

文章编号:1001-9014(2011)03-0207-05

# 半导体氮化物 AlInN 的光学性质

蒋立峰<sup>1</sup>, 沈文忠<sup>1\*</sup>, 郭其新<sup>2</sup>

(1. 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200240;  
2. 日本佐贺大学应用物理学部, 佐贺 840-8502)

**摘要:**测量了 AlInN 薄膜(包括 InN 和 AlN)的透射和反射光谱,结合四层透射和反射模型得到 AlInN 的一系列变温光学性质,包括吸收系数、能带带隙、Urbach 带尾参数、折射率等等.采用一套经验公式,描述 InN 薄膜在本征吸收区和 Urbach 吸收区的吸收系数.发现带隙以下,AlN 薄膜的折射率遵守 Sellmeier 经验公式.用基于态密度和载流子-声子相互作用的带尾态理论,很好地解释了 AlInN 薄膜中带尾态现象.通过测量显拉曼光谱,研究了 AlInN 薄膜的晶格振动性质.运用详细的模型(考虑了晶格热膨胀、残余应力和多声子耦合),阐释了 AlInN 声子频率的变温特性.了解 AlInN 薄膜的这些光学性质是相当重要的,不仅有利于透彻了解材料的基本性质还有利于相关光电子器件的开发.

**关键词:** AlInN 薄膜;光学性质;温度行为  
**中图分类号:** O469 **文献标识码:** A

## Optical properties of AlInN thin films

JIANG Li-Feng<sup>1</sup>, SHEN Wen-Zhong<sup>1\*</sup>, GUO Qi-Xin<sup>2</sup>

(1. Laboratory of Condensed Matter Spectroscopy and Opto-Electronic Physics, Key Laboratory of Artificial Structures and Quantum Control (Minister of Education), Department of Physics, Shanghai JiaoTong University, Shanghai 200240, China;  
2. Synchrotron Light Application Center, Department of Electrical and Electronic Engineering, Saga University, Saga 840-8502, Japan)

**Abstract:** Transmission and reflection measurements have been carried out on AlInN thin films. With the aid of a detailed procedure developed for analyzing the spectra, we obtained the effects of temperature on the optical properties of AlInN, such as the absorption coefficient, band-gap, Urbach bandtail characteristics, and refractive index. The absorption coefficient of the complete Urbach and intrinsic absorption regions of InN thin films has been described by a series of empirical formulas. The refractive index dispersion of AlN thin films below the band gap can be described by the Sellmeier equation. A bandtail model based on the calculation of density of occupied states and the carrier - phonon interaction has been employed to analyze the bandtail characteristics of AlInN thin films. We have also investigated Raman spectroscopy of AlInN thin films, with the emphasis on temperature dependence of phonon frequencies, which can be described well by a model taking into account the contributions of the thermal expansion of the crystal lattice, the strain between AlInN thin films and sapphire substrates, as well as three-and four-phonon coupling. These optical properties provide an experimental basis for further theoretical investigation and the design of AlInN-based devices.

**Key words:** AlInN thin film; optical property; temperature-dependence  
**PACS:** 78.20.-e

### 引言

半导体 III 族氮化物如 GaN、AlN、InN 以它们合成为器件广阔应用前景,引起了人们极大兴趣<sup>[1]</sup>. InN、AlN 合

AlInN,由于带隙对应于可见—紫外段,使制造 AlInN 短波长半导体二极管、发光二极管、迁移率晶体管等器件.人们已从理论<sup>[8,9]</sup>对 AlInN 进行了研究. Starosta 最早用多靶法合成了

收稿日期:2010-08-29,修回日期:2010-10-08

基金项目:国家自然科学基金(10734020)

作者简介:蒋立峰(1976-),男,博士,副教授,主要从事 AlInN 薄膜的研究.

\* 通讯作者;E-mail:wzshen@sjtu.edu.cn.

Received date: 2010-08-29, revised date: 2010-10-08

E-mail: cooljlf@sjtu.edu.cn.

AllnN 多晶薄膜. AllnN 的带隙值被人们用传统的线性延长方法从吸收光谱上取得<sup>[2]</sup>,但不通过理论模型的计算,简单从 AllnN 低质量吸收边上得到的带隙值是不精确的.

众所周知,InN 薄膜的吸收光谱可以分为两部分:由价带电子跃迁到导带造成的本征吸收区,由电子空穴、电子声子、电子杂质等物理源相互作用引起的瓦尔巴赫吸收区. Shamrell 等人<sup>[3]</sup>通过研究玻璃衬底上 InN 薄膜透射光谱,得到室温下 InN 在本征吸收区的吸收系数(大小在  $10^4 \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$ ). Li 等人<sup>[4]</sup>则从椭圆偏振光谱出发,计算得到室温下 InN 的吸收系数.

