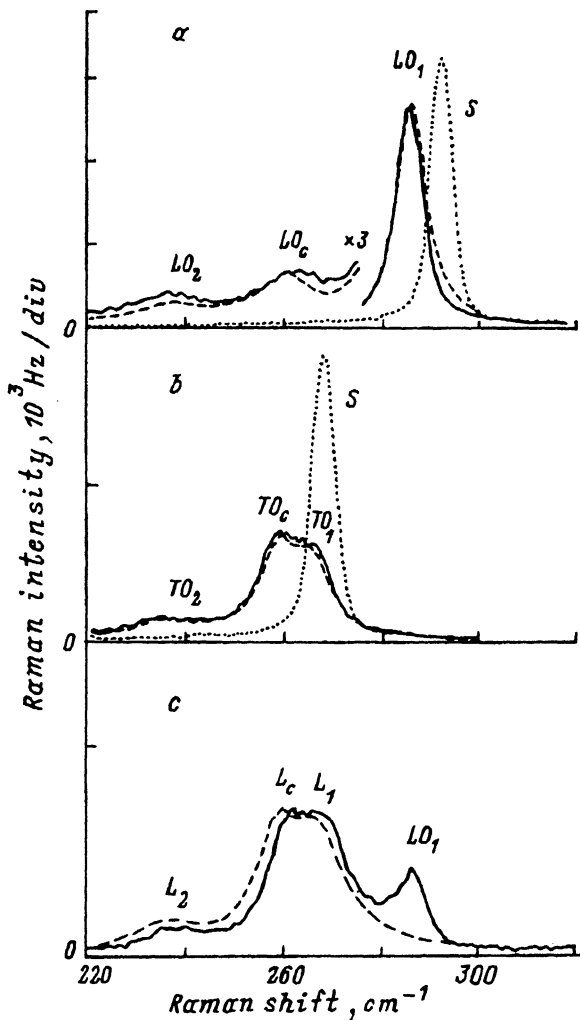


Рис. 1. Спектры комбинационного рассеяния света  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  при возбуждении линией аргонового лазера 2.41 эВ.  $T = 300$  К. Ориентация подложки, поляризация и содержание In в твердом растворе  $x$ :  $a, c$  — (001),  $\bar{z}(xy)z$ , 0.18;  $b$  —  $(1\bar{1}0)$ ,  $\bar{z}'(yx')z'$ , 0.22. Концентрация свободных носителей,  $\text{см}^{-3}$ :  $a, b$  —  $\sim 10^{15}$ ,  $c$  —  $9 \cdot 10^{18}$ . Сплошные линии — эксперимент, штриховые — расчет,  $S$  — экспериментальные спектры подложек GaAs.

Частоты и полуширины линий оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.2$ ), определенные из спектров КР и ИК отражения, приведены в табл. 2 и хорошо согласуются между собой. Несколько завышенное значение частоты  $LO_1$ -фонона, полученное из спектра ИК отражения, возможно, связано с наличием переходного слоя на границе подложка-эпитаксиальный слой.

Отметим, что полоса, соответствующая дополнительным оптическим фононам, в области  $\sim 245 \text{ см}^{-1}$  в спектрах КР твердого раствора  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.5$ ), изорешеточного с InP, наблюдалась в работах

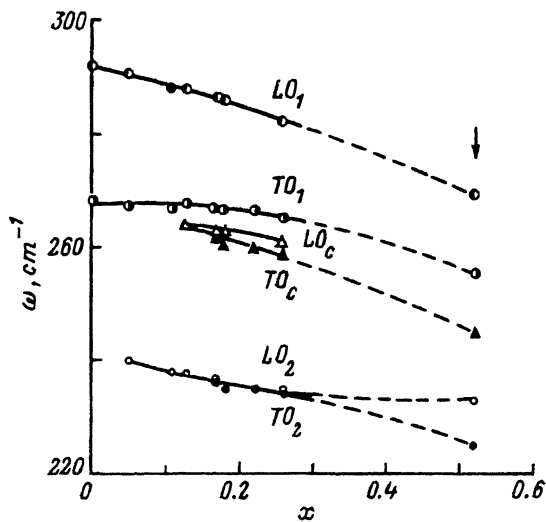


Рис. 2. Зависимость частот оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  от содержания  $\text{InAs}$ . Стрелка показывает частоты фононов для  $x \sim 0.5$ , приведенные в работе [15].

