

# Анизотропия длинноволновых оптических фононов в сверхрешетках GaAs/AlAs

В. А. Володин<sup>+\*1)</sup>, М. П. Синюков<sup>+</sup>

<sup>+</sup>Институт физики полупроводников им. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

<sup>\*</sup>Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 6 марта 2014 г.

Методом спектроскопии комбинационного рассеяния света исследована угловая анизотропия оптических фононов в сверхрешетках GaAs/AlAs (001). При этом применялись геометрии рассеяния, разрешенные для фононов с волновым вектором, направленным по нормали к сверхрешетке и вдоль ее слоев. Экспериментально подтверждено теоретически предсказанное смешивание локализованных в слоях GaAs продольных мод LO1 с поперечными модами TO1, в которых атомы смещаются по нормали к сверхрешетке. Эти моды обладают заметной угловой анизотропией. Угловая анизотропия поперечных мод, в которых атомы смещаются в плоскости сверхрешетки, мала.

DOI: 10.7868/S0370274X1407008X

Достижения современных технологий эпитаксии дают возможность контролируемого роста различных материалов с точностью до одного монослоя (МС, *monolayer*, ML). Это позволяет создавать гетероструктуры с искусственно задаваемым периодом в направлении роста – так называемые сверхрешетки (СР) [1]. Такие структуры можно рассматривать как рукотворный кристалл, в примитивной ячейке которого содержится несколько атомов. Количество последних определяется периодом СР. Модификация структуры приводит и к модификации фононного спектра СР. Это прежде всего эффект “свертки” акустических фононных мод и эффект локализации оптических мод, наблюдавшиеся с использованием метода спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) [2–7].

Слоистые структуры и СР являются объектами с выделенным направлением. Поэтому в них должна проявляться угловая анизотропия дисперсии электромагнитных волн [8]. Кулоновское взаимодействие влияет на частоты фононных мод с волновыми векторами больше  $100 \text{ см}^{-1}$ , так как в этом случае можно пренебречь эффектами запаздывания вследствие конечности скорости света [9]. Согласно расчетам учет кулоновского взаимодействия приводит к сильной угловой анизотропии в СР для оптических мод, обладающих большим дипольным моментом [10]. Так как большинство полупроводниковых гетероструктур непрозрачно в видимом свете, при

исследовании их методом КРС применяется геометрия обратного или квазиобратного рассеяния. При этом фотоны взаимодействуют с квазичастицами с направлением импульса, перпендикулярным слоям СР. Для исследования угловой анизотропии фононов необходимо изготавливать мембраны (вытравливая подложку) для использования геометрии рассеяния вперед (*forward scattering*) [11]. Поэтому экспериментальных работ по исследованию угловой анизотропии фононов крайне мало. Вместе с тем остается актуальной задачей физики твердотельных наноструктур.

С развитием экспериментальной техники и совершенствованием приборов для исследования КРС на микрообъектах (*micro-Raman*) появилась возможность применения геометрии рассеяния, в которой волновой вектор света не только перпендикулярен слоям СР, но и лежит в плоскости СР при освещении ее с “торца” [12–15]. Исследуемая сверхрешетка GaAs/AlAs была выращена с помощью метода молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs с ориентацией (001). Сначала выращивались толстые буферные слои GaAs (100 нм) и AlAs (50 нм), затем – чередующиеся слои AlAs и GaAs (103 периода), толщины которых составляли по 7 МС (2 нм). Угловая анизотропия фононов исследовалась в геометрии обратного рассеяния. Все спектры регистрировались при комнатной температуре при возбуждении линией аргонового лазера 514.5 нм. Пространственное разрешение определялось размерами лазерного пучка в фокусе. Оно составляло величину меньше од-

<sup>1)</sup>e-mail: volodin@isp.nsc.ru

ного микрометра. Мощность излучения, доходящего до образца, равнялась 1 мВт, что не вызывало заметного нагрева образцов. В экспериментах использовалось оборудование научно-образовательного комплекса “Наносистемы и современные материалы” НГУ – спектрометр T64000 производства Horiba Jobin Yvon с приставкой для микроскопических исследований КРС на базе микроскопа Olympus.

