

ИНТЕРФЕЙСНЫЕ ФОНОНЫ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НАНОСТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ТОЧКАМИ

М. Ю. Ладанов, А. Г. Милехин*, А. И. Торопов, А. К. Бакаров, А. К. Гутаковский

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия

Д. А. Тэннэ **

Department of Physics, the Pennsylvania State University
104 Davey Lab., University Park, PA 16802, USA

Ш. Шульце **, Д. Р. Т. Цан **

Institut für Physik, Technische Universität Chemnitz
D-09107, Chemnitz, Germany

Поступила в редакцию 21 апреля 2005 г.

Экспериментально и теоретически исследован колебательный спектр структур с квантовыми точками InAs в матрице AlGaAs и с квантовыми точками AlAs в матрице InAs. В спектрах комбинационного рассеяния света обнаружены особенности, соответствующие поперечным, продольным оптическим и интерфейсным фононам. Частоты интерфейсных фононов в квантовых точках InAs и AlAs и в матрице AlGaAs с различным содержанием алюминия были рассчитаны с использованием экспериментальных значений поперечных и продольных оптических фононов в приближении диэлектрического континуума. Показано, что модель диэлектрического континуума адекватно описывает поведение интерфейсных фононов в структурах с квантовыми точками в предположении, что квантовые точки имеют сфероидальную форму.

PACS: 63.22.+m, 78.67.Hc, 78.30.Fs

1. ВВЕДЕНИЕ

Периодические полупроводниковые структуры с самоорганизованными квантовыми точками, обладающие уникальными электронными и оптическими свойствами, являются в настоящее время одним из наиболее перспективных объектов исследования в физике полупроводников. Эти структуры интересны с точки зрения возможности создания на их основе новых устройств, таких как квантовые транзисторы, быстродействующие элементы электронной памяти, узкополосные светодиоды, гетеролазеры и инфракрасные (ИК) фотоприемники [1–3].

Прогресс в технологии эпитаксиального роста позволил создать на основе ряда материалов (InAs/Ga(Al)As, In(Ga)As/InP [4, 5], Ge/Si, GaSb/InP, GaN/AlN) [6–9] структуры с квантовыми

точками с контролируемыми свойствами. Наиболее исследованной является система InAs/Ga(Al)As, изучению оптических и электронных свойств которой посвящено большое количество работ [2]. Однако, несмотря на то что колебательный спектр содержит информацию о структурных свойствах квантовых точек (размере, дисперсии размеров, форме) [10, 11] и механических напряжениях в наноструктурах [12, 13], колебательные свойства даже в этой системе остаются малоизученными. Наиболее распространенными методами исследования колебательного спектра являются спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС) и ИК-спектроскопия. Эти методы являются взаимодополняющими вследствие различных правил отбора, что позволяет изучать колебательные возбуждения разной симметрии. КРС- и ИК-спектроскопия применялись для изучения оптических фононов в напряженных [13, 14] и релаксированных [12, 15]

*E-mail: milekhin@thermo.isp.nsc.ru

**D. A. Tenne, S. Schulze, D. R. T. Zahn.

квантовых точках, в квантовых точках твердого раствора InGaAs [16] и в смачивающем слое [17, 18].

Ранее теоретическое рассмотрение спектра оптических фононов в квантовых точках проводилось в рамках модели валентных силовых полей [19, 20] и в приближении диэлектрического континуума [15]. Модель валентных силовых полей является эмпирической атомистической моделью и позволяет расчитывать частоты фононов в квантовых точках, состоящих из нескольких тысяч атомов. Расчеты с использованием этой модели предполагают использование больших массивов данных, что делает их весьма трудоемкими. Приближение диэлектрического континуума является макроскопической моделью и сравнительно легко может быть использовано для расчета частот интерфейсных фононов, локализованных вблизи границы раздела материалов квантовой точки и матрицы [21].

Простейшая модель диэлектрического континуума рассматривает квантовые точки сферической формы одного материала, «захороненные» в матрице другого материала [22, 23]. Условие для собственных частот в этом случае выглядит следующим образом:

$$\frac{\epsilon_1(\omega_{lm})}{\epsilon_2(\omega_{lm})} = -1 - \frac{1}{l}, \quad (1)$$

где ϵ_1 и ϵ_2 — диэлектрические функции соответственно квантовых точек и матрицы, ω_{lm} — собственные частоты интерфейсных фононов, а l — квантовый номер фона ($l = 1, 2 \dots$).

Как правило, реальные квантовые точки имеют форму, отличающуюся от сферической [24, 25] (усеченная пирамида для системы квантовых точек InAs в матрице GaAs [26], полусфера для квантовых точек Ge в матрице Si [27], эллипсоид для квантовых точек AlAs в матрице InAs [28]). Поэтому модель диэлектрического континуума получила дальнейшее развитие в работах [29, 30], в которых предполагается, что квантовые точки имеют сфероидальную форму. Понижение симметрии квантовых точек от сферической к сфероидальной усложняет условие для собственных частот интерфейсных фононов: они становятся зависимыми от двух квантовых номеров, l и m .

В работе [30] рассмотрена диэлектрическая функция матрицы, не зависящая от частоты, что дает единственный набор интерфейсных мод, частоты которых находятся между значениями частот поперечных (TO) и продольных (LO) оптических фононов в квантовых точках. Такой подход оправдан, если в рамках модели рассматриваются

квантовые точки, находящиеся в стеклообразной или органической матрице.