折射率是 AlN 薄膜重要的光学性质. 通过研究透射光谱中的干涉条纹, Brunner 等人<sup>[5]</sup>测得室温下能量范围 1.5 ~ 5.5 eV 内 AlN 的折射率位于 2.0 ~ 2.5 之间. 借助椭圆偏振光谱,人们计算出用金属有机化合物气相沉积法生长的 AlN 薄膜的介电函数. 基于介电函数, Huttel<sup>[6]</sup>和 Joo<sup>[7]</sup>等人演绎得到室温下能量范围 1.5 ~ 4.0 eV 之间的 AlN 薄膜的折射率为 2.0 ~ 2.3. Djurisc 等人<sup>[8]</sup>利用 Adachi 模型,从理论上研究了室温下能量范围 6.0 ~ 20.0 eV 内 AlN 的折射率.

带尾态是由结构无序、载流子浓度和载流子同杂质之间相互作用等因素引起,因此了解带尾态等光学性质不仅有利于提高 AllnN 薄膜质量更有利于 AllnN 在器件方面的应用. Yamaguchi 和他的合作者<sup>[2]</sup>研究了室温下用有机金属气相外延生长的 AllnN 薄膜带尾态, Al 的含量从 0.42 ~ 0.86, 但跟 Al 含量有关的带尾变化趋势却跟其用 XRD 方法测得的半缝宽不一致. Grille<sup>[9]</sup>和 Kang<sup>[10]</sup>分别从理论和实验上研究了室温下 AllnN 晶格振动特性.

然而,据我们所知,人们一直没有系统地研究随温度、波长和组分变化的 AllnN 光学性质. 本文,我们通过透射光谱和反射光谱,对不同组分 AllnN 薄膜(包括 InN 和 AlN)进行了详细研究,得到了这些强烈依赖于温度、组分等因素的光学性质.

## 1 实验

实验用的 InN 薄膜样品是在 100℃ 的温度下用磁控溅射方法生长的,衬底为宝石,厚度为 0.47 μm,其透射光谱是在 Jobin Yvon 460 单色仪上测量得到,分辨率为 5 Å. AlN 薄膜样品是用三甲基铝与氨反应的化学方法外延生长的,衬底为宝石,其反射光谱是在同步辐射源下测量得到的. AllnN 薄膜样品

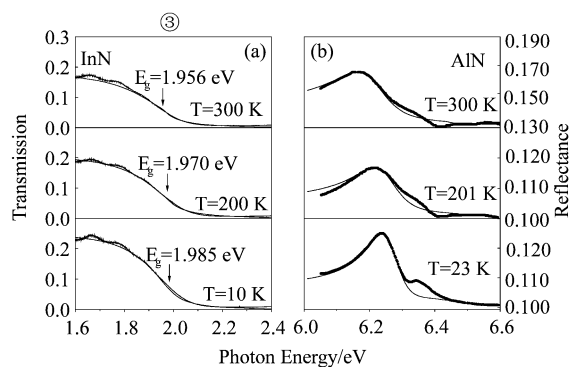


图1 (a) InN 薄膜的变温透射光谱实验曲线(实心圆圈)和理论计算结果(实线),带隙  $E_g$  也表示在图中 (b) AlN 薄膜的变温反射光谱实验曲线(实心圆圈)和理论计算结果(实线)

Fig. 1 (a) Temperature-dependent transmission spectra of InN thin film, with the band-gap energies  $E_g$ ; Experimental results (solid circles); calculated results (curves) (b) Temperature-dependent reflection spectra of AlN thin film; experimental results (solid circles); calculated results (curves)

有 A 和 B 两个系列,均是在 100℃ 的温度下用磁控溅射方法生长的,衬底都为宝石. A 系列是 5 个样品,铝的含量分别为 0, 0.05, 0.25, 0.40 和 1.0, 其相应的厚度为 0.690, 0.380, 0.315, 0.205 和 0.105 μm, 用来研究 AllnN 薄膜的透射光谱,其测量是在 Jobin Yvon 460 单色仪上进行,分辨率为 5 Å. B 系列是 4 个样品,铝的含量分别为 0.26, 0.38, 0.46 和 0.53, 用来研究 AllnN 薄膜的拉曼光谱,其测量是在 Jobin Yvon LabRam HR 800UV, 激发光为 514.5 nm 的氩离子激光器.

