

## ЛАТЕРАЛЬНАЯ ЛОКАЛИЗАЦИЯ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В КВАНТОВЫХ ОСТРОВКАХ GaAs

М.Д.Ефремов, В.А.Володин<sup>1)</sup>, В.А.Сачков<sup>+</sup>, В.В.Преображенский,  
Б.Р.Семягин, В.В.Болотов<sup>+</sup>, Е.А.Галактионов\*, А.В.Кретинин\*

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН  
630090 Новосибирск, Россия

<sup>+</sup>Институт сенсорной микроэлектроники Сибирского отделения РАН  
644077 Омск, Россия

\*Новосибирский государственный университет  
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 2 июня 1999 г.

Методом комбинационного рассеяния света (КРС) обнаружена латеральная локализация фононов в островках GaAs, формирующихся на поверхности (100) в условиях структурной реконструкции ( $2 \times 4$ ). Триплетная структура пика, соответствующая латерально локализованным фононам, выявлена в спектрах КРС сверхрешетки GaAs<sub>0,6</sub>/AlAs<sub>5</sub> выращенной методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Сравнение теоретических спектров КРС, рассчитанных в приближении поляризуемости связи Волькенштейна, с экспериментальными спектрами позволило определить распределение островков по различным конфигурациям. Атомарная конфигурация островков совпадает с ранее известными результатами, полученными методом сканирующей туннельной микроскопии. Согласно расчетам, 70% островков содержат менее 18 атомов Ga, а латеральная локализация происходит при толщине барьеров AlAs в 2 монослоя и более.

PACS: 63.20.Pw

Свойства квантоворазмерных объектов, создаваемых на основе молекулярно-лучевой гетероэпитаксии полупроводников типа A<sup>III</sup>-B<sup>V</sup>, во многом зависят от структурного качества гетерограниц. Рост слоев в условиях структурной реконструкции поверхности задает атомарный рельеф гетерограницы, что может драматически изменять свойства сверхрешеток с ультратонкими слоями материалов. В последние годы вопросам выявления механизмов реконструкции поверхности (100) GaAs и определению структуры атомарных конфигураций на ней уделяется большое внимание. Достижения в этой области, прежде всего, связаны с развитием прямых методов исследования структуры поверхности: сканирующей туннельной микроскопии, атомно-силовой микроскопии и высокоразрешающей электронной микроскопии. Так, по данным сканирующей туннельной микроскопии и дифракции быстрых электронов было установлено, что реконструкция ( $2 \times 4$ ) поверхности (001) GaAs представляет собой высокоупорядоченные цепочки димеров мышьяка, вытянутые вдоль направления  $[1\bar{1}0]$  [1–3]. Прямыми наблюдениями с помощью сканирующей туннельной микроскопии было обнаружено, что при субмонослойном покрытии галлием реконструированной поверхности GaAs(001)-(2×4), атомы галлия формируют квантовые островки, вытянутые вдоль направления  $[1\bar{1}0]$ . Ширина островков в направлении  $[100]$  составляет 2 межатомных расстояния, и наиболее стабильными

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

из них являются островки, содержащие 6 и менее димеров Ga [4]. Особый интерес представляет вопрос о том, насколько структурная реконструкция поверхности определяет атомарную структуру гетерограницы (поскольку сохранение структуры поверхности в процессе гетероэпитаксиального роста не является очевидным) и определяет фоновые свойства полученных гетероструктур. Решению данного вопроса и посвящена настоящая работа.

В силу различия частот оптических колебаний атомов в материалах GaAs, AlAs оптические фононы локализируются в пределах слоя одного материала с глубиной затухания монослоя в соседних слоях [5]. Частота локализованных фононов зависит от характерного размера объекта [6–8], что позволяет определить его с атомарной точностью по данным спектроскопии комбинационного рассеяния света [5–8]. Однако в силу слабой интенсивности нерезонансного КРС невозможно изучать отдельный объект, и для увеличения сигнала необходимо создать большой ансамбль квантово-размерных объектов. До сих пор исследования фоновых свойств островков GaAs, полученных при субмонослойном росте в условиях структурной реконструкции поверхности, не проводились. Можно ожидать, что латеральная локализация фононов в островках приведет к модификации спектра КРС, так как наиболее сильный сдвиг частоты фононов проявляется, когда размеры квантовых объектов GaAs составляют несколько межатомных расстояний [9–13].