[12,15] (рис. 2). В этих работах она была интерпретирована как обусловленная фононами, индуцированными разупорядоченностью кристаллической решетки твердого раствора. Тонкая структура в области  $260\text{--}240\text{ см}^{-1}$  имеется в спектрах ИК отражения, приведенных в [8,9] для  $x = 0.2\text{--}0.7$ , но в этих работах данная структура не обсуждается.

Наличие продольно-поперечного расщепления оптических фононов типа  $C$ , а также значительная интенсивность в спектрах КР их  $TO$ -компоненты указывают на то, что проявление этих фононов в ис-

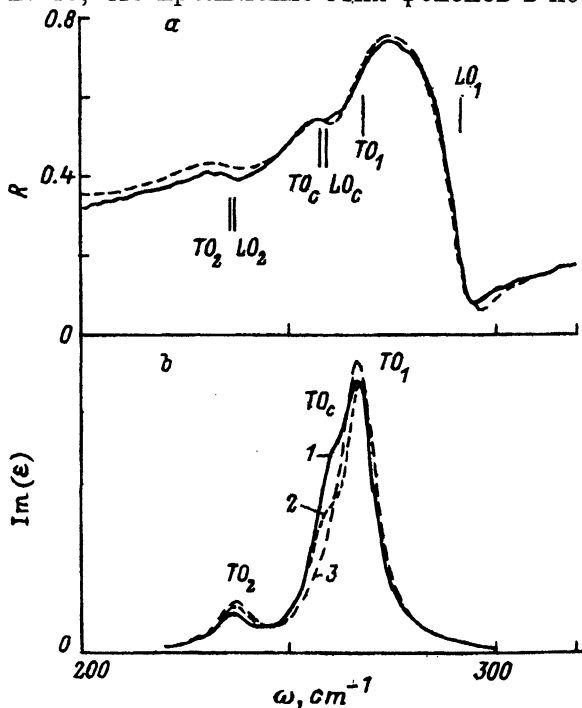


Рис. 3. Спектр ИК отражения (а) и функции поперечного отклика (б) твердого раствора  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.2$ ).

а: сплошная линия — эксперимент, штриховая — расчет. б: 1 — экспериментально определенная функция  $\text{Im}(\epsilon^e)$ , 2 — рассчитанная для упорядоченной линейной цепочки  $\text{Im}(\epsilon^o)$ , 3 — рассчитанная для упорядоченной линейной цепочки  $\text{Im}(\epsilon^d)$ .

**Таблица 2.** Параметры оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.2$ ), определенные из спектров комбинационного рассеяния света и ИК отражения \*

Параметр	Тип оптического фонона						
	Ga-As(GaAs)		In-As( $\text{In}_2\text{Ga}_2\text{As}_4$ )		Ga-As( $\text{In}_2\text{Ga}_2\text{As}_4$ )		
	$TO_1$	$LO_1$	$TO_2$	$LO_2$	$TO_C$	$LO_C$	
Частота, $\text{см}^{-1}$	(КР)	267	285	236	237	260	262
	(ИК)	268.5	292	236	236.5	258	259.5
Затухание, $\text{см}^{-1}$	(КР)	10	6	15	15	11	15
	(ИК)	8	-	8	-	7	-
Коэффициент	(КР)	-0.22	-0.27	-0.05	-0.05	-0.2	-0.2
Фауста-Генри**		(-0.50)	(-0.54)	(-0.17)	(-0.19)	(-0.73)	(-0.76)
Сила осциллятора	(КР)	1.08		0.17		0.61	
Динамический заряд***		2.0		1.5		2.8	
		(2.4)		(2.1)		(3.8)	

*Примечание.* \*Параметры GaAs-подложки, используемые при моделировании спектра ИК отражения (рис. 3, а):  $\omega_{1s} = 270 \text{ см}^{-1}$ ,  $\omega_{1s} = 223 \text{ см}^{-1}$ ,  $\gamma_s = 4 \text{ см}^{-1}$ ,  $\epsilon_{\infty s} = 10.9$ ,  $D = 1.18 \text{ мкм}$ . \*\*В скобках указаны значения  $C_p^0$ , рассчитанные для случая  $w_3 = x$ . \*\*\*Значения динамических зарядов  $e_p^*$ , рассчитанные для случая  $w_3 = x$ . В скобках приведены расчетные значения, полученные с использованием модели линейной цепочки —  $(e_p^*)_{LC}$ .