В работе [29] предполагается, что диэлектрические функции как материала квантовых точек, так и материала матрицы являются частотно-зависимыми, что дает, в отличие от модели диэлектрического континуума, рассмотренной в работе [30], два набора интерфейсных мод. Один набор интерфейсных мод, относящийся к квантовым точкам, находится в спектральном диапазоне между частотами TO- и LO-фононов в материале квантовой точки. Другой набор лежит в диапазоне частот между соответствующими значениями объемных фононов материала матрицы.

Несмотря на прогресс в теоретическом описании интерфейсных фононов в сфероидальных квантовых точках, экспериментально интерфейсные фононы в структурах с самоорганизованными квантовыми точками остаются малоизученными [11, 13].

В данной работе представлены результаты исследования интерфейсных фононов в структурах с квантовыми точками InAs и AlAs методом КРС-спектроскопии в сравнении с данными, полученными на основе расчета интерфейсных фононов в приближении диэлектрического континуума.

2. ТЕОРИЯ

Запишем основные уравнения, необходимые для рассмотрения приближения диэлектрического континуума в полярных материалах [30, 31]. Уравнение движения Борна–Хуанга может быть представлено следующим образом:

$$\ddot{w} = -\omega_{TO}^2 w + \sqrt{\frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{4\pi}} \omega_{TO}^2 E, \quad (2)$$

где поляризацию P можно записать в виде

$$P = \sqrt{\frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{4\pi}} \omega_{TO}^2 w + \frac{\epsilon_\infty - 1}{4\pi} E. \quad (3)$$

Здесь $w = \sqrt{N\mu} u$ и u — относительное смещение пары ионов приведенной массы μ в кристалле с концентрацией N , E — электрическое поле, ω_{TO} и ω_{LO} — частоты поперечных и продольных оптических фононов, ϵ_0 (ϵ_∞) — статическая (высокочастотная) диэлектрическая постоянная полярного материала. При этом мы считаем, что выполняется соотношение Лиддена–Сакса–Теллера $\omega_{LO}^2 / \omega_{TO}^2 = \epsilon_0 / \epsilon_\infty$.

Для того чтобы электрическое поле удовлетворяло уравнениям Максвелла, необходимо, чтобы и индукция

$$\mathbf{D} = \epsilon(\omega)\mathbf{E} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}$$

подчинялась уравнению Гаусса

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0.$$

Используя соотношение

$$\mathbf{E} = -\nabla\varphi,$$

можно записать основное уравнение диэлектрического приближения:

$$\epsilon(\omega)\nabla^2\varphi = 0. \quad (4)$$

Для всех указанных выше величин подразумевается гармоническая зависимость от времени: $f(t) \propto \exp(-i\omega t)$. В отсутствие затухания частотно-зависимая диэлектрическая функция $\epsilon(\omega)$ полярного материала выглядит следующим образом:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty \frac{\omega_{LO}^2 - \omega^2}{\omega_{TO}^2 - \omega^2}. \quad (5)$$

Интерфейсные фононы напрямую связаны с электрическим потенциалом, который должен удовлетворять уравнению Лапласа $\nabla^2\varphi = 0$. Вследствие этого одним из возможных решений уравнения (4) является решение $\epsilon(\omega) \neq 0$ и $\omega \neq \omega_{LO}$. Граничное условие для непрерывности нормальной компоненты поля \mathbf{D} на границе S раздела двух сред приводит к следующему выражению:

$$\epsilon_1 \left[\frac{\partial \varphi_1}{\partial n} \right]_S = \epsilon_2 \left[\frac{\partial \varphi_2}{\partial n} \right]_S. \quad (6)$$

Поскольку предметом рассмотрения являются интерфейсные фононы в сфероидальных квантовых точках, оказывается удобным перейти от декартовой системы координат к сфероидальной (продольной и поперечной) [30].

Продольная система координат ξ, η, ϕ используется для расчета частот интерфейсных фононов для вытянутых квантовых точек и выражается через декартову систему координат с помощью соотношений

$$\begin{aligned} x &= b\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \cos\phi, \\ y &= b\sqrt{(\xi^2 - 1)(1 - \eta^2)} \sin\phi, \\ z &= b\xi\eta, \end{aligned} \quad (7)$$

тогда как поперечная система координат удобна для определения частот интерфейсных фононов для сплюснутых квантовых точек:

$$\begin{aligned} x &= b\sqrt{(\xi^2 + 1)(1 - \eta^2)} \cos\phi, \\ y &= b\sqrt{(\xi^2 + 1)(1 - \eta^2)} \sin\phi, \\ z &= b\xi\eta, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\xi \geq 1$ для продольной системы, $\xi \geq 0$ для поперечной, и для обеих систем $-1 \leq \eta \leq 1$, $0 \leq \phi \leq 2\pi$. Выражение $\xi = \text{const}$ описывает эллипсоид вращения, где ось z (ось вращения) взята вдоль главных осей эллипсоида, $2b$ — межфокусное расстояние.

Рассмотрим эллиптическую поверхность, заданную выражением $\xi = \xi_0 = \text{const}$. В нашей модели внутренняя область, определяемая соотношением $1 \leq \xi \leq \xi_0$ для продольной и поперечной систем координат, является одним из полярных полупроводников с диэлектрической функцией $\epsilon(\omega)$, определяемой соотношением (5), где ω — собственная частота, соответствующая интерфейсным колебаниям сфероидальной квантовой точки. Внешняя по отношению к эллиптической поверхности область, определяемая соотношением $\xi \geq \xi_0$, является бесконечной средой с диэлектрической функцией $\epsilon_D(\omega)$, также определяемой соотношением (5).