## 2 实验结果与讨论

图 1(a) 是 InN 薄膜的变温透射光谱实验和理论曲线,图 1(b) 是 AlN 薄膜的变温反射光谱实验和理论曲线. 为了计算 InN 薄膜的透射光谱理论曲线和 AlN 薄膜的反射光谱理论曲线,我们考虑当光入射到 InN 或 AlN 薄膜时在 3 个界面发生多次反射,即从空气到薄膜(第 1)、从薄膜到透明的宝石衬底(第 2),从衬底到空气(第 3). 这样, InN 的透射光谱理论曲线可以描述为:

$$T_{1,3} = \frac{(1 - R_1)(1 - L)T_{2,3}a_1}{1 - R_1(1 - L)R_{2,3}a_1^2}, \quad (1)$$

AlN 的反射光谱理论曲线可以描述为:

$$R_{1,3} = (1 - L)R_1 + \frac{(1 - L)^2(1 - R_1)^2R_{2,3}a_1^2}{1 - (1 - L)R_1R_{2,3}a_1^2}, \quad (2)$$

$$\text{其中 } T_{2,3} = \frac{(1 - R_2)(1 - R_3)a_2}{1 - R_2R_3a_2^2},$$

$$R_{2,3} = R_2 + \frac{R_3(1 - R_2)^2 a_2^2}{1 - R_2 R_3 a_2^2},$$

$$a_1 = \exp(-\alpha_{film} d_{film}),$$

$$a_2 = \exp(-\alpha_{sapphire} d_{sapphire}).$$

$L$  是光电磁波从真空入射到薄膜表面损失率,  $d$  是薄膜和宝石衬底的厚度,  $R_1$ 、 $R_2$  和  $R_3$  是在 3 个界面的反射率, 表示为:

$$R = \frac{(n_i - n_j)^2}{(n_i + n_j)^2}. \quad (3)$$

折射率跟温度和波长有关, 基于克拉默斯-克勒尼希(Kramers-Kronig)模型, 我们可以算出薄膜折射率的理论值. K-K 模型指出, 带隙附近介电函数实数部分由四项组成<sup>[1]</sup>, 分别来自最低直接能带( $E_0$ )有关的带间跃迁贡献  $\varepsilon_{li}$ ,  $E_0$  附近临界点处激子的贡献  $\varepsilon_{le}$ , 自由载流子的贡献  $\varepsilon_{lf}$ , 和其它高阶带间电子跃迁的贡献  $\varepsilon_{lh}$ . 比如  $E_1$ 、 $E_1 + \Delta_1$  和  $E_2$  跃迁.  $\alpha$  是吸收系数, 半导体带隙附近吸收包括乌尔巴赫吸收和本征吸收两部分, 可表示为

$$\alpha(E) = \begin{cases} \alpha_0 \exp[(E - E_c)/E_U] & E < E_g, \\ \alpha_d (E - E_g')^{1/2} & E \geq E_g. \end{cases} \quad (4)$$

$E_c$  参数对应于在 0K 时最小自由激子能,  $E_U$  为带尾参数,  $E_g'$  参数对应于不考虑带尾影响的带隙值,  $\alpha_d$  和  $\alpha_0$  为材料参数. 在运用透射和反射模型时, 我们没有考虑 Burstein-Moss 效应等影响, 这主要是因为 InN 和 AlN 都是宽带隙半导体材料, 而 B-M 漂移主要是对窄禁带半导体产生作用.

从图 1 我们可以发现理论计算结果与实验数据比较一致, 除了图 1(b) 低温 23K 时, 在本征跃迁区有个小结构没有拟合好. 这主要是因为我们在运用反射模型时, 没有考虑激子在  $\Gamma$  点自旋轨道分裂而引起的贡献<sup>[1]</sup>, 该分裂程度强烈依赖于薄膜残余应变. 通过理论模型的计算, 我们能得到与温度、波长有关的 InN 和 AlN 薄膜的光学性质, 比如说吸收系数  $\alpha$ 、带隙  $E_g$ 、乌尔巴赫带尾参数  $E_U$ 、折射率  $n$ 、消光系数  $k$  和自由电子浓度  $n_e$  等.