На рис. 1 показан спектр СР GaAs<sub>7</sub>/AlAs<sub>7</sub>, для случая, когда волновые векторы падающего и рас-

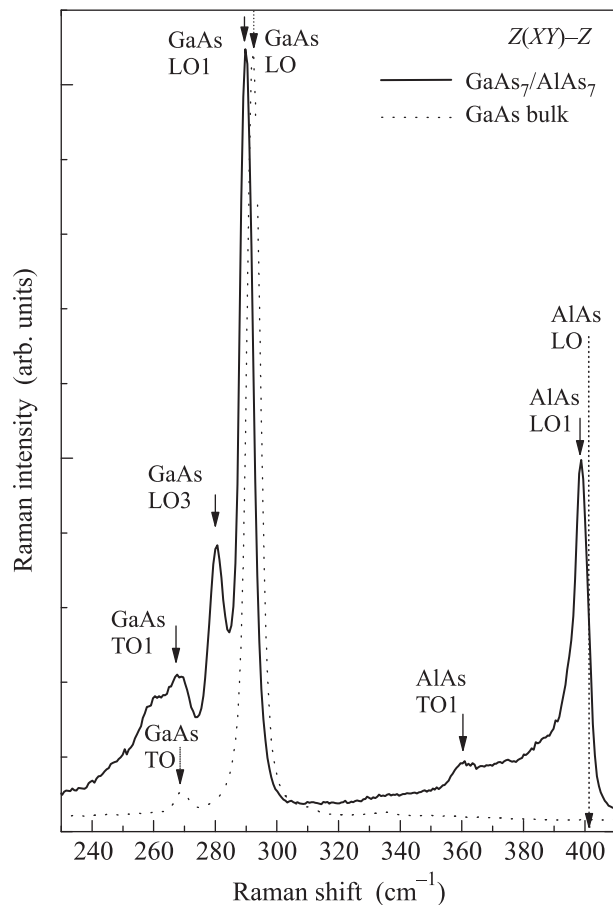


Рис. 1. Спектры комбинационного рассеяния света для сверхрешетки GaAs<sub>7</sub>/AlAs<sub>7</sub> и объемного GaAs. Волновой вектор света направлен по нормали к поверхности

сеянного фотона перпендикулярны плоскости образца. В спектре отчетливо наблюдаются пики, свидетельствующие о квантовании фононного спектра. Для сравнения там же приведен спектр объемного арсенида галлия. Спектры получены в геометрии  $Z(XY)-Z$ . Здесь и далее оси в скобках соответствуют направлению поляризации вектора напряженности электрического поля падающей и рассеянной электромагнитных волн, а оси вне скобок обозначают направления их волновых векторов. Оси  $X$ ,

$Y$  и  $Z$  параллельны кристаллографическим направлениям (100), (010) и (001) соответственно. В случае обратного рассеяния от поверхности (001) разрешенными для кристаллов с решетками типа цинковой обманки и алмаза являются только продольные моды. Для фононов, в которых атомы смещаются вдоль направлений  $X$ ,  $Y$  и  $Z$ , компоненты тензора КРС ( $D_{\alpha\beta}$ ) имеют вид

$$\text{TO}_X \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix}, \quad \text{TO}_Y \begin{pmatrix} 0 & 0 & d \\ 0 & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