Уравнение Лапласа можно разделить в сфероидальных продольных координатах, и решение для описанной модели может быть найдено в виде

$$\begin{aligned} \varphi^< &= A_{lm} R_l^m(\xi) Y_{lm}(\eta, \phi), & \xi \leq \xi_0, \\ \varphi^> &= A_{lm} \frac{R_l^m(\xi_0)}{Q_l^m(\xi_0)} Q_l^m(\xi) Y_{lm}(\eta, \phi), & \xi \geq \xi_0, \end{aligned} \quad (9)$$

где A_{lm} — коэффициенты Фурье, а $Y_{lm}(\eta, \phi)$ — обыкновенные гармонические сферические функции. Для поперечной системы координат после некоторых преобразований выражение остается тем же, при этом выполняется замена $\xi \rightarrow i\xi$.

Функции $R_l^m(\xi)$ и $Q_l^m(\xi)$ в уравнении (9) определяются в терминах гипергеометрической функции F :

$$\begin{aligned} R_l^m(\xi) &= \frac{(2l)!(\xi^2 - 1)^{m/2}\xi^{l-m}}{2^l l!(l-m)!} \times \\ &\times F \left[\frac{m-l}{2}, \frac{m-l+1}{2}, \frac{1}{2} - l, \frac{1}{\xi^2} \right], \\ Q_l^m(\xi) &= \frac{2^m (l-m)!\Gamma(1/2)(\xi^2 - 1)^{m/2}}{\Gamma(l+3/2)(2\xi)^{l+m+1}} \times \\ &\times F \left[\frac{l+m+1}{2}, \frac{l+m+2}{2}, l + \frac{3}{2}, \frac{1}{\xi^2} \right], \end{aligned} \quad (10)$$

где $\Gamma(x)$ — гамма-функция. Для поперечной системы координат эти функции выражаются подобным образом, однако после замены $\xi \rightarrow i\xi$ и некоторых алгебраических преобразований могут быть представлены в виде зависимости от $i\xi$:

$$\begin{aligned} R_l^m(i\xi) &= \frac{(2l)!(\xi^2 + 1)^{m/2}\xi^{l-m}}{2^l l!(l-m)!} \times \\ &\times F\left[\frac{m-l}{2}, \frac{m-l+1}{2}, \frac{1}{2}-l, -\frac{1}{\xi^2}\right], \\ Q_l^m(i\xi) &= \frac{2^l l!(l+m)!(\xi^2 + 1)^{m/2}\xi^{-l-m-1}}{(2l+1)!} \times \\ &\times F\left[\frac{l+m+1}{2}, \frac{l+m+2}{2}, l+\frac{3}{2}, -\frac{1}{\xi^2}\right]. \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь угловые моменты гармонических функций имеют значения $l = 1, 2, 3, \dots$ и $|m| \leq l$.

Границное условие (6) при $\xi = \xi_0$ определяет соотношения

$$\begin{aligned} f_{lm}^P(\xi_0) &= \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_D(\omega)} \equiv \left(\frac{d}{d\xi} \ln Q_l^m(\xi) \Big|_{\xi_0} \right) \times \\ &\times \left(\frac{d}{d\xi} \ln R_l^m(\xi) \Big|_{\xi_0} \right)^{-1}, \\ f_{lm}^O(\xi_0) &= \frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_D(\omega)} \equiv \left(\frac{d}{d\xi} \ln Q_l^m(i\xi) \Big|_{\xi_0} \right) \times \\ &\times \left(\frac{d}{d\xi} \ln R_l^m(i\xi) \Big|_{\xi_0} \right)^{-1} \end{aligned} \quad (12)$$

соответственно для продольной и поперечной систем координат. Универсальные параметры f_{lm}^P и f_{lm}^O не зависят от природы материала и от нормировки функций R_l^m и Q_l^m , но, что особенно важно, зависят от геометрии квантовых точек. Условия для собственных частот интерфейсных фононов, определенные как

$$\begin{aligned} \frac{\omega_{lm}^2}{\omega_{LO}^2} &= \frac{\epsilon_0 - \epsilon_D f_{lm}^P(\xi_0)}{\epsilon_\infty - \epsilon_D f_{lm}^P(\xi_0)}, \\ \frac{\omega_{lm}^2}{\omega_{TO}^2} &= \frac{\epsilon_0 - \epsilon_D f_{lm}^O(\xi_0)}{\epsilon_\infty - \epsilon_D f_{lm}^O(\xi_0)}, \end{aligned} \quad (13)$$

соответственно для продольной и поперечной систем координат, позволяют вычислить частоты интерфейсных фононов.

Заметим, что, в отличие от случая сферических квантовых точек, собственные частоты интерфейсных фононов зависят от двух квантовых номеров, l и m , и от параметра ξ_0 . Можно показать, что при $\xi_0 \rightarrow 0$ уравнение (13) дает собственные значения частот в сферических квантовых точках [31]:

$$\frac{\omega_l^2}{\omega_{TO}^2} = \frac{\epsilon_0 l + \epsilon_D(l+1)}{\epsilon_\infty l + \epsilon_D(l+1)}, \quad (14)$$

что идентично выражению (1).

