

Комбинационное рассеяние света в многослойных структурах с квантовыми точками CdTe в ZnTe

Л. К. Водопьянов¹⁾, В. С. Виноградов, Н. Н. Мельник, Г. Карчевски⁺²⁾

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

⁺Institute of Physics, Polish Academy of Sciences, 02-668 Warsaw, Poland

Поступила в редакцию 27 декабря 2002 г.

Исследованы спектры комбинационного рассеяния в сверхрешетках, состоящих из слоев самоорганизующихся квантовых точек CdTe, разделенных барьерами ZnTe. При увеличении толщины барьеров наблюдался сдвиг всех полос в высокочастотную сторону, что объясняется уменьшением средней по объему всей структуры постоянной решетки. Обнаружены полосы при частоте ТО-моды CdTe 140 см^{-1} , а также при 120 см^{-1} . Первая полоса отождествляется с симметричной кулоновской (пограничной) модой материала квантовой точки, а низкочастотная полоса – с симметричной модой “плененных” в квантовой точке фононов. Такая комбинация мод в структурах с квантовыми точками ранее не наблюдалась.

PACS: 63.22.+m, 78.30.-j, 78.30.Fs

В последнее время наблюдается большой интерес к изучению свойств слоев полупроводниковых материалов, несогласованных по решеточному параметру. В таких слоях создаются благоприятные условия для образования самоорганизующихся квантовых точек (КТ). Много внимания уделяется исследованиям КТ в структурах на основе Ge/Si и соединений III-V (InAs/GaAs, InSb/GaSb и др.). Сравнительно менее изучены физические свойства КТ в структурах на основе полупроводниковых соединений II-VI. Квантовые точки в II-VI структурах были обнаружены в работах [1] при анализе спектров фотолюминесценции. Многослойные структуры с КТ на основе селенидов были подробно изучены в [2–4], где была обнаружена пространственная корреляция между КТ, находящимися в последовательных слоях. Слои с КТ на основе теллуридов изучались в работах [5,6]. Было обнаружено влияние толщины барьеров ZnTe, разделяющих слои с квантовыми точками CdTe, на возникновение корреляций между КТ, находящимися в смежных слоях. Однако вышеуказанные работы посвящены изучению структурных и электронных (фотолюминесценция) свойств КТ структур. Динамика решетки таких структур изучена в меньшей степени. Между тем анализ колебательных спектров дает богатую информацию о физических свойствах таких структур, в частности, об упругих напряжениях, форме КТ, дисперсии фононов и т.д.

В работах [7–9] изучались экспериментально и теоретически колебательные возбуждения в нанокристаллах CdS, CdSe в стеклянной матрице. В спектрах комбинационного рассеяния (КР) наблюдались полосы при частотах LO-фононов CdS, CdSe и их длинноволновые спутники, приписанные пограничным фононам. В работе [10] исследовалось КР в слоях КТ CdSe в ZnSe и наблюдалась другая картина. С низкочастотной стороны от полосы LO-фононов ZnSe была видна полоса пограничных фононов, а также полоса LO-фононов CdSe. Таким образом, спектры КР различных структур с КТ качественно отличаются. По этой причине интересно было исследовать спектры КР структуры из нескольких слоев КТ CdTe, разделенных барьерами ZnTe различной толщины. В спектрах были обнаружены проявления упругих напряжений, меняющихся с толщиной барьера ZnTe. Но наиболее интересный результат состоит в обнаружении новых полос КР, ранее не наблюдавшихся ни в объемных материалах, составляющих структуру, ни в других структурах с КТ. Объяснение этих полос следует ниже.

Сверхрешетки выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке (100) GaAs. На подложку наносился буферный слой CdTe толщиной 4.5 мкм, на который затем наращивалась сверхрешетка, состоящая из 200 периодов слоев CdTe толщиной 2.5 монослоя (МС), разделенных барьерами ZnTe с толщиной, меняющейся от 15 до 75 МС. Выращенные структуры изучались на пропускающем электронном микроскопе (ПЭМ) JEOL 2000 с точечным разрешением 0.27 нм. Анализ изменений ре-

¹⁾ e-mail: vodopian@sci.lebedev.ru

²⁾ G. Karczewski.