следованных нами спектрах не может быть объяснено разупорядоченностью кристаллической решетки  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ .

Как показано далее, возможные причины трехмодового поведения оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  могут быть установлены из анализа сил осцилляторов и коэффициентов Фауста-Генри оптических фононов (табл. 2).

### 3. Интенсивности линий в спектрах КР и коэффициенты Фауста-Генри оптических фононов $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

Для определения коэффициентов Фауста-Генри оптических фононов  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  мы использовали молекулярную модель электронной поляризуемости твердого раствора [6]. Согласно этой модели, частотная зависимость эффективности стоковой компоненты разрешенного КР многомодового твердого раствора дается формулой

$$I(\omega) = A(\omega, T)(d_E)^2 \text{Im} \left\{ -\epsilon(\omega, \mathbf{q})^{-1} \left[ 1 + \sum_p K_p \chi_p(\omega) \right]^2 + \sum_p K_p^2 \chi_p(\omega) \right\}, \quad (1)$$

где  $A(\omega, T)$  включает в себя члены, учитывающие геометрию рассеяния, условия распространения возбуждающего и рассеянного света в кристалле, условия сбора рассеянного света и температуру [5];  $\epsilon(\omega, \mathbf{q}) = \epsilon_\infty + \sum_p \chi_p(\omega) + \chi_e(\omega, \mathbf{q})$  — низкочастотная функция диэлек-

трической проницаемости кристалла, где  $\varepsilon_\infty$ ,  $\chi_p(\omega)$ ,  $\chi_e(\omega, \mathbf{q})$  — восприимчивости связанных электронов, фононов ( $p$  нумерует типы оптических фононов) и свободных электронов ( $\mathbf{q}$  — волновой вектор) соответственно;  $K_p = C_p S_p^{-1}$ ,  $S_p$  — сила осциллятора;  $C_p$  — коэффициент Фауста-Генри, нормированный на полное число примитивных ячеек данного типа. Коэффициенты  $C_p$  пропорциональны отношению  $dQ_p/dE$  (см. табл. 1). Для  $TO$ -фононов в выражение для  $\varepsilon(\omega, \mathbf{q})$  необходимо включить поляритонный член  $q^2/\omega^2$ , вследствие наличия которого при обратной геометрии рассеяния ( $q \gg \omega_t$ ) первым членом в фигурных скобках можно пренебречь.

Формула (1) была получена в предположениях, что оптические колебания кристаллической решетки твердого раствора описываются набором эффективных осцилляторов, соответствующих внутренним колебаниям примитивных ячеек различного типа, и что электронная поляризуемость примитивной ячейки не зависит от смещения атомов в соседних ячейках. Справедливость первого предположения и число типов оптических фононов ( $p = 1-3$  для  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ) непосредственно следуют из анализа экспериментальных спектров, рассмотренных выше. Согласно второму предположению, коэффициенты  $C_p$  пропорциональны концентрации ячеек данного типа (также как и  $S_p$ ), т.е.  $C_p \approx w_p C_p^0$ , где  $w_p$  и  $C_p^0$  — мольная доля и коэффициент Фауста-Генри соединения с примитивной ячейкой  $p$ -типа. При известных значениях  $A(\omega, T)$ ,  $d_E$ , а также частот и полуширин полос оптических фононов, определяющих  $S_p$  и  $\chi_p$ , интенсивности полос в спектрах КР задаются через коэффициенты Фауста-Генри, что дает возможность использовать экспериментальные спектры КР для определения  $C_p$ . Поскольку для многих полупроводниковых соединений коэффициенты  $C_p^0$  известны [5], возможность определения  $C_p$  из спектров КР с помощью формулы (1) оказывается важной, так как позволяет получать количественную информацию о содержании различных компонент твердого раствора.

При расчетах спектров КР оптические постоянные, входящие в  $A(\omega, T)$ , электрооптический вклад в электронную поляризуемость,  $d_E$ , и высокочастотная диэлектрическая проницаемость,  $\varepsilon_\infty$ ,  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  определялись линейной интерполяцией с использованием соответствующих значений для GaAs и InAs (приближение виртуального кристалла), приведенных в [16,17]. Для определения численного значения нормировочного коэффициента  $A(\omega, T)$  использовался спектр КР GaAs ( $C_{\text{GaAs}}^0 = -0.55$  [4]), измеренный в тех же условиях (рис. 1,а).