Исследуемые сверхрешетки GaAs<sub>0.6</sub>/AlAs<sub>5</sub> были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на полуизолирующей подложке GaAs(001) с буферным эпитаксиальным слоем GaAs толщиной 0.1 мкм. Температура подложки составляла 550°C. Перед каждой стадией открытия потока галлия рост на некоторое время прерывался, и поверхность AlAs некоторое время выдерживалась в условиях, предпочтительных для реконструкции (2 × 4). Состояние поверхности контролировалось методом дифракции быстрых электронов. После прерывания потока атомов галлия структура выдерживалась некоторое время в вакууме, чтобы "выжили" стабильные конфигурации островков GaAs на поверхности слоя AlAs. Толщина чередующихся слоев GaAs и AlAs была 0.6 и 5 монослоев, соответственно. Сверхрешетка GaAs<sub>0.6</sub>/AlAs<sub>5</sub> содержала 400 периодов и была покрыта сверху защитным слоем GaAs толщиной 4 нм. Фононный спектр полученных объектов исследовался с помощью спектроскопии КРС. Спектры регистрировались при комнатной температуре в геометрии обратного рассеяния  $Z[XY]\bar{Z}$  на автоматизированной установке на базе монохроматора ДФС-52. КРС возбуждалось линиями Ar-лазера.

На рис.1 приведены спектры КРС сверхрешетки GaAs<sub>0.6</sub>/AlAs<sub>5</sub> при возбуждении линиями Ar-лазера 514.5, 496.5, 488 и 476.5 нм. Пик в районе 290 см<sup>-1</sup>, видимый во всех спектрах, соответствует КРС на длинноволновых LO-фононах в GaAs подложке, что говорит о том, что сверхрешетка полупрозрачна на используемых длинах волн. Для всех длин волн возбуждения сигнал КРС, соответствующий рассеянию на LO-фононе, локализованном в GaAs, имеет триплетную структуру (пики 1–3). Поперечные оптические фононы не активны в КРС от поверхности (001) [5]. Положение пика 258 см<sup>-1</sup> соответствует первой локализованной моде для продольных фононов в слое GaAs с эффективной толщиной 0.6 монослоя. Естественно предположить, что появление дополнительных фононных мод с различающимися частотами обусловлено латеральной структурой квантовых объектов GaAs. Частота пика 2 отличается от частоты пика 1 на 7.5 см<sup>-1</sup>, а различие частот пиков 3 и 2 составляет 5.5 см<sup>-1</sup> для

всех длин волн возбуждения КРС. По этим параметрам можно провести оценки латеральных размеров объектов GaAs, которые составляют 2–3 постоянных решетки. Необходимо отметить, что структура наблюдаемых спектров КРС не различалась при сканировании по поверхности сверхрешетки, что говорит о ее однородности и устойчивости формируемых квантовых объектов GaAs.

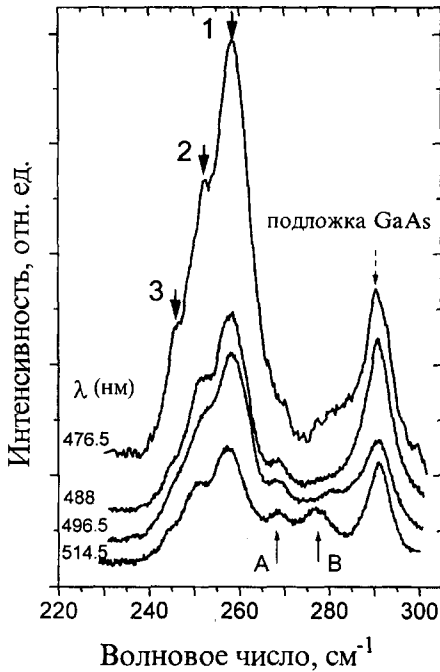


Рис.1. Спектры КРС сверхрешетки GaAs<sub>0.6</sub>/AlAs<sub>5</sub>, выращенной на реконструированной поверхности (001)-(2×4), зарегистрированные в геометрии Z[XY] $\bar{Z}$  для различных длин волн возбуждения рассеяния

Для того чтобы выявить структуру и форму формирующихся квантовых островков GaAs на поверхности AlAs (001), были проведены теоретические расчеты фоновых мод для различных конфигураций. Расчеты собственных частот и векторов колебательных мод проводились в приближении Борна – Кармана с учетом взаимодействия 8 ближайших соседей. Учет дальнедействующего кулоновского взаимодействия проводился в дипольном приближении в модели "жестких ионов". Эффективный заряд катионов и анионов и упругие параметры подгонялись методом наименьших квадратов к экспериментальным данным рассеяния нейтронов на фонах в направлениях  $\Delta$ ,  $\Sigma$ ,  $\Lambda$ ,  $Z$  и  $Q$ , полученным при  $T = 12$  K [14]. Затем частоты фононов экстраполировались к комнатной температуре, исходя из следующей зависимости температуры:  $\delta\omega/\delta T = -1.35 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  [15].