Для квантовых точек InAs в матрице AlAs, имеющих форму сплюснутого эллипсоида, зависимость частот интерфейсных мод от квантового числа m

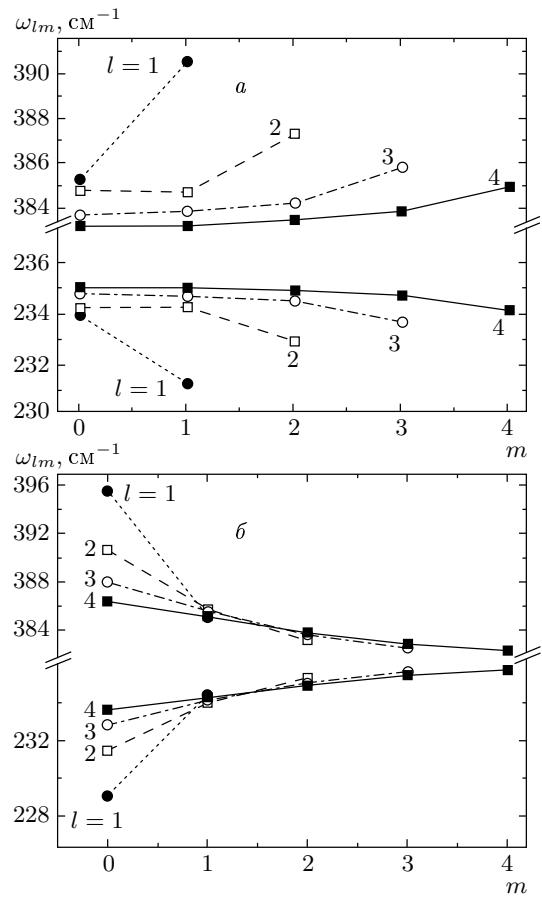


Рис. 1. Зависимости частот интерфейсных мод в сплюснутых квантовых точках при $R_p/R_e = 1/2$ (а) и в вытянутых квантовых точках при $R_p/R_e = 2$ (б) от квантовых чисел m и l . Значения частот фононов, имеющих одинаковые квантовые номера l и различные номера m , соединены линиями

для отношения длин полуосей $R_p/R_e = 1/2$ представлена на рис. 1а. Полуось R_p расположена в плоскости слоев структуры, а R_e — перпендикулярно поверхности. Как видно на рис. 1а, рассчитанные значения частот интерфейсных фононов в квантовых точках InAs и в матрице AlAs находятся соответственно в пределах 230–236 cm^{-1} и 382–392 cm^{-1} и лежат между соответствующими значениями частот TO- и LO-фононов. При увеличении квантовых чисел рассчитанных мод их частоты стремятся к значению частот интерфейсных фононов, распространяющихся вблизи плоских гетерограниц. Для AlAs-подобных фононов это значение составляет 383 cm^{-1} , в то время как для InAs-подобных оно равно 235 cm^{-1} . Следует отметить, что эти значения отстоят на несколько обратных сантиметров от

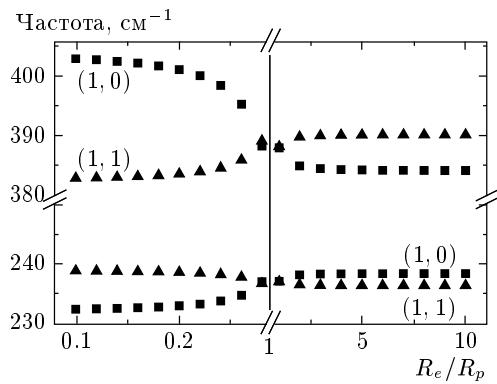


Рис. 2. Зависимости частот интерфейсных фононов с квантовыми числами $(1, 0)$ и $(1, 1)$ от соотношения R_e/R_p для сплюснутых ($R_e/R_p = 1-10$) и вытянутых ($R_e/R_p = 0.1-1$) точек

значений частот мод с малыми l и большими m .

Набор частот интерфейсных фононов для квантовых точек вытянутой (prolate) формы существенно отличается от соответствующих величин для сплюснутых (oblate) квантовых точек (рис. 1б). Особенno значительно это различие для частоты мод с малыми квантовыми номерами l и m .

В рассматриваемой модели параметром, определяющим форму квантовой точки, является отношение R_e/R_p большой и малой полуосей.

На рис. 2 приведены зависимости частот интерфейсных фононов в квантовых точках с квантовыми числами $(1, 0)$ и $(1, 1)$ от отношения R_e/R_p . Определение значений частот этих мод особенно важно, поскольку именно фононы с малыми квантовыми номерами (l, m) , равными $(1, 0)$ и $(1, 1)$, должны вносить основной вклад в КРС [29].

Для отношения R_e/R_p от $1/10$ до 1 (вытянутые квантовые точки) частоты первых мод интерфейсных фононов приведены в левой части графика, а для R_e/R_p от 1 до 10 — в правой. Видно, что наибольшие изменения претерпевают частоты интерфейсных фононов в тех квантовых точках, форма которых близка к сферической.

Рассмотрим случай, когда материал либо матрицы, либо квантовых точек представляет собой тройной твердый раствор $A_xB_{1-x}C$. Этот случай представляет определенный интерес, поскольку уже существуют структуры с квантовыми точками InGaAs/AlGaAs. Поскольку диэлектрическая функция твердого раствора имеет вид (без затухания)

$$\epsilon_a(\omega) = \epsilon_\infty^a \frac{(\omega_{LO,1}^2 - \omega^2)(\omega_{LO,2}^2 - \omega^2)}{(\omega_{TO,1}^2 - \omega^2)(\omega_{TO,2}^2 - \omega^2)}, \quad (15)$$