Расчетные спектры, полученные с использованием значений  $C_p$ , приведенных в табл. 2, показаны на рис. 1,а-с и хорошо описывают наблюдаемое распределение интенсивности полос. Для экранированных  $LO$ -фононов (рис. 1,с) спектр КР рассчитывался с использованием значений  $C_p$ , определенных из спектра  $LO$ -фононов (рис. 1,а), и с включением в  $\varepsilon(\omega, q)$  вклада свободных электронов  $\chi_e(\omega, q)$ . Подробно детали учета  $\chi_e(\omega, q)$  приведены в [6].

Значения  $C_p$ , полученные из спектров  $LO$ - и  $TO$ -фононов, очень хорошо согласуются между собой. Несколько меньшая величина  $C_1$ , полученная из спектров  $TO$ -фононов, связана с меньшим содержанием

GaAs в этом образце. Анализ формулы (1) и значений  $C_p$  и  $S_p$  позволяет установить причины существенного различия в распределении интенсивностей полос  $TO$ - и  $LO$ -фононов в спектрах КР  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ .

Согласно формуле (1), распределение интенсивностей линий  $TO$ -фононов в спектре КР задается коэффициентами  $C_p^2/S_p$ . Этот коэффициент максимален для  $TO_C$ -фононов, что и приводит к их большей интенсивности в спектре КР (рис. 1, б). Отметим, что распределение интенсивности  $TO$ -фононов в спектре КР отличается от распределения интенсивности  $TO$ -фононов в функции поперечного отклика  $\text{Im}(\varepsilon)$ , задаваемого силами осциллятора  $S_p$ . Функция  $\text{Im}(\varepsilon^e) \text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x \approx 0.2$ ), рассчитанная по данным табл. 2, приведена на рис. 3, б. Здесь максимальную интенсивность имеет  $TO_1$ -фонон, у которого наибольшая сила осциллятора.

Для  $LO$ -фононов распределение интенсивности линий определяется интерференцией  $d_{QP}$ - и  $d_E$ -вкладов, которую отражает в формуле (1) член в квадратных скобках. Вследствие интерференции интенсивность рассеяния  $LO$ -фононами имеет минимумы вблизи частот  $\omega_{OP} = \omega_{TP}(1 + C_p)^{0.5}$  [6]. Для рассмотренных спектров КР  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  частота  $LO_C$ -фонона ( $p = 3$ ) попадает в область минимума интенсивности рассеяния, обусловленного фононами GaAs-типа ( $p = 1$ ), что и приводит к весьма малой его интенсивности (рис. 1, а).

#### 4. Обсуждение результатов

Анализ полученных значений коэффициентов Фауста-Генри и сил осцилляторов показывает, что фононы типа  $C$  обусловлены колебаниями связи Ga-As. Действительно, для фононов GaAs-типа величина  $-C_1 \approx 0.25$  оказывается существенно меньше величины  $-C_1^a = -C_{\text{GaAs}}^0(1-x) = 0.44$ , которую можно ожидать в предположении, что все ячейки GaAs дают вклад в эту оптическую моду. С другой стороны, имеет место соотношение  $C_1^a \approx C_1 + C_3$ . Аналогичное соотношение имеет место и для сил осцилляторов этих мод:  $S_{\text{GaAs}}^0(1-x) \approx S_1 + S_3 \approx 1.6$ . Учитывая эти соотношения между  $C_p$  и  $S_p$ , а также тот факт, что частоты фононов типа  $C$  попадают в область частот, соответствующих середине зоны Бриллюэна оптических фононов GaAs [16], можно сделать вывод о том, что в исследованных слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  часть атомов Ga образуют с атомами In упорядоченные комплексы, равномерно распределенные в катионной подрешетке. Упорядоченные комплексы (фазы) имеют примитивную ячейку, отличную от примитивных ячеек GaAs- и InAs-типов, реализуемых в неупорядоченном твердом растворе, и фононы типа  $C$  являются оптическим колебанием связи Ga-As такой ячейки.