Так как в экспериментальных спектрах КРС (рис.1) четко наблюдались 3 локализованные LO-моды, вначале было предположено, что реконструкция поверхности соответствовала модели Чади [1,2], в которой три бесконечных ряда димеров мышьяка разделены рядом вакансий. Однако расчеты показали, что в случае, если бы островки GaAs представляли собой бесконечные "квантовые проволоки", вытянутые вдоль направления  $[1\bar{1}1]$  и имеющие в направлении  $[110]$  ширину в 3 атома галлия и 1 атом алюминия, то из 9 оптических мод арсенида галлия активны в КРС в геометрии (XY) лишь 2 моды, причем частота наиболее интенсивной из них на  $6 \text{ см}^{-1}$

выше частоты экспериментально наблюдаемого пика 1 (рис.1). Как было показано методом сканирующей туннельной микроскопии в работе [3], элементарная ячейка реконструированной поверхности (001) – (2×4) конфигураций  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  содержит 2 димера мышьяка и 2 вакансии димеров. В работе [4] по данным сканирующей туннельной микроскопии было установлено, что адатомы Ga формируют квантовые островки, вытянутые вдоль направления  $[1\bar{1}0]$ , а ширина островков в направлении  $[110]$  составляет 2 межатомных расстояния.

Рассмотрим вначале конфигурацию островков GaAs в виде бесконечных квантовых проволок вдоль направления  $[1\bar{1}0]$ , сформированных димерами Ga. Элементарная ячейка такой структуры в направлении  $[110]$  содержит по 2 атома Ga и As, разделенных четырьмя атомами Al и As, в направлении роста  $[001]$  она содержит также 5 монослоев AlAs. Покрытие слоя GaAs в этой конфигурации составляет 0.5 монослоя, а слоя AlAs – 5.5 монослоя. Фононный спектр и спектр КРС в геометрии  $Z[XY]\bar{Z}$  были рассчитаны для подобных островков, и результаты приведены на рис.2а. Вертикальными линиями показаны собственные частоты фононных мод GaAs-типа, их высота пропорциональна интенсивности КРС, внизу отмечены моды, не активные в рассеянии, подобные обозначения приняты для всех расчетов. Во всех рассчитанных спектрах ширина всех линий КРС на полувысоте принималась  $5\text{ см}^{-1}$ . Как видно из рис.2а, из 6 оптических фононных мод GaAs-типа в рассеянии активны 2 моды, что естественно, так как в элементарной ячейке в данной конфигурации содержится 2 атома Ga. Первая мода примерно на  $2\text{ см}^{-1}$  выше, чем экспериментальный пик 1 (рис.1), а вторая на  $8\text{ см}^{-1}$  ниже, чем первая. Эти 2 моды возникают за счет латеральной локализации оптических фононов GaAs-типа в направлении  $[110]$ , перпендикулярном квантовой проволоке.

Как уже отмечалось, наиболее стабильными конфигурациями островков GaAs являлись островки, содержащие 6 и менее димеров Ga [4]. Если оборвать квантовую проволоку GaAs, конфигурация которой описана выше, барьерами из атомов Al, оптические фононы GaAs-типа будут локализованы также и в направлении  $[1\bar{1}0]$ . Были рассчитаны фононные спектры подобных квантовых проволок конечной длины для разной толщины барьеров AlAs. Если толщина барьера составляла 1 атом Al, рассчитанный фононный спектр с таких структур практически не отличался от спектра бесконечной проволоки. А если толщина барьера составляла 2 атома Al, в спектре ярко проявлялись особенности, связанные с дополнительной латеральной локализацией оптических фононов, причем при увеличении барьера до 3 и более атомов Al дальнейшей трансформации спектра не наблюдалось. Это позволяет сделать вывод, что проникновение в латеральном направлении оптических фононных мод GaAs-типа в глубь AlAs очень мала, и барьера в 2 монослоя AlAs достаточно для появления латеральной локализации. Необходимо отметить, что глубина "латерального затухания" соответствует глубине затухания вдоль направления роста, которая составляет 1–2 монослоя [5, 8].