шоточных параметров в направлении роста показал, что в изучаемых структурах наблюдаются островки CdTe диаметром 6–10 нм и толщиной порядка 2 нм. Полученные на ПЭМ изображения выявили при некоторой минимальной толщине барьера (25 МС) вертикальную корреляцию между островками CdTe, заключающуюся в том, что следующий островок располагался над нижним, но под углом 40° к направлению роста. Наблюдаемая вертикальная корреляция КТ объясняется упругой анизотропией материала матрицы (ZnTe) [5, 6].

Спектры КР снимались на спектрометре U-1000 в геометрии обратного рассеяния при возбуждении различными линиями Ar²⁺-лазера. Спектральное разрешение составляло 1 см^{-1} .

Типичный спектр КР для свехрешетки В 25 с шириной барьеров ZnTe 25 МС, толщиной слоев КТ 2.5 МС и с числом периодов $N = 200$, снятый при комнатной температуре, представлен на рис.1. В ка-

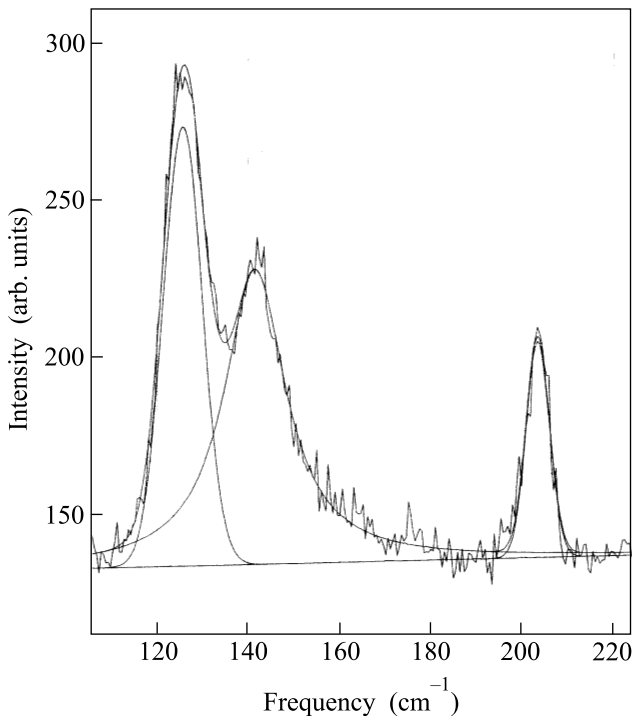


Рис.1. Спектры КР для свехрешетки В25 (ширина барьера 25 МС), снятые при комнатной температуре в геометрии обратного рассеяния при возбуждении линией 4880 Å аргонового лазера. Кривые с шумами – экспериментальный спектр, гладкие кривые – результат контурного анализа

честве возбуждающей использовалась линия 4880 Å Ar-лазера. Для уменьшения уровня фона рассеянного света возбуждающий луч лазера направлялся под углом 40° к поверхности структуры. Рассеянный свет

анализировался в направлении роста структуры (направление z) при осях образца $x \parallel [100]$, $y \parallel [010]$ и $z \parallel [001]$. Согласно правилам отбора, для такой конфигурации разрешено рассеяние только на продольных оптических фононах. На спектре рис.1 проявляются три полосы КР. Высоочастотная полоса при 201 см^{-1} относится, по-видимому, к LO-моду ZnTe, но со сдвинутой на 2 см^{-1} в сторону меньших энергий частотой. Для невозмущенного кристалла ZnTe LO-мода имеет частоту 203 см^{-1} . Две другие наблюдаемые полосы КР попадают в область колебательных возбуждений CdTe. Однако сразу заметно отсутствие полосы КР, соответствующей LO-моду CdTe при 171 см^{-1} . Проявляющаяся на спектре полоса 139 см^{-1} близка к TO-моду CdTe (140 см^{-1}), но активна в КР. Интенсивная низкочастотная полоса при 126 см^{-1} представляется весьма необычной для структур на основе соединений II–VI. Следует отметить, что наблюдаемый спектр КР имеет резонансный характер. Так спектр того же образца В25, снятый при возбуждении линией 5145 Å, повторяет основные черты спектра при 4880 Å, но имеет гораздо меньшую интенсивность.