Возможные типы упорядоченных структур, реализуемых в тройных твердых растворах  $A_x\text{B}_{1-x}\text{C}$  со структурой цинковой обманки, можно описать формулой  $A_n\text{B}_{4-n}\text{C}_4$ , где  $n = 1-3$ . Для данного  $n$  различные структуры отличаются порядком расположения атомов A и B в примитивной ячейке [8]. Наиболее вероятной структурой упорядоченной фазы в исследованных слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , на наш взгляд, является структура CuAuI. Эта структура ( $n = 2$ ) имеет тетрагональную симметрию



с осью  $c$ , параллельной направлению  $[100]$  и перпендикулярной  $[110]$ , и состоит из чередующихся монослоев  $\text{InAs}$  и  $\text{GaAs}$  в плоскостях  $(100)$  и  $(110)$  [1]. Для этой структуры (монослойной сверхрешетки) правила отбора в спектрах КР на оптических фононах в условиях использованных нами геометрий рассеяния и ориентаций подложки [19] совпадают с таковыми для структуры цинковой обманки и соответствуют проведенному выше разделению продольных и поперечных компонент оптических фононов в спектрах КР  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Кроме того, значение частоты  $LO_C$ -фонона  $\sim 262 \text{ см}^{-1}$  близко к частотам  $LO$ -фононов  $\text{GaAs}$ -типа в монослойных сверхрешетках  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  [20].

Вывод о частичном упорядочении кристаллической решетки  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с образованием фазы со структурой  $\text{CuAuI}$  подтверждают и следующие соображения. Согласно молекулярной модели, при образовании твердого раствора не происходит перераспределения электронной плотности между атомами в примитивной ячейке, что соответствует сохранению значений динамического заряда  $e^*$  и вклада деформационного потенциала  $d_Q$  в электронную поляризуемость примитивной ячейки, т.е.  $e_{0p}^* = e_p^*$  и  $C_p^0 = (d_E/d_E^0) \cdot C_p/w_p$ , где индекс 0 относится к соединению с примитивной ячейкой  $p$ -типа. Справедливость этого предположения легко проверить, используя значения  $S_p$  и  $C_p$ , полученные из спектров КР (табл. 2). Значения динамических зарядов  $\text{GaAs}$  и  $\text{InAs}$  [17] приведены в табл. 3, а  $e_p^*$  и  $C_p^0$ , рассчитанные для максимального содержания упорядоченной фазы  $2x$ , приведены в табл. 2. При этом  $w_3 = x$  и все атомы  $\text{In}$  связаны в упорядоченные комплексы, т.е. низкочастотный оптический фонон ( $236 \text{ см}^{-1}$ ) должен рассматриваться как колебание связи  $\text{In-As}$  упорядоченной фазы. Анализ полученных значений  $e_p^*$  и  $C_p^0$  позволяет сделать следующие выводы. Содержание упорядоченной фазы  $\text{In}_2\text{Ga}_2\text{As}_4$  в исследованных слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  близко к  $2x$ , поскольку значения  $e_1^*$  и  $C_1^0$  близки к соответствующим значениям  $\text{GaAs}$  и уменьшаются при уменьшении  $w_3$ . Кроме того, в упорядоченной фазе имеет место существенное перераспределение электронной плотности в пользу связи  $\text{Ga-As}$ , так как для  $\text{GaAs}$ -моды  $e_3^* > e_{\text{GaAs}}^*$  и  $-C_3^0 > -C_{\text{GaAs}}^0$ , а для  $\text{InAs}$ -моды  $e_2^* < e_{\text{InAs}}^*$  и  $-C_2^0 < -C_{\text{InAs}}^0 = 0.28$  [5]. Возможно также, что часть электронной плотности переносится атомам упорядоченной фазы от  $\text{GaAs}$ -областей твердого раствора, поскольку  $e_1^*$  и  $C_1^0$  несколько меньше  $e_{\text{GaAs}}^*$  и  $-C_{\text{GaAs}}^0$ . Вывод о том, что заряд переносится от  $\text{InAs}$ - к  $\text{GaAs}$ -монослоям, важен, поскольку при таком направлении переноса заряда монослойная сверхрешетка  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  в плоскости  $(100)$  оказывается термодинамически стабильной [21].