$$\text{LO}_Z \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

где  $d$  определяется дифференциальной поляризуемостью связей при изменении их длины либо угла между ними [1, 7, 16]. В соответствии с правилами отбора интенсивность КРС пропорциональна  $(Es_\alpha D_{\alpha\beta} Ei_\beta)^2$ , где  $Ei$  – вектор поляризации падающего света, а  $Es$  – рассеянного. Если оба эти вектора лежат в плоскости ( $XY$ ), то интенсивность рассеяния для мод  $\text{TO}_X$  и  $\text{TO}_Y$  равна нулю. Вместе с тем, в спектрах видны пики от локализованных поперечных оптических мод первого порядка ( $\text{TO1}$ -моды) от AlAs и GaAs и  $\text{TO}$ -моды объемного GaAs. Это связано со смягчением правил отбора, которое может быть обусловлено несколькими причинами, в частности отклонением волновых векторов фотонов от нормали (объектив микроскопа собирает рассеянный свет в пределах большого телесного угла). Интенсивность разрешенных продольных мод гораздо больше. В спектре на рис. 1 можно наблюдать пики от локализованных в слоях GaAs и AlAs продольных оптических мод первого порядка ( $\text{LO1}$ ), а для GaAs – еще и моду более высокого порядка ( $\text{LO3}$ ). Номер моды соответствует количеству полуволин оптических колебаний, укладывающихся в пределах слоя. При этом в случае нерезонансного КРС четные моды запрещены правилами отбора [1, 4]. Вблизи центра зоны Бриллюэна дисперсия оптических фононов такова, что их частота уменьшается с ростом волнового вектора. Поэтому сдвиг частот  $\text{LO1}$ -мод свидетельствует о локализации (квантовании) оптических фононов. Разница частот  $\text{LO1}$ -моды в слоях GaAs СР и  $\text{LO}$ -моды в объемном GaAs составляет  $2 \text{ см}^{-1}$ . Это согласуется с приближенным выражением  $\Delta\omega(\text{LO1}) \cong 100/n^2$ , где  $n$  – число монослоев GaAs [1]. Сдвиг частоты  $\text{LO1}$ -моды в слое AlAs по сравнению с частотой  $\text{LO}$ -фонона в объемном AlAs ( $401.5 \text{ см}^{-1}$  [17]) составляет

2.5 см<sup>-1</sup>. Таким образом, в слоях GaAs и AlAs наблюдается квантование оптических фононов.

Основной результат работы представлен на рис. 2. Здесь приведены спектры для случая, когда волно-