На рис.2 приведены для сравнения три спектра, снятые при возбуждении линией 4880 Å, от свехрешеток с различными ширинами разделительных

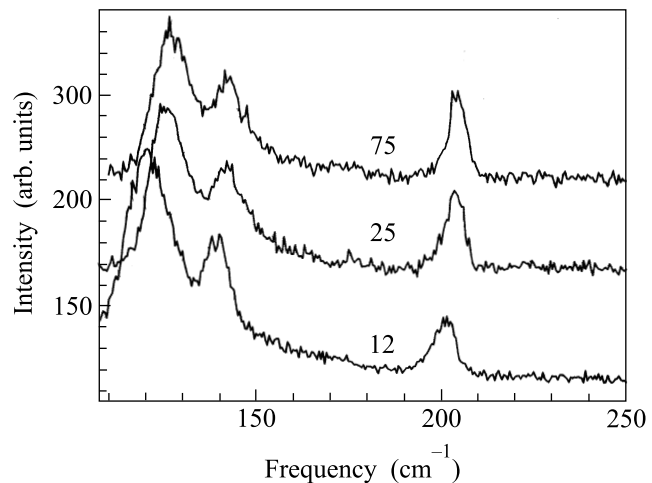


Рис.2. Спектры КР для трех свехрешеток с различными ширинами потенциального барьера: 12 МС, 25 МС и 75 МС. Условия измерения аналогичны рис.1

барьеров ZnTe: 12, 25 и 75 МС. Видно, что с увеличением ширины потенциального барьера все наблюдаемые полосы КР сдвигаются в сторону меньших энергий, что объясняется уменьшением средней по объему всей структуры постоянной решетки.

Используя компьютерную программу разложения полос КР на контуры (рис.1), мы получили точные значения параметров каждой полосы: ее положение на шкале частот, интенсивность и полную ширину на половине максимума (ПШПМ). Следует отметить, что низкочастотная полоса при $\sim 120 \text{ см}^{-1}$ хорошо аппроксимируется кривой Гаусса, в то время как соседняя с ней, более высокочастотная полоса $\sim 140 \text{ см}^{-1}$, имеет форму Лоренца.

Обсудим теперь природу этих полос. Для их объяснения мы пытались применить теорию, развитую в работах [7–9], однако безуспешно. Поэтому мы предприняли повторный анализ задачи. Для описания единым образом колебательных мод решетки в области малых и больших волновых векторов \mathbf{k} надо учесть пространственную дисперсию диэлектрической проницаемости. Сделаем это в простейшем виде:

$$\varepsilon(\omega, \mathbf{k}) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) / [1 - (\omega/\omega_0(\mathbf{k}))^2], \quad (1)$$

где $\omega_0(\mathbf{k})^2 = \omega_0^2 [1 - \gamma(ak)^2]$; $\varepsilon_0, \varepsilon_\infty$ – низкочастотная и высокочастотная диэлектрические константы, ω_0 – частота ТО-фононов в центре зоны Бриллюэна ($\mathbf{k} = 0$), a – постоянная решетки, γ – константа, характеризующая дисперсию. Спектр колебательных возбуждений в однородном веществе описывается соотношением $\omega^2 \varepsilon(\omega, \mathbf{k}) = (ck)^2$. Разрешим это уравнение относительно k^2 и перейдем к пределу $c \rightarrow \infty$ (пренебрежем запаздыванием). Получим два решения: $k^2 = 0$ и $k^2 = q^2$, где $q^2 = [1 - (\omega/\omega_0)^2] / a^2 \gamma$. Для решения неоднородной задачи о КТ, которую мы представим в виде сферы с радиусом R , следует сделать замену: $k^2 \rightarrow -\Delta$. Тогда для длинноволновых (кулоновских) мод получим уравнение Лапласа $\Delta\varphi = 0$, а для коротковолновых (“механических”) мод – волновое уравнение $(\Delta + q^2)\varphi = 0$, где φ – (квази)электростатический потенциал. Далее задача решается стандартным образом. Для продольных мод на границе сферы требуется непрерывность потенциала и индукции, а для поперечных – потенциала и поперечных компонент электрического поля. Последним случаем мы интересоваться не будем, так как он приводит к крутильным модам, не активным в КР. Для решения задачи о продольных модах потенциал разлагается по сферическим функциям Y_{Lm} . Радиальная часть потенциала в случае кулоновских мод описывается функциями r^L внутри и $r^{-(L+1)}$ – вне сферы; в случае “механических” мод – сферическими функциями Бесселя $j_L(z)$ внутри и $h_L^{(2)}(z)$ или $(\pi/2z)^{1/2} K_{L+1/2}(z)$ – вне сферы [11]. Для кулоновских мод граничные условия приводят к следующему дисперсионному соотношению:

$$\varepsilon_i(0, \omega)L = \varepsilon_e(0, \omega)(L + 1), \quad (2)$$

где индексами i, e мы обозначаем параметры материала, соответственно, внутри и вне сферы. Наибольший вклад в КР дают моды с вращательным моментом $L = 0$. В этом случае уравнение (2) имеет следующие решения. Первое, когда $\varepsilon_i(0, \omega) = \infty$, $\omega = \omega_{0i} \equiv \omega_{\text{ТО}}(\text{CdTe})$; второе, когда $\varepsilon_e(0, \omega) = 0$, $\omega = \omega_{\text{ЛО}}(\text{ZnTe})$. Таким образом, хотя мода $\omega = \omega_{0i}$ является продольной, ее частота совпадает с частотой поперечных колебаний внутри сферы. Это происходит потому, что возникающий при колебаниях симметричный заряд на поверхности сферы не создает (по теореме Гаусса) электрического поля внутри. Наоборот, этот заряд влияет на колебания материала вне сферы, что приводит к появлению моды с частотой ЛО-колебаний. Сказанное справедливо и для сфероида. Отметим, что обе эти моды не присутствуют в теоретическом рассмотрении работ [7–9]. Для продольных “механических” мод, в случае значительного частотного разделения оптических мод материалов внутри и вне сферы, граничное условие приводит к уравнению

$$j_L(q_i R) = 0. \quad (3)$$

Это соотношение описывает квантование фононов, “пленных” в КТ. Оно было получено в работах [7, 8]. Однако там оно имеет другой смысл, ибо отнесено к зоне продольных колебаний.

Отождествив наблюдаемую полосу при 140 см^{-1} с симметричной модой $\omega = \omega_{0i}$, а полосу 120 см^{-1} с “пленным” фононом, можно оценить параметр γ_i . Взяв в (3) $L = 0$, получим $1 - (\omega/\omega_{0i})^2 = \gamma_i(n\pi a_i/R)^2$ ($n \neq 0$). Положив в этом соотношении $\omega_{0i} = 140 \text{ см}^{-1}$, $\omega = 120 \text{ см}^{-1}$, $n = 1$, $a_i = 6.481 \text{ \AA}$, $R = (w^2 h)^{1/3}$, $w = 30 \div 50 \text{ \AA}$, $h = 10 \text{ \AA}$ – полуширина и полувысота КТ, получим $\gamma_i = 0.28 \div 0.55$.

Что касается симметричной моды квантовой точки $\omega = \omega_{\text{ЛО}}(\text{ZnTe})$, то ее полоса, по-видимому, накладывается на полосу дипольной моды с той же частотой $\omega = 200 \text{ см}^{-1}$ и не разрешена в данном эксперименте. По-видимому, она наблюдается в CdSe/ZnSe [10].

Таким образом, в данной работе в сверхрешетках с квантовыми точками CdTe/ZnTe наблюдались колебательные моды с частотой 140 и 120 см^{-1} . Первая из них отождествлена с симметричной кулоновской (пограничной) модой материала КТ (CdTe), а вторая – с частотой 120 см^{-1} – с симметричной модой “пленных” в КТ фононов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проект # 03-02-7110.

1. V. S. Bagaev, V. V. Zaitsev, V. V. Kalinin et al., *Sol. St. Comm.* **88**, 777 (1993).
2. L. Krestnikov, M. Strassburg, M. Caesar et al., *Phys. Rev.* **B60**, 8695 (1999).
3. N. Peranio, A. Rosenauer, D. Gertsen et al., *Phys. Rev.* **B61**, 16015 (2000).
4. D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gertsen et al., *Phys. Rev.* **B61**, 16819 (2000).
5. G. Karczewski, S. Mackowski, M. Kutrowski et al., *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3011 (1999).
6. S. Mackowski, G. Karczewski, T. Wojtowicz et al., *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3884 (2001).
7. M. P. Chamberlain, C. Trallero-Giner, and M. Cardona, *Phys. Rev.* **B51**, 1680 (1995).
8. C. Trallero-Giner, A. Debernardi, and M. Cardona, *Phys. Rev.* **B57**, 4664 (1998).
9. F. Comas, C. Trallero-Giner, N. Studart et al., *Phys. Rev.* **B65**, 073303 (2002).
10. H. Rho, H. E. Jackson, S. Lee et al., *Phys. Rev.* **B61**, 15641 (2000).
11. М. Абрамовиц, И. Стиган, *Справочник по специальным функциям*, М.: Наука, 1979 (M. Abramowitz and I. Stegun, *Handbook of mathematical functions*, National Bureau of Standards, 1964).