## 5. Расчет функции поперечного отклика $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в модели линейной цепочки

Сверхрешеточная структура упорядоченной фазы позволяет воспользоваться для расчетов колебательного спектра  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  моделью линейной цепочки [22]. Различные варианты такой одномерной модели успешно использовались для описания дисперсии фононов вдоль

Таблица 3. Параметры модели линейной цепочки, используемые в расчетах функции поперечного отклика  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$

Параметр	Тип ячейки	
	GaAs	InAs
Внутриячеечная силовая постоянная, $F_n, 10^5$ дин/см	1.36	1.45
Межячеечная силовая постоянная, $f_n, 10^5$ дин/см	0.17	0.02
Динамический заряд, $e_0^*$ [17]	2.2	2.53

симметричных направлений зоны Бриллюэна бинарных полупроводников и сверхрешеток, когда смещения атомов в кристалле можно заменить смещениями соответствующих плоскостей, перпендикулярных волновому вектору фонона [23]. В модели линейной цепочки была рассчитана функция поперечного отклика  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.2$ ) —  $\text{Im}(\epsilon)$ . Нами проводились расчеты для двух конфигураций расположения ячеек GaAs и InAs в цепочке (общее число ячеек было равно 100) неупорядоченной и упорядоченной, содержащей несколько «сверхрешеточных» цепочек —  $\text{InAs-GaAs-InAs-GaAs-InAs}$  — с разным числом ячеек. Силовые постоянные внутриячеечного ( $F_n$ ) и межячеечного ( $f_n$ ) взаимодействия цепочки приведены в табл. 3. Они были рассчитаны исходя из значений частот  $TO_1$ - и  $TO_2$ -фононов, измеренных в спектре КР  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (табл. 2), и дисперсии  $TO$ -фононов GaAs и InAs (16 и  $2 \text{ см}^{-1}$ ) [16]. Вследствие малой дисперсии поперечных оптических фононов в GaAs и InAs  $f_n \ll F_n$  (см. табл. 3). Для удобства сопоставления с функцией  $\text{Im}(\epsilon^e)$ , полученной из экспериментальных спектров, вклад каждой моды линейной цепочки в  $\text{Im}(\epsilon)$  задавался лоренцовым контуром с полушириной  $9 \text{ см}^{-1}$ , нормированным на силу осциллятора данной моды.

Результаты сопоставления функций  $\text{Im}(\epsilon^d)$  и  $\text{Im}(\epsilon^o)$  (здесь  $\epsilon^d$  и  $\epsilon^o$  обозначают диэлектрическую проницаемость неупорядоченной и упорядоченной цепочек) с функцией  $\text{Im}(\epsilon^e)$  представлены на рис. 3, *b*. Видно, что функция  $\text{Im}(\epsilon^o)$  имеет ярко выраженную тонкую структуру на низкочастотном крыле линии фононов GaAs-типа ( $TO_1$ ), обусловленную вкладом  $TO_C$ -фононов сверхрешеточных комплексов. Расчетная частота  $TO_C$ -фонона  $259 \text{ см}^{-1}$  находится в хорошем согласии с экспериментальной, равной  $260 \text{ см}^{-1}$ . Для неупорядоченной цепочки структура, обусловленная  $TO_C$ -фононами, отсутствует. Из рис. 3, *b* также видно, что для фононов InAs-типа ( $TO_2$ ) упорядочение слабо влияет на частоту и интенсивность соответствующего максимума в функции поперечного отклика.

Несмотря на хорошее совпадение значений расчетной и экспериментальной частот  $TO_C$ -фононов, их расчетная интенсивность оказывается существенно меньше экспериментальной. В то же время для фононов InAs-типа расчетная интенсивность оказывается больше экспериментальной. Поскольку вклад каждой моды в функцию  $\text{Im}(\epsilon^\circ)$  пропорционален динамическому заряду  $e_p^*$ , а в расчетах, приведенных на рис. 3, *b*, использовались значения  $e_{p0}^*$ , т.е. InAs и GaAs (табл. 3), отмеченные различия интенсивности колебательных мод означают перенос заряда в сверхрешеточной фазе от InAs- к GaAs-ячейкам, что подтверждает вывод, сделанный нами ранее при анализе значений  $S_p$  и  $C_p$ . Значения динамических зарядов  $(e_p^*)_{LC}$ , при которых функции  $\text{Im}(\epsilon^\circ)$  и  $\text{Im}(\epsilon^e)$  совпадают, приведены в табл. 2. Эти значения качественно согласуются со значениями  $e_p^*$ . Однако для всех мод значения  $(e_p^*)_{LC}$  больше значений  $e_p^*$ . Последнее означает, что модель линейной цепочки занижает амплитуды смещений атомов в ячейках и отражает, на наш взгляд, конечность размеров GaAs- и  $\text{In}_2\text{Ga}_2\text{As}_4$ -областей  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  в направлении, перпендикулярном плоскости сверхрешеточной фазы.