где $\epsilon_\infty^a = \epsilon_{\infty,1}x + \epsilon_{\infty,2}(1-x)$, решение уравнения (13) при этом представляет собой три набора интерфейсных фононов, один из которых соответствует материалу бинарного соединения, а два других — материалу твердого раствора. Так, для квантовых точек InAs/AlGaAs эти наборы представляют собой интерфейсные фононы в квантовых точках InAs и AlAs и GaAs-подобные интерфейсные фононы в матрице. Заметим, что для структур, в которых твердым раствором являются материалы как матрицы, так и квантовых точек, ожидается существование четырех наборов интерфейсных фононов.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Исследованные структуры были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на установке Riber 32P в ростовой моде Странского–Крастанова на подложках GaAs. Образец А состоял из десяти периодов, каждый из которых содержал слой с квантовыми точками InAs номинальной толщины 2.25 монослоя (MC) и слой AlAs толщиной 25 нм. Образец В, состоящий из пятидесяти периодов квантовых точек AlAs, захороненных в матрице InAs, был выращен на буферном слое InAs толщиной 1.5 мкм, легированном кремнием ($N_{Si} = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$), при температуре подложки 420°C . Каждый период содержал слой с квантовыми точками AlAs номинальной толщины 2.4 MC и слой InAs толщиной 12 нм. Образец С содержал двадцать слоев с квантовыми точками InAs номинальной толщины 2.5 MC, закрытых слоем GaAs толщиной 6 нм.

Образцы, в которых в качестве материала матрицы использовался твердый раствор $Al_xGa_{1-x}As$, состояли из пяти периодов, каждый из которых содержал слой $Al_xGa_{1-x}As$ толщиной 8 нм и слой с квантовыми точками InAs. Содержание алюминия составляло 0, 0.15, 0.25, 0.5, 0.75. Структуры были покрыты слоем GaAs толщиной 20 нм.

Процесс роста контролировался при помощи дифракции быстрых электронов на отражение. Согласно данным дифракции, переход от двумерной к трехмерной ростовой моде (начало формирования квантовых точек) для всех образцов происходит после нанесения 1.9 MC материала квантовых точек. После формирования квантовых точек первые 8 нм слоя AlAs выращивались при той же температуре, что и квантовые точки (500°C). Затем температура повышалась до 600°C и наносился оставшийся слой AlAs.

Спектры КРС были записаны при температу-

ре 80 К с помощью спектрометра Dilor XY800. Для возбуждения были использованы линии Ar^+ -и Kr^+ -лазеров с длинами волн 514.5 нм и 647.1 нм. Спектры были измерены в геометрии обратного рассеяния от планарной поверхности и от торцов образцов, ориентированных в плоскости (110). Применимые геометрии рассеяния были $z(xx)\bar{z}$, $z(yx)\bar{z}$, $y'(zx')\bar{y}'$ и $y'(x'x')\bar{y}'$, где оси x , y , z , x' , y' параллельны соответственно направлениям [100], [010], [001], [$\bar{1}\bar{1}0$], [110]. Для экспериментов в геометрии обратного рассеяния от торца использовался микроскоп, позволяющий фокусировать лазерный луч в пятно диаметром 1 мкм. Спектральное разрешение составляло 2 см^{-1} во всем спектральном диапазоне.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для контроля качества исследуемых образцов и определения их структурных параметров использовалась электронная микроскопия высокого разрешения на пропускание. Изображения поперечного среза, представленные на рис. 3, указывают на линзоподобную форму квантовых точек InAs (образцы А и С) и эллипсоидальную форму квантовых точек AlAs (образец В). Квантовые точки InAs имеют основание порядка 10 нм и высоту около 1.5 нм. Средний размер квантовых точек AlAs, определенный по изображениям, полученным с помощью электронного микроскопа, составляет 4–5 нм в основании и 2–4 нм в высоту.

На рис. 4 представлены спектры КРС структур А, В и С, измеренные в различных геометриях рассеяния, в которых наблюдаются локализованные ТО-, LO-фононы и/или интерфейсные фононы. Согласно правилам отбора для планарных сверхрешеток в геометрии рассеяния $z(yx)\bar{z}$, $y'(x'x')\bar{y}'$ проявляются только LO-фононы, а в геометрии $y'(zx')\bar{y}'$ — только ТО-фононы. В геометриях рассеяния $z(yx)\bar{z}$ и $z(xx)\bar{z}$ в резонансных условиях могут наблюдаться интерфейсные фононы. Как видно на рисунке, эти правила отбора выполняются и для исследуемых структур с квантовыми точками.

Так, ТО- и LO-фононы в материалах матриц образцов А, В и С наблюдаются в разрешенных геометриях рассеяния на частотах соответственно 359 и 402 см^{-1} (AlAs), 216 и 235 см^{-1} (InAs), 267 и 291 см^{-1} (GaAs). Частотные положения наблюдавшихся LO- и ТО-фононов близки к значениям частот в объемных материалах. Следует отметить, что в спектрах КРС всех образцов проявляются особенно-