图 2(a) 是 InN 薄膜在乌尔巴赫吸收区和本征吸收区变温吸收系数的实验和理论结果, 其理论结果是通过透射模型计算得到的. 发现, 室温下, 带隙附近 InN 薄膜的吸收系数  $2.88 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ , 与其他研究小组通过同样方法测得的 InN 上测得的结果  $3.00 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$  比较相近<sup>[3]</sup>. 我们把 InN 理论计算得到的众多吸收参数, 用经验公式表示为:

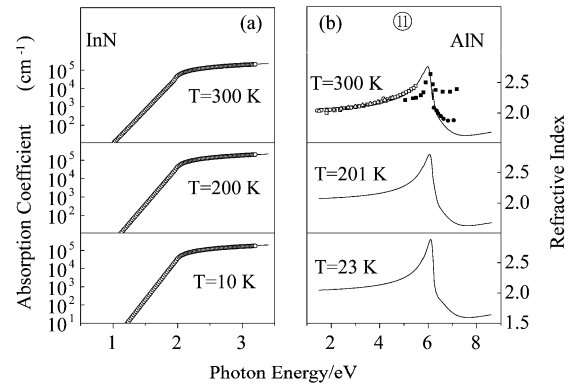


图 2 (a) InN 薄膜的变温吸收系数, 空心圆圈是实验结果, 虚线是乌尔巴赫吸收区的计算结果, 实线是本征吸收区的计算结果 (b) AlN 薄膜的变温折射率, 实线是通过模型计算得到的, 其他文献研究结果也表示在图中

Fig. 2 (a) Temperature-dependent absorption coefficient of the InN thin film. The open circles are the experimental results. The dashed curves represent the calculated Urbach absorption and the solid curves are the calculated intrinsic absorption (b) Temperature-dependent refractive index of the AlN thin film. The solid curves are the values calculated from our model. Also shown are various experimental data reported in the literatures

$$\alpha_0 = 1.5 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$$

$$\alpha_d = 1.65 \times 10^5 + 85.6T \text{ cm}^{-1}$$

$$\alpha_g = \alpha_0 \exp[(E_g - E_c)/E_U] \text{ cm}^{-1}$$

$$E_g(T) = 1.985 - 3.11 \times 10^{-4} T^2 / (580 + T) \text{ eV} \quad (5)$$

$$E_c(T) = 1.891 - 3.19 \times 10^{-4} T^2 / (580 + T) \text{ eV}$$

$$E_g'(T) = 1.950 - 3.21 \times 10^{-4} T^2 / (980 + T) \text{ eV}$$

$$E_U(T) = 92.8 + 4.35 \times 10^{-3} T^{3/2} + 3.41 \coth \frac{425}{T} \text{ meV}$$

由图可见, 通过上述公式计算得到的乌尔巴赫区吸收系数和本征区吸收系数在转折点  $\alpha_g$  处重合的很好; 同时, 吸收系数的整体理论计算结果和实验数据比较一致. 这说明, 我们得到的系列经验公式能很好的用来描述 InN 薄膜性质. 从图可见, 随着温度的升高吸收边向低能端移动, 说明随着温度升高 InN 的带隙变小. 公式(5)列出了用 Varshni 经验公式描述的 InN 薄膜变温带隙  $E_g$ . 我们所得参数  $3.11 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$ 、580K 同其他文献上的参数  $2.45 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$ 、624K 很相近<sup>[11]</sup>. 用此理论模型得到的带隙  $E_g$  已在图 1(a) 中表示, 我们相信, 这比用传统线性延长得到的带隙更可信. 另外两个拟合参数  $E_c$  和

$E'_g$ , 同  $E_g$  有相同的变化趋势. 变温的乌尔巴赫带尾参数  $E_U$  也是一个重要性质, 接下来研究 AlInN 薄膜时, 我们将重点分析.

图 2(b) 给出 AlN 薄膜的变温折射率, 从其他文献[5~8, 12]上得到的室温下的折射率也表示在图上. 文献上的实验结果跟我们实验结果的一致性, 再次证明了我们结果的可信. 从图可见, 不同温度的线形总会在带隙附近出现一个峰值, 我们可以通过 KKT 分析来了解<sup>[1]</sup>:

$$n(\nu) = 1 + \frac{c}{\pi} \int \frac{d\alpha(\nu')}{d\nu'} \log \left( \frac{\nu' + \nu}{\nu' - \nu} \right) d\nu' \quad (6)$$

其中  $\nu'$  和  $\nu$  是光子频率,  $c$  是光速,  $\alpha(\nu')$  是在频率为  $\nu'$  的吸收系数. 在低于带隙处, 随着能量增加  $d\alpha(\nu')/d\nu'$  变大, 从而导致了随着能量增加折射率变大. 当能量接近带隙时, 吸收曲线趋于平坦从而导致了能量高于带隙值后,  $d\alpha(\nu')/d\nu'$  随着能量的增加反而变小. 因此在带隙附近折射率就有个峰值. 在高于带隙后折射率随着能量增加又有一个变大过程, 这主要是跟高阶跃迁有关.