## 6. Заключение

Таким образом, проведенные исследования спектров КР и ИК отражения позволили установить, что оптические фононы двухкомпонентного твердого раствора  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.1-0.3$ ) имеют трехмодовое поведение. Анализ частот и интенсивностей линий, а также расчеты функции поперечного отклика в модели линейной цепочки показали, что наиболее вероятной причиной появления дополнительной полосы оптических фононов на частоте  $\sim 260 \text{ см}^{-1}$  в спектрах КР и ИК отражения является частичное упорядочение кристаллической решетки твердого раствора с образованием монослойной сверхрешетки  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$ .

Авторы выражают благодарность Р.А.Сурису, В.М.Андрееву, В.Д.Румянцеву и Н.Н.Леденцову за полезные обсуждения, а также А.Ш.Тураеву за измерение спектров ИК отражения.

## Список литературы

- [1] T.S. Kuan, W.I. Wang, E.L. Wilkie. Appl. Phys. Lett., **51**, 51 (1987).
- [2] T. Suzuki, A. Gomyo, S. Iijima, K. Kobayashi, S. Kawata, I. Hino, T. Yuasa. Japan. J. Appl. Phys., **27**, 2098 (1988).
- [3] S.R. Kurtz. J. Appl. Phys., **74**, 4130 (1993).
- [4] A. Anastassiadou, Y.S. Raptis, E. Anastassakis. J. Appl. Phys., **60**, 2924 (1986).
- [5] *Light Scattering in Solids, IV*, ed. by M. Cardona, G. Guntherodt (1984) [Topics in Applied Physics (Berlin, Heidelberg, N.Y.-Tokyo: Springer) v. 54].
- [6] A.M. Mintairov, K.E. Smekalin, V.M. Ustinov, V.P. Khvostikov. Sov. Phys. Semicond., **26**, 347 (1992).
- [7] М. Борн, Э. Вольф. *Основы оптики* (М., Наука, 1973).
- [8] M.H. Brodsky, G. Lucovski. Phys. Rev. Lett., **21**, 990 (1968).
- [9] S. Yamazaki, A. Ushirokava, T. Katoda. J. Appl. Phys., **51**, 3722 (1980).
- [10] K. Kakimoto, T. Katoda. Appl. Phys. Lett., **40**, 826 (1982).
- [11] K. Kakimoto, T. Katoda. Japan. J. Appl. Phys., **24**, 1022 (1985).
- [12] T.P. Persal, R. Charles, J.C. Portal. Appl. Phys. Lett., **42**, 436 (1983).
- [13] S. Emura, S. Gonda, Y. Matsui, H. Hayashi. Phys. Rev. B., **38**, 3280 (1988).

- [14] Z.C. Feng, A.A. Allerman, P.A. Barnes, S. Perkowitz. Appl. Phys. Lett., **60**, 1848 (1992).
- [15] J.P. Estrera, P.D. Stevens, R. Glosser, W.M. Duncan, Y.C. Kao, H.Y. Liu, E.A. Beam III. Appl. Phys. Lett., **61**, 1927 (1992).
- [16] *Semiconductors: Group IV Elements and III-V Compounds*, ed by O. Madelung (Berlin etc., Springer, 1991).
- [17] W.A. Harrison. *Electronic Structure and properties of solids* (Freeman, N.Y., 1980).
- [18] G. Ferreira, Su-Huai Wei, A. Zunger. Phys. Rev. B., **40**, 3197 (1989).
- [19] Z.V. Popovic, M. Cardona, E. Richter, D. Strauch, L. Tapfer, K. Ploog. Phys. Rev. B., **40**, 3040 (1989).
- [20] T. Katoda, N. Hara. *Int. Symp. GaAs and Related Compounds* (Las Vegas, Nevada, 1986) [Inst. Phys. Conf. Ser. N 83, Chap. 4, p. 263].
- [21] T. Ohno. Phys. Rev. B., **38**, 13191 (1988).
- [22] A.S. Barker, Jr., A.J. Sievers. Rev. Mod. Phys., **47**, S1 (1975).
- [23] P. Molinas-Mata, A.J. Shields, M. Cardona. Phys. Rev. B., **47**, 1866 (1993).

Редактор Л.В. Шаронова

---