Фононный спектр и спектр КРС островка конфигурации  $6 \times 2$  (где 6 и 2 – количество атомов Ga в направлениях  $[1\bar{1}0]$  и  $[110]$ , соответственно, а разделены они барьерами из 2 атомов Al) приведены на рис.2б. Покрытие слоя GaAs в этой конфигурации составляет 0.375 монослоя. Видно, что 6 активных в КРС мод (из 36 общего количества мод) группируются в 3 полосы, частоты которых близки к частотам экспериментально наблюдаемых пиков. Качественно рассчитанные спектры соот-

ветствуют экспериментально наблюдаемым, однако соотношения между интенсивностями экспериментальных пиков 1, 2 и 3 (рис.1) и расчетом (рис.2b) не совпадают.

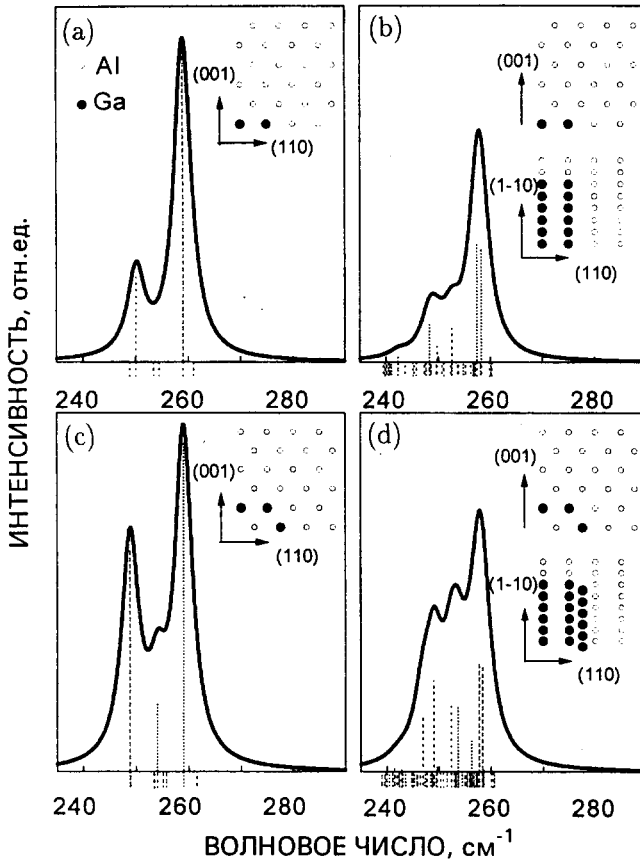


Рис.2. Рассчитанные для различных конфигураций квантовых островков GaAs фоновые спектры и спектры КРС. Показано положение атомов Ga и Al, атомы As не показаны

При покрытии реконструированной поверхности AlAs(001)-(2×4) слоем GaAs с толщиной более 0.5 монослоя может происходить заполнение атомами Ga не только димерных рядов As [4], но и "траншей" на поверхности (001)-(2×4). Спектры КРС для подобных конфигураций островков GaAs приведены на рис.2c и d. Конфигурация рис.2c представляет собой квантовую проволоку бесконечной длины вдоль направления  $[1\bar{1}0]$ , ее элементарная ячейка в направлении  $[110]$  содержит по 2 атома Ga и As, разделенных четырьмя атомами Al и As, а также атом Ga, расположенный на 1 слой ниже вдоль направления роста. Конфигурация рис.2d схожа с предыдущей, но длина квантовой проволоки GaAs ограничена 6-ью атомами Ga, разделенными барьером из 2 атомов Al. Покрытие слоя GaAs для конфигураций рис.2c и d составляет 0.75 и 0.625 монослоя, соответственно. Из рис.2c и d видно, что спектр КРС, рассчитанный для последней конфигурации, качественно соответствует эксперименту, при этом хорошо соответствуют и расчетные, и экспериментальные средние толщины слоев GaAs.

Возвращаясь к рис.1 и сравнивая его с рис.2, необходимо обратить внимание на то, что в рамках рассчитанных спектров КРС для вышеупомянутых конфигураций

качественно и количественно объясняются пики 1, 2 и 3, но не объясняются экспериментально наблюдаемые особенности, помеченные на рис.1 стрелками вверх. Эти особенности можно объяснить, если предположить возможность формирования квантовых островков GaAs с толщиной более 1 монослоя. Были рассчитаны спектры КРС слоев GaAs на реконструированной поверхности AlAs(001)-(2 × 4) со средней толщиной 1, 1.25 и 1.5 монослоя и оказалось, что при таких достаточно толстых слоях практически не проявляются особенности, связанные с латеральной структурой, а наблюдается один пик, соответствующий рассеянию на LO1-моды. По-видимому, пики в районе 269 и 277 см<sup>-1</sup>, ясно обнаруживаемые в экспериментальном спектре для длины возбуждения 514 нм, объясняются рассеянием на фонах, локализованных в подобных объектах GaAs со средней толщиной 1 и 1.5 монослоя. Когда длина волны возбуждающей КРС составляет 514 нм, то вероятно, условия КРС близки к резонансным, что объясняет зависимость интенсивности этих пиков от длины волны накачки.