从公式(6), 我们发现 AlN 的折射率是正温度系数, 这是因为 AlN 的带隙是负温度系数. 当温度升高时带隙向低能端移动, 因此公式(6)的积分就变大即折射率变大. 为了能更好的总结 AlN 薄膜折射率随温度和波长变化的规律, 我们可以用 Sellmeier 公式来分析带隙下 AlN 的折射率变化情况:

$$n(\lambda, T)^2 = m_1 + m_2/[1 - (m_3/\lambda)^2] + m_4\lambda^2 \quad (7)$$

其中  $m_1, m_2, m_3$ , 和  $m_4$  是同温度有关的参数,  $\lambda$  是波长单位为  $\mu\text{m}$ . 拟合结果为:

$$\begin{aligned} m_1 &= 3.472 - 7.802 \times 10^{-4} T, \\ m_2 &= 0.742 + 7.700 \times 10^{-4} T, \\ m_3 &= 0.187 - 1.606 \times 10^{-5} T, \\ m_4 &= 0.136 + 8.106 \times 10^{-5} T. \end{aligned} \quad (8)$$

结合公式(7)和(8), 我们就得到带隙  $E_g$  下, 任意温度和任意波长的 AlN 薄膜的折射率.

我们进一步研究了不同 Al 含量的 AlInN 薄膜的透射光谱, 通过透射模型的计算, 我们得到了 AlInN 薄膜的乌尔巴赫带尾  $E_U$ . 建立了一套基于态密度和载流子—声子相互作用的理论<sup>[1]</sup>来研究 AlInN 的带尾态. 定量研究 AlInN 薄膜的带尾态  $E_U$  可以分成 3 项, 即结构无序、载流子杂质之间的相互作用(主要与载流子浓度有关同时与温度有一定关系)以及载流子声子之间的相互作用(主要与温度有

关), 表示为<sup>[1]</sup>:

$$E_U(T) = \frac{1}{2} kU\theta_D + \frac{4\pi^2 Z^2 q^4 m^* L_D^3}{9\sqrt{3}\epsilon^2 \hbar^2} [(1-1/e)n_d + N_{BD}] + F \coth \left( \frac{\hbar\omega_{LO}}{2kT} \right) \quad (9)$$

其中  $k$  是玻尔兹曼常数,  $U$  是同结构无序有关的晶格张量,  $\theta_D$  是 Debye 温度,  $Z$  是杂质电荷,  $\epsilon$  为静电电函数,  $\hbar$  是普朗克常量除以  $2\pi$ ,  $n_d$  是样品中心同颗粒表面载流子浓度差(颗粒边界贡献),  $N_{BD}$  是有效的缺陷电荷浓度(颗粒缺陷贡献),  $F$  是常数,  $\hbar\omega_{LO}$  是长光学声子能量(热运动的贡献),  $L_D$  是 Debye 长度. 公式中第一项是结构无序的贡献, 这一项同温度是没有关系的, 因此对用同样方法长的薄膜材料来说, 这一项是常数.

图 3 是 AlInN 薄膜的变温乌尔巴赫带尾  $E_U$ , 实线是通过公式(9)得到的理论结果. 理论结果很好地解释了实验数据, 说明了我们带尾模型的正确性<sup>[1]</sup>. 从图中, 我们发现, 不同 Al 含量 AlInN 薄膜的  $E_U$  随温度变化的趋势是一致的, 而影响 AlInN 薄膜带尾的三个因素中结构无序起主要作用. 相对而言, 热运动贡献相当小在室温下只有 2.0~4.0meV, 这说明 AlInN 中载流子声子之间的相互作用比较小. 图 3 插图是室温下 AlInN 薄膜的乌尔巴赫带尾  $E_U$  (实心方块), 以及从文献 2 得到带尾值(空心方块). 插图中, 随着 Al 的含量从 0 增加到 0.8, AlInN 薄膜带尾  $E_U$  值也在线性增加, 这种变化同我们用 X 光衍射实验得到 AlInN 的半缝宽的结果是一致的,

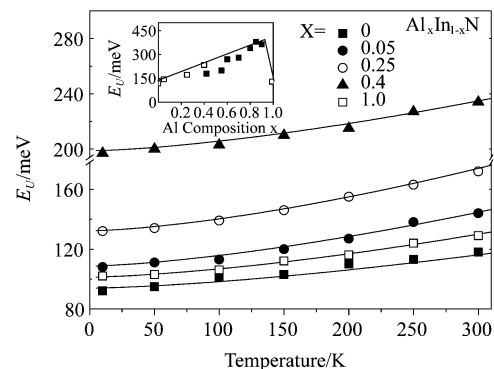


图 3 AlInN 薄膜的变温乌尔巴赫带尾  $E_U$ , 实线是通过公式(9)得到的理论结果. 插图是室温下 AlInN 薄膜的乌尔巴赫带尾  $E_U$  (实心方块), 以及从文献 2 得到的带尾值(空心方块)