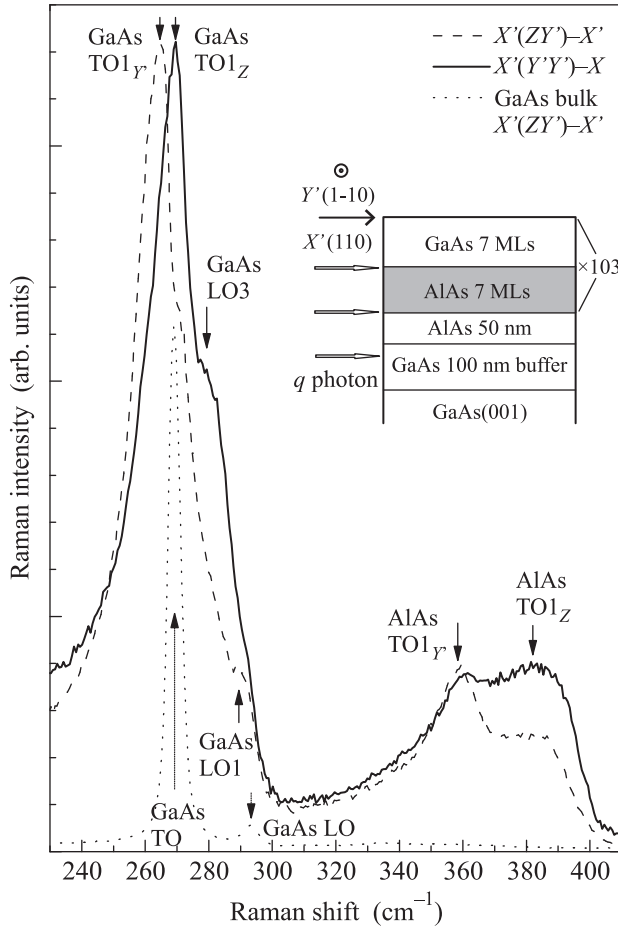


Рис. 2. Спектры комбинационного рассеяния света для сверхрешетки GaAs<sub>7</sub>/AlAs<sub>7</sub> и объемного GaAs. Волновые векторы падающего и рассеянного света направлены вдоль слоев сверхрешетки. Вставка иллюстрирует рисунок, поясняющий используемые геометрии рассеяния по отношению к кристаллографическим направлениям

вые векторы падающего и рассеянного света лежат в плоскости CP. Тензоры КРС для фононов, в которых атомы смещаются вдоль направлений X', Y' и Z, теперь имеют вид:

$$\begin{aligned}
 LO_{X'} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & d \\ 0 & 0 & d \\ d & d & 0 \end{pmatrix}, \quad TO_{Y'} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -d \\ 0 & 0 & d \\ -d & d & 0 \end{pmatrix}, \\
 TO_Z \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.
 \end{aligned}$$

Направления осей X' и Y' есть кристаллографические направления (110) и (1-10) соответственно. Отметим, что так как волновой вектор теперь направлен вдоль оси X', фонон с направлением смещения атомов вдоль оси Z уже является поперечным, а не продольным. В данной геометрии фонон LO<sub>x</sub> запрещен во всех поляризациях. Фонон TO<sub>Z</sub> разрешен только в геометрии X'(Y'Y') - X', а фонон TO<sub>Y'</sub> - только в геометрии X'(ZY') - X'. Это позволило регистрировать указанные моды по отдельности. На рис. 2 приведены спектры, полученные в геометриях X'(ZY') - X' и X'(Y'Y') - X'. Для сравнения там же приведен спектр объемного GaAs в геометрии X'(ZY') - X'. В нем видны пик от разрешенной ТО-моды и небольшой пик от запрещенной LO-моды. В геометрии X'(Y'Y') - X' спектр объемного GaAs полностью аналогичен показанному на рисунке спектру GaAs в геометрии X'(ZY') - X' (как и следует из правил отбора). Поэтому на рисунке он не показан. Частоты TO<sub>Y'</sub> моды (рис. 2) и TO<sub>1</sub>-моды (рис. 1) близки, так как в обоих случаях эти моды являются поперечными, а атомы в них смещаются вдоль слоев CP. Это согласуется с расчетами, в соответствии с которыми данные моды практически не обладают угловой анизотропией [10, 11]. С другой стороны, в геометрии, разрешенной для поперечной моды с направлением атомных смещений вдоль оси Z (по нормали к слоям CP) частота TO<sub>1Z</sub>-моды в слоях GaAs сдвигается на 5 см<sup>-1</sup> (рис. 2) и составляет 270 см<sup>-1</sup>, что даже больше частоты ТО-моды. Согласно расчетам [11] этот сдвиг обусловлен тем, что в CP GaAs/AlAs (001) TO<sub>1z</sub>-мода перемешана с продольной LO<sub>x</sub>-модой вследствие кулоновского взаимодействия между катионами Ga и анионами As. Кроме того, на рис. 2 видна особенность с частотой, чуть большей частоты пика TO<sub>1Z</sub>, которую можно интерпретировать как рассеяние в данной геометрии моде LO<sub>3</sub>. Если сравнить частоту этой моды с частотой моды LO<sub>3</sub>, в которой атомы смещаются по нормали к CP (рис. 1), то она окажется несколько меньше (примерно на 2 см<sup>-1</sup>). Это также совпадает с расчетными данными, согласно которым мода LO<sub>3</sub> тоже обладает угловой анизотропией [11]. Пики от фононов TO<sub>1Z</sub> и TO<sub>1Y'</sub>, локализованных в слоях AlAs, также присутствуют в спектрах на рис. 2, причем в обеих поляризационных геометриях (правда с разными интенсивностями), что противоречит правилам отбора для идеальных CP. Это противоречие является предметом дальнейших исследований