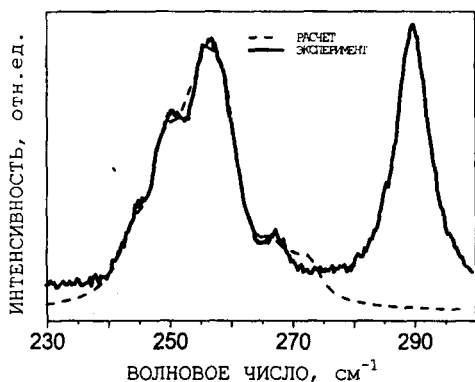


Рис.3. Экспериментальный ( $\lambda_{exc} = 488$  нм) и рассчитанные спектры КРС сверхрешетки GaAs<sub>0.6</sub>/AlAs<sub>5</sub>, выращенной на (2 × 4) реконструированной поверхности (001)

На рис.3 приведен экспериментальный спектр КРС для длины волны 488 нм в сравнении с рассчитанным спектром, в котором учитывался вклад 10 основных конфигураций островков. Теоретический спектр подгонялся к экспериментальному путем минимизации среднеквадратичного отклонения. Из рисунка видно очень хорошее совпадение теории и эксперимента. Причем, крайне удивителен тот факт, что даже толщина слоя GaAs, полученная усреднением по всем конфигурациям, с поразительной точностью совпала с экспериментальной толщиной – 0.6 монослоя. Судя по результатам подгонки, около 70% квантовых островков GaAs содержат менее 18 атомов Ga, что подтверждает выводы работы [4].

Таким образом, в данной работе методом КРС выявлена структура гетерограницы GaAs/AlAs, соответствующая структурной реконструкции поверхности (2 × 4) и согласующаяся с данными сканирующей туннельной микроскопии [4]. Продемонстрировано, что латеральная локализация фононов в островках GaAs происходит на длине в 1 ÷ 2 межатомарных расстояния, что позволяет определять атомарную структуру гетерограницы при сопоставлении экспериментальных и расчетных спектров КРС.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 97-02-18422 и 99-02-16668), а также Сибирского отделения РАН (грант конкурса молодежных проектов по физико-техническим наукам 16). Авторы

признательны Ученому совету ИФП СО РАН за поддержку данных исследований, выразившуюся в присуждении В.А.Володину стипендии ИФП СО РАН для молодых ученых.

- 
1. D.J.Chadi, J. Vac. Sci. Technol. **A5**, 834 (1987).
  2. Tomihiro Hashizume, Q.K.Xue, J.Zhou et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 2208 (1994).
  3. A.R.Avery, C.M.Goringe, D.M.Holmes et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 3344 (1996).
  4. M.Itoh, G.R.Bell, A.R.Avery et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 633 (1998).
  5. M.Cardona and G.Günterodt, *Light Scattering in Solids V.Superlattices and Other Microstructures*, Berlin: Springer-Verlag, 1989.
  6. J.Sapriel, J.C.Michel, J.C.Toledano et al., Phys. Rev. **B28**, 2007 (1983).
  7. B.Jusserand, D.Paquet, J.Kervarec et al., J. de Physique **45**, C5-145 (1984).
  8. M.Cardona, Superlattices and Microstructures **5**, 27 (1989).
  9. G.Armelles, P.Castrillo, P.D.Wang et al., Solid State Communications **94**, 613 (1995).
  10. P.Castrillo, G.Armelles, and J.Barbolla, Solid-State Electronics **40**, 175 (1996).
  11. В.А.Володин, М.Д.Ефремов, В.Я.Принц и др., Письма в ЖЭТФ **63**, 942 (1996).
  12. В.А.Володин, М.Д.Ефремов, В.В.Преображенский и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 45 (1997).
  13. V.A.Volodin, M.D.Efremov, and V.V.Bolotov, Superlattices and Microstructures (in press).
  14. D.Strauch and B.Dorner, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 1457 (1990).
  15. B.Jusserand and J. Sapriel, Phys. Rev. **B24**, 7194 (1981).