Fig. 3 Temperature-dependent Urbach bandtail  $E_U$  of the AlInN thin films, together with theoretical results from Eq. (9). Shown in the inset is the room-temperature Urbach bandtail  $E_U$  (closed squares), together with bandtail data for other AlInN films from Ref. 2 (open squares)

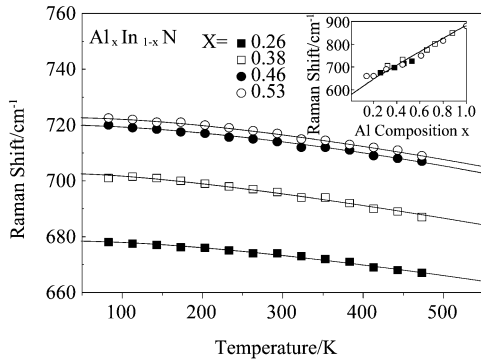


图4 AlInN 薄膜的变温  $A_1$  (LO) 声子模, 实线是用公式(10)和(11)计算得到的理论值; 插图是室温下 AlInN 薄膜的  $A_1$  (LO) 声子模频率随 Al 含量的变化情况, 文献 13 (空心方块)、文献 10 (空心圆圈) 中的  $A_1$  (LO) 声子模实验值, 以及从文献 9 (实线) 上得到的  $A_1$  (LO) 声子模理论计算结果都显示在图上

Fig. 4 Temperature-dependent Raman frequency of the  $A_1$  (LO) in AlInN thin films, together with the theoretical calculation results. Shown in the inset is the phonon frequencies versus Al composition of AlInN, together with experimental data for other AlInN films from Ref. 13 (open squares) and Ref. 10 (open circles), as well as theoretical results from Ref. 9

这主要是由于晶格缺陷和有序增加引起的. 随着 Al 含量的进一步增加, AlInN 的  $E_U$  值逐渐减小趋向于 AlN 的  $E_U$  值. AlInN 薄膜中  $E_U$  的变化趋势跟 AlGaIn 中  $E_U$  的变化趋势是一致的<sup>[5]</sup>.

为了研究 AlInN 薄膜中晶格振动的性质, 我们还测量了 AlInN 薄膜的显微拉曼光谱, 通过洛伦兹 (Lorentz) 拟合, 得到了 AlInN 薄膜的  $A_1$  (LO) 声子模. 图 4 是 AlInN 薄膜的变温  $A_1$  (LO) 声子模. 从图中我们可以发现, 随着温度的增加,  $A_1$  (LO) 声子模频率下降, 我们可通过详细地分析来解释这一实验现象:

$$\omega(T) = \omega_0 + \Delta\omega_e(T) + \Delta\omega_s(T) + \Delta\omega_d(T) \quad (10)$$

其中  $\omega_0$  是光学支的谐振频率,  $\Delta\omega_e(T)$  代表热膨胀的贡献,  $\Delta\omega_s(T)$  代表 AlInN 薄膜和衬底之间晶格失配和热失配的贡献,  $\Delta\omega_d(T)$  代表非谐振项的耦合.

热膨胀贡献表示为  $\Delta\omega_e(T) = -\omega_0\gamma\int_0^T [\alpha_c(T') + 2\alpha_a(T')]dT'$ ,  $\gamma$  是光学模的 Grüneisen 常数,  $\alpha_c$  和  $\alpha_a$  分别是平行和垂直于 AlInN 薄膜  $c$  轴且与温度有关的线性膨胀系数. 晶格失配和热失配贡献表示为  $\Delta\omega_s(T) = [2a - (2C_{13}/C_{33})b]\varepsilon(T)$ ,  $a$  和  $b$  是声子形变势,  $C_{13}$  和  $C_{33}$  是残余应力常数,  $\varepsilon(T)$  是 AlInN 薄膜和衬底之间的应力. 非谐振耦合的贡献表示为

$$\Delta\omega_d(T) = \Delta\omega_{d1}(T) + \Delta\omega_{d2}(T)$$

$$\Delta\omega_{d1}(T) = M_1 \left[ 1 + \frac{1}{\exp(\hbar\omega_1/k_B T) - 1} + \frac{1}{\exp(\hbar\omega_2/k_B T) - 1} \right]$$

$$\Delta\omega_{d2}(T) = M_2 \left\{ 1 + \frac{3}{\exp(\hbar\omega_0/3k_B T) - 1} + \frac{3}{[\exp(\hbar\omega_0/3k_B T) - 1]^2} \right\}$$

(11)

式中的  $M_1$  和  $M_2$  分别是两个拟合常数,  $\Delta\omega_{d1}(T)$  代表布里渊中心区耦合为两个声子的情况 (三声子过程), 必须满足  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_0$ ,  $\Delta\omega_{d2}(T)$  代表布里渊中心区耦合为三个声子的情况 (四声子过程).