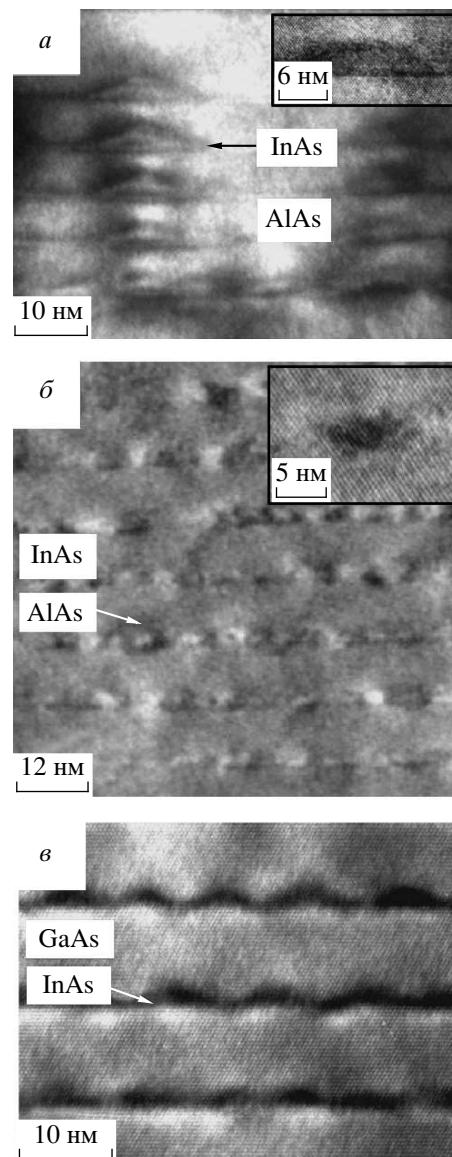


Рис. 3. Изображения поперечного среза структур с квантовыми точками InAs в матрицах AlAs и GaAs (соответственно образцы А (а) и С (с)) и AlAs в матрице InAs (образец В (б)), полученные с помощью электронного микроскопа. На вставках приведены детальные изображения квантовых точек, полученные при высоком разрешении

сти, соответствующие ТО- и LO-фононам в подложке GaAs (267 и 291 см^{-1}).

На рис. 4 видно, что на частотах 386, 228, 277 см^{-1} , лежащих приблизительно посередине между значениями частот ТО- и LO-фононов, наблюдаются особенности, обусловленные интерфейсными фононами в матрицах соответственно AlAs, InAs,

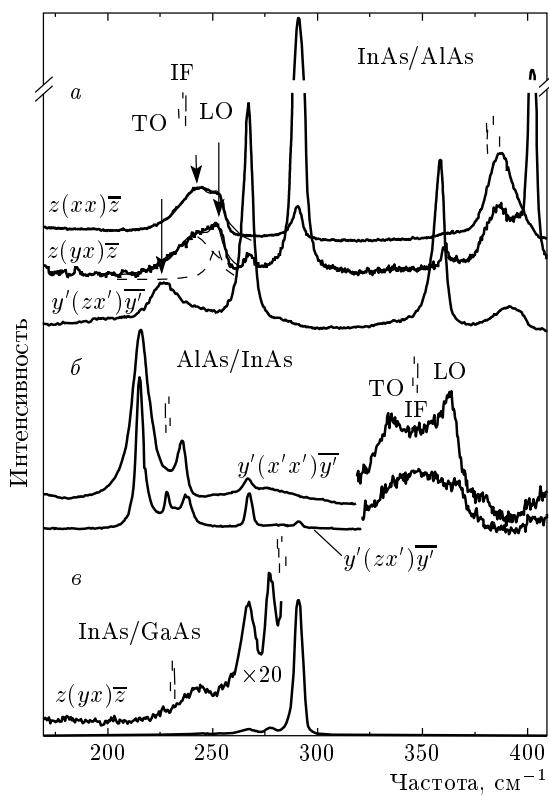


Рис. 4. Экспериментальные спектры КРС структур с квантовыми точками InAs/AlAs (а), AlAs/InAs (б) и InAs/GaAs (в). Вертикальными штрихами над графиками отмечены рассчитанные частоты интерфейсных мод (IF), вертикальными стрелками — особенности, соответствующие TO- и LO-фононам в InAs/AlAs. Энергия возбуждения лазера составляет 2.41 эВ (514.5 нм) — спектры а и б, и 1.91 эВ (647.1 нм) — спектр в

GaAs, которые будут подробно обсуждаться ниже.

Частоты оптических фононов, локализованных в квантовых точках, отличаются от частот объемных материалов. Так, для образцов А и С частоты TO- и LO-фононов в квантовых точках InAs смешены в высокочастотную область на 10–15 см⁻¹ относительно частот объемных фононов в InAs вследствие механических напряжений в квантовых точках. Постоянная кристаллической решетки в InAs (0.60583 нм) превышает соответствующие значения в GaAs (0.565325 нм) и AlAs (0.566 нм), следовательно, механические напряжения в квантовых точках InAs в матрицах AlAs и GaAs имеют одинаковый знак: квантовые точки подвержены сжатию вдоль слоев, в которых они находятся, и растяжению в направлении роста структуры [13].

Знаки механических напряжений в образце В ме-

няются на противоположные, вследствие чего возникает низкочастотный сдвиг (30–40 см⁻¹) оптических фононов, локализованных в квантовых точках AlAs образца С [13].

Как и в случае интерфейсных фононов в матрице, частоты интерфейсных фононов в квантовых точках находятся между частотами TO- и LO-фононов, локализованных в квантовых точках. Значение частоты интерфейсного фонона в квантовых точках InAs образца А может быть получено из разложения спектра в области частот оптических фононов в InAs на две лоренцевы кривые, соответствующие линиям интерфейсных и LO-фононов, как показано на рис. 4 штриховыми линиями, и составляет 242 см⁻¹. Линия интерфейсных фононов в квантовых точках AlAs для образца В наблюдается на частоте 348 см⁻¹, в то время как особенностей, соответствующих интерфейсному фонону InAs в образце С, не обнаружено.

Рассмотрим теперь систему, в которой материал матрицы представляет собой тройной твердый раствор $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$.