Отметим, что волновой вектор фононов, передающих при обратном рассеянии фотону практически его удвоенный импульс, в нашем случае составляет

$10^6 \text{ см}^{-1}$  [18]. Это гораздо больше предела, при котором необходимо учитывать эффекты запаздывания кулоновского взаимодействия (как отмечалось выше, этот предел составляет порядка  $10^2 \text{ см}^{-1}$ ), но все же на порядок меньше границы зоны Бриллюэна в направлении роста СР и на два с лишним порядка меньше границы зоны Бриллюэна в латеральных направлениях. Поэтому исследуемые в нашем случае фононы являются длинноволновыми.

Таким образом, в настоящей работе экспериментально подтверждена угловая анизотропия локализованной поперечной оптической моды, в которой атомы смещаются в направлении перпендикулярном слоям СР.

Авторы благодарны А.И. Торопову за предоставленные сверхрешетки и В.А.Сачкову за полезные дискуссии.

- 
1. *Light Scattering in Solids V. Superlattices and Other Microstructures*, ed. by M. Cardona and G. Guntherodt, Springer Verlag, Berlin (1989), 335 с.
  2. B. Jusserand, D. Paquet, J. Kervarec, and A. Regreny, *J. de Phys.* **45**, C5-145 (1984).
  3. C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoc, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B* **31**, 2080 (1985).
  4. M. Cardona, *Superlattices and microstructures* **5**, 27 (1989).
  5. А. П. Шебанин, В. А. Гайслер, Т. В. Курочкина, Н. Т. Мошегов, С. И. Стенин, А. И. Торопов, *Письма в ЖЭТФ* **49**, 349 (1989).
  6. В. А. Гайслер, *Спектроскопия комбинационного рассеяния света слоистых полупроводниковых структур*, дис. на соискание степени д-ра ф-м наук, Новосибирск (1996).
  7. N. N. Ledentsov, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, I. P. Soshnikov, V. A. Shchukin, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zukov, V. A. Volodin, M. D. Efremov, V. V. Preobrazhenskii, B. P. Semyagin, D. Bimberg, and Zh. I. Alferov, *J. Electronic Materials* **30**, 463 (2001).
  8. С. М. Рытов, *ЖЭТФ* **29**, 605 (1955).
  9. М. Борн, Х. Кунь, *Динамическая теория кристаллических решеток*, Изд-во иностр. лит-ры (1958), 488 с.
  10. Sh.-F. Ren, H. Chu, and Y.-Ch. Chang, *Phys. Rev. B* **37**, 8899 (1988).
  11. Д. А. Тэнне, В. А. Гайслер, Н. Т. Мошегов, А. И. Торопов, А. П. Шебанин, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 50 (1998).
  12. В. А. Володин, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 483 (2009).
  13. В. А. Володин, *ФТТ* **53**, 377 (2011).
  14. В. А. Володин, *Письма в ЖЭТФ* **95**, 76 (2012).
  15. V. A. Volodin, M. P. Sinyukov, V. A. Sachkov, M. Stoffel, H. Rinnert, and M. Vergnat, *Europhysics Lett.* **105**, 16003 (2014).
  16. D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, G. A. Ljubas, V. V. Bolotov, V. A. Efremov, V. V. Preobrazhenskii, B. R. Semyagin, and I. P. Soshnikov, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 1080 (2002).
  17. D. J. Lockwood, G. Yu, and N. L. Rowel, *Sol. State Comm.* **136**, 404 (2005).
  18. В. А. Володин, М. Д. Ефремов, В. А. Сачков, *ЖЭТФ* **130**, 739 (2006).