结合公式(10)和(11), 我们能计算 AlInN 薄膜的  $A_1$  (LO) 声子模理论值. 图 4 中 AlInN 薄膜的  $A_1$  (LO) 声子模理论曲线与实验结果附合得很好, 说明了声子模型的正确性. 通过进一步研究可以发现, 在频率下降的原因中, 来自于非谐振耦合项的贡献是最主要的. 图 4 中插图是室温下 AlInN 薄膜的  $A_1$  (LO) 声子模频率随 Al 含量的变化情况. 我们发现随着 Al 含量的增加  $A_1$  (LO) 声子模频率逐渐变大, 而且我们的实验值能与文献 10、13 中的实验结果, 以及文献 9 中的理论计算结果相一致.

### 3 结论

我们运用四层透射和反射模型来研究 AlInN 薄膜 (包括 InN 和 AlN) 的变温透射和反射光谱. 得到了 AlInN 的一系列光学性质, 包括吸收系数、带隙、乌尔巴赫带尾参数以及折射率等. 通过分析 AlInN 的这些变温性质, 我们得到了两套经验公式, 分别来描述 InN 包括带尾和本征吸收两个区的吸收系数和带隙下 AlN 薄膜的变温和变波长的折射率. AlInN 薄膜中的带尾态也被用基于态密度和载流子—声子相互作用的带尾态理论很好地解释. 为了研究 AlInN 薄膜中晶格振动的性质, 我们测量了显微拉曼光谱, 发现 Raman 峰随温度增加峰位红移现象, 借助于考虑了晶格热膨胀、残余应力和多声子耦合的模型进行了很好地解释.

### REFERENCES

- [1] Jiang L F, Shen W Z, Ogawa H, *et al.* Temperature dependence of the optical properties in hexagonal AlN[J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **94**:5704—5709.
- [2] Yamaguchi S, Kariya M, Nitta S, *et al.* Anomalous features in the optical properties of  $Al_xIn_{1-x}N$  on GaN grown by metal organic vapor phase epitaxy [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **76**:876—878.
- [3] Shamrell R T, Parman C. Optical properties of reactively sputtered indium nitride thin films [J]. *Optical Materials*, 1999, **13**:289—292.

(下转 241 页)