На рис. 5 представлены экспериментальные спектры КРС структурами InAs с квантовыми точками InAs/ $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$ с различными значениями x , записанные в геометриях рассеяния $z(xx)\bar{z}$ и $z(xy)\bar{z}$ в спектральных диапазонах оптических фононов в InAs, GaAs и AlAs. Согласно правилам отбора для КРС планарными структурами InAs/ $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$, в геометрии рассеяния $z(xy)\bar{z}$ должны наблюдаться LO-фононы, а в геометрии $z(xx)\bar{z}$ в резонансных условиях — интерфейсные фононы. Как видно на рис. 5, эти правила отбора справедливы и для структур с квантовыми точками. В спектрах КРС, записанных в геометрии $z(xy)\bar{z}$, преимущественно наблюдаются LO-фононы квантовых точек InAs и GaAs- и AlAs-подобные LO-фононы твердого раствора. На частотах между значениями частот TO- и LO-фононов в GaAs и AlAs в геометрии $z(xx)\bar{z}$ наблюдаются дополнительные особенности, связанные с интерфейсными фононами.

В диапазоне частот, соответствующем оптическим фононам в InAs, наблюдаются широкие особенности, обусловленные вкладом в КРС как интерфейсных, так и LO-фононов в квантовых точках InAs. Частоты этих особенностей практически не зависят от состава твердого раствора матрицы. С увеличением содержания алюминия интенсивность сигнала КРС фононами квантовых точек InAs уменьшается, что может быть связано с уменьшением энергии межзонных переходов в квантовых точках InAs от 1.9 эВ до 1.1 эВ (энергия возбуждения со-

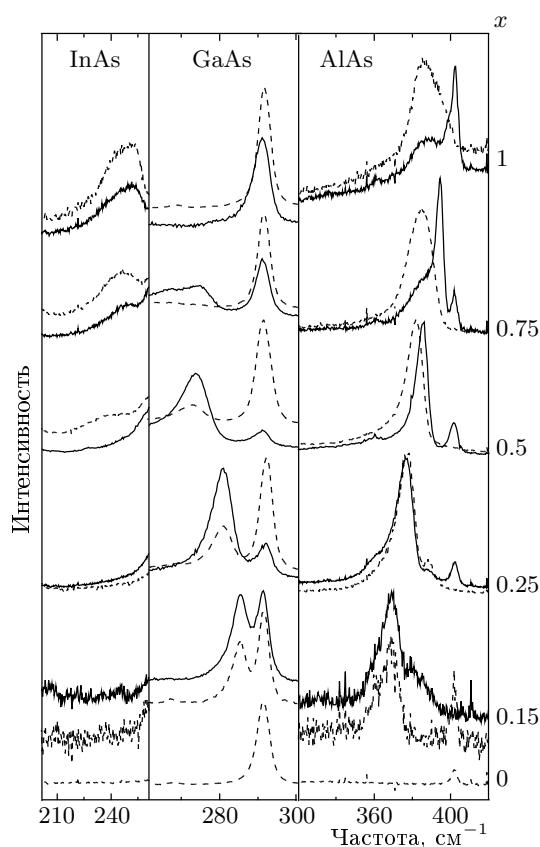


Рис. 5. Экспериментальные КРС-спектры структуры InAs/Al_xGa_{1-x}As при различных значениях x . Штриховыми линиями обозначены спектры, измеренные в геометрии рассеяния $z(xx)\bar{z}$, сплошными — в геометрии рассеяния $z(xy)\bar{z}$. Энергия возбуждения лазера составляет 1.91 эВ (647.1 нм). Шкала интенсивности КРС трех частей спектра различная

ставляет 1.91 эВ). Как обсуждалось выше, колебательный спектр матрицы AlGaAs носит двухмодовый характер. Частота AlAs-подобного LO-фонона с уменьшением содержания алюминия уменьшается с 403 см⁻¹ (для $x = 1$) до 386 см⁻¹ (для $x = 0.5$). В геометрии $z(xx)\bar{z}$ наблюдается особенность, соответствующая линии интерфейсных фононов, частоты которых уменьшаются с 386 см⁻¹ (для $x = 1$) до 381 см⁻¹ (для $x = 0.5$). Вследствие малого LO-TO расщепления AlAs-подобных фононов в AlGaAs при малых значениях x линии интерфейсных фононов и LO-фононов в спектрах КРС не разрешаются. В диапазоне частот оптических фононов в GaAs наблюдается интенсивный пик, относящийся к LO-фонону в подложке GaAs (291 см⁻¹), и асимметричная особенность, обусловленная вкладом интерфейсных и

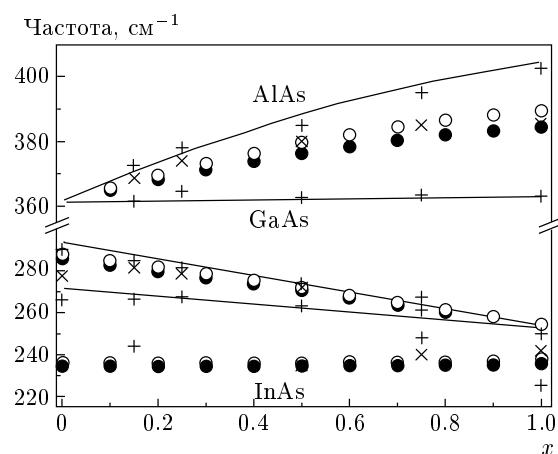


Рис. 6. Зависимости частот интерфейсных фононов от состава матрицы Al_xGa_{1-x}As. Представлены экспериментальные значения частот AlAs- и GaAs-подобных оптических (+) и интерфейсных (x) фононов, полученные из анализа спектров КРС. Сплошные линии соответствуют значениям AlAs- и GaAs-подобных фононов в объемном AlGaAs в зависимости от содержания Al [14]. Рассчитанным значениям частот интерфейсных фононов в модах (1,0) и (1,1) соответствуют значки ● и ○

GaAs-подобных LO-фононов, частота которой при уменьшении x возрастает с 273 см⁻¹ (для $x = 0.75$) до 285 см⁻¹ (для $x = 0.15$). Подгонка лоренцевыми кривыми позволяет разделить вклады интерфейсных и LO-фононов. Результаты подгонки совместно с экспериментальными данными, полученными из спектров КРС, приведены на рис. 6.

Правила отбора для КРС запрещают наблюдение ТО-фононов в исследуемых геометриях $z(xx)\bar{z}$ и $z(yx)\bar{z}$ для кристаллов симметрии цинковой обманки. Однако особенность на частоте 360 см⁻¹, слабо зависящая от содержания алюминия, по всей видимости, соответствует AlAs-подобному ТО-фону и проявляется вследствие нарушения правил отбора для структур с квантовыми точками.

Слабый пик, проявляющийся на частоте 402 см⁻¹, наблюдается в спектрах всех исследуемых образцов и соответствует LO-фону в тонких обкладочных слоях AlAs.

Как видно на рис. 6, двухмодовое поведение оптических фононов в матрице AlGaAs согласуется с экспериментальными данными работы [32], полученными для объемного твердого раствора Al_xGa_{1-x}As. Определенным из эксперимента частотам интерфейсных фононов соответствуют крестики.

В рамках модели диэлектрического континуума

были рассчитаны частоты интерфейсных фононов в структуре с квантовыми точками InAs/Al_xGa_{1-x}As в приближении сфероидальных квантовых точек с параметрами, близкими к экспериментальным ($R_p/R_e = 1/2$). Вид диэлектрической функции материала матрицы Al_xGa_{1-x}As, используемой при расчете, соответствовал формуле (15). На рис. 6 кружками представлены рассчитанные InAs-, GaAs-, AlAs-подобные интерфейсные моды с квантовыми номерами $l = 1$ и $m = 0, 1$, поскольку моды с малыми квантовыми номерами должны давать основной вклад в процесс КРС [29]. Как видно на рисунке, частоты рассчитанных мод находятся в хорошем соответствии с экспериментальными данными.

5. ВЫВОДЫ

Исследовано комбинационное рассеяние света периодическими структурами InAs/Al(Ga)As, AlAs/InAs с самоорганизованными квантовыми точками. В КРС-спектрах, измеренных в различных геометриях рассеяния, обнаружены особенности, соответствующие оптическим ТО- и LO-фононам и интерфейсным фононам. Частоты ТО- и LO-фононов смешены относительно соответствующих значений в объемных материалах вследствие механических напряжений. Линии комбинационного рассеяния света интерфейсными фононами наблюдаются в условиях, близких к резонансным. Частоты интерфейсных фононов находятся в спектральном диапазоне между частотами ТО- и LO-фононов. Экспериментальные частоты оптических фононов были использованы для расчета частот интерфейсных фононов в структурах с квантовыми точками различной формы в приближении диэлектрического континуума. Частоты интерфейсных фононов, полученные в рамках этой модели, зависят от формы квантовых точек. Показано, что приближение диэлектрического континуума является адекватной моделью для расчета частот интерфейсных фононов в структурах с квантовыми точками InAs/Al_xGa_{1-x}As для любого значения x . При этом форма квантовых точек предполагалась близкой к наблюдаемой в спектрах, полученных с помощью высокоразрешающей электронной микроскопии. Таким образом, показано, что спектроскопия комбинационного рассеяния света является чувствительной к форме квантовых точек.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Bimberg, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff et al., *Thin Solid Films* **367**, 235 (2000).
2. D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, John Wiley & Sons, Chichester, New York (1999).
3. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Щукин et al., *Физика и техника полупроводников* **32**, 403 (1998).
4. J. Groenen, C. Priester, and R. Carles, *Phys. Rev. B* **60**, 16013 (1999).
5. H. K. Shin, D. J. Lockwood, C. Lacelle, and P. J. Poole, *J. Appl. Phys.* **88**, 6423 (2000).
6. E. Martinez-Guerrero, C. Adelmann, F. Chabuel et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 809 (2000).
7. G. Armelles, T. Utzmeier, P. A. Postigo et al., *J. Appl. Phys.* **81**, 6339 (1997).
8. Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, and N. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2542 (1995).
9. Z. R. Wasilewski, S. Fafard, and J. P. McCarey, *J. Cryst. Growth* **201/202**, 1131 (1999).
10. D. A. Tenne, V. A. Haisler, A. K. Bakarov et al., *Phys. Stat. Sol. (b)* **224**, 25 (2001).
11. A. Milekhin, D. A. Tenne, and D. R. T. Zahn, in *Quantum Dots and Nanowires*, ed. by Supriyo Bandyopadhyay and Hari Singh Nalwa, Amer. Sci. Publ., California (2003), p. 375.
12. А. Г. Милехин, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков и др., Письма в ЖЭТФ **81**, 33 (2005).
13. D. A. Tenne, V. A. Haisler, A. I. Torgov et al., *Phys. Rev. B* **61**, 13785 (2000).
14. Z. C. Feng, A. A. Allerman, P. A. Barnes, and S. Perkowitz, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 1848 (1992).
15. M. I. Vasilevskiy, *Phys. Rev. B* **66**, 195326 (2002).
16. A. G. Milekhin, D. A. Tenne, A. I. Torgov et al., *Phys. Stat. Sol. (c)* **1**, 2629 (2004).
17. J. Groenen, A. Mlayah, R. Carles