- vation of silicon solar cells using plasma-enhanced chemical-vapour-deposited SiN films and thin thermal SiO<sub>2</sub>/plasma SiN stacks [J]. *Semicond. Sci. Technol.* 2001, **16**: 164—170.
- [2] Puzder A, Williamson A J, Crossman J C, *et al.* Surface chemistry of silicon nanoclusters [J]. *Physical Review Letters*, 2002, **88**(9):097401-1—097401-4.
- [3] Ma Z X, Liao X B, He J, *et al.* Annealing behaviors of photoluminescence from SiO<sub>x</sub>:H [J]. *Journal of Applied Physics*, 1998, **83**(12):7934—7939.
- [4] Wang Y Q, Kong G L, Chen W D, *et al.* Getting high-efficiency photoluminescence from Si Nanocrystal in SiO<sub>2</sub> matrix [J]. *Applied Physics Letters*, 2002, **81**(22):4174—4176.
- [5] Chiou Y L, Sow C H, Li G, *et al.* Growth characteristics of silicon dioxide produced by rapid thermal oxidation processes [J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **57**(9):881—883.
- [6] Queeney T, Weldon M K, Chang J P, *et al.* Infrared spectroscopic analysis of the Si/SiO<sub>2</sub> interface structure of thermally oxidation silicon [J]. *Journal of Applied Physics*, 2000, **87**(3):1322—1330.
- [7] CHEN Tao, XI Zhen-qiang, YANG De-ren, *et al.* Study of IR Spectrum for Rapid thermal oxidation of silicon dioxide thin film [J]. *Transactions of Materials and Heat Treatment* (陈涛, 席珍强, 杨德仁, 等. 快速热氧化制备二氧化硅薄膜的红外研究. *材料热处理学报*), 2007, **28**(1):5—8.
- [8] ANDRULEVIČIUS Mindaugas, TAMULEVIČIUS Sigita, GNATYUK Yuriy, *et al.* XPS Investigation of TiO<sub>2</sub>/ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> Films Modified with Ag/Au Nanoparticles [J]. *MATERIALS SCIENCE*, 2008, **14**(1):8—14.
- [9] Seah M P, Spencer S J, Ultrathin SiO<sub>2</sub> on Si IV. Intensity measurement in XPS and deduced thickness linearity [J]. *SURFACE AND INTERFACE ANALYSIS*, 2003, **35**: 515—524.
- [10] Wang Shen-wei, YI Li-xin, SU Meng-chan, *et al.* A study of Depositing Amorphous SiO<sub>x</sub> Films vis Magnetron Sputtering by FTIR Method [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis* (王申伟, 衣立新, 苏梦蟾, 等. 红外吸收光谱法研究磁控溅射沉积 SiO<sub>x</sub> 非晶薄膜的过程. *光谱学与光谱分析*), 2007, **27**(3):456—459.
- [11] Burak Ulgut, Sefik Suzer, XPS Studies of SiO<sub>2</sub>/Si System under External Bias [J]. *J. Phys. Chem. B*, 2003, **107**: 2939—2943.
- [12] Arthur A. Tracto Coatings Materials and Surface Coatings [C]. USA: CRC Press, 2006.
- [13] Gracia F, Yubero F, Holgado J P, *et al.* SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> thin films with variable refractive index prepared by ion beam induced and plasma enhanced chemical vapor deposition [J]. *Thin Solid Films*, 2006, **500**, 19—26.
- [14] Zhang Chunbo, Khalil Najafi, Fabrication of thick silicon dioxide layers for thermal isolation [J]. *J. Micromech. Microeng.* 2004, **14**:769—774.
- [15] Vivekanaand Bhatt, Sudhir Chandra, Sushil Kumar, *et al.* Stress evaluation of RF sputtered silicon dioxide film for MEMs [J]. *Indian Journal of pure & applied physics*, 2007, **45**:377—381.
- [16] Ming Fang, Dafei Hu, Jianda Shao, Evolution of stress in evaporated silicon dioxide thin film [J]. *Chinese Optics Letters*, 2010, **8**(1):119—122.

(上接 211 页)

- [4] Li F, Mo D, Cao C B, *et al.* Ellipsometry study of InN thin films prepared by magnetron sputtering [J]. *J. Materials Sci.*, 2001, **12**:725—728.
- [5] Brunner D, Angerer H, Bustarret E, *et al.* Optical constants of epitaxial AlGaIn films and their temperature dependence [J]. *J. Appl. Phys.*, 1997, **82**:5090—5096.
- [6] Huttel Y, Gomez H, Cebollada A, *et al.* Epitaxial growth of AlN on sapphire (0001) by sputtering: a structural, morphological and optical study [J]. *J. Crystal Growth*, 2002, **242**:116—123.
- [7] Joo H Y, Kim H J, Kim S J, *et al.* The optical and structural properties of AlN thin films characterized by spectroscopic ellipsometry [J]. *Thin Solid Films*, 2000, **368**:67—73.
- [8] Djuricic A B, Li E H. Modeling the optical constants of hexagonal GaN, InN, and AlN [J]. *J. Appl. Phys.*, 1999, **85**:2848—2853.
- [9] Grille H, Schmittler Ch, Bechstedt F. Phonons in ternary group-nitride alloys [J]. *Phys. Rev. B*, 2000, **61**:6091—6105.
- [10] Kang T T, Hashimoto A, Yamamoto A. Raman scattering of indium-rich Al<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N: Unexpected two-mode behavior of A<sub>1</sub>(LO) [J]. *Phys. Rev. B*, 2009, **79**:033301(1-4).
- [11] Dmitriev A, Oruzhenikov A. The rate of radiative recombination in the nitride semiconductors and alloys [J]. *J. Appl. Phys.*, 1999, **86**:3241—3246.
- [12] Wethkamp T, Wilmers K, Cobet C, *et al.* Dielectric function of hexagonal AlN films determined by spectroscopic ellipsometry in the vacuum-uv spectral range [J]. *Phys. Rev. B*, 1999, **59**:1845—1849.
- [13] Naik V M, Weber W H, Uy D, *et al.* Ultraviolet and visible resonance-enhanced Raman scattering in epitaxial Al<sub>1-x</sub>In<sub>x</sub>N thin films [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **79**:2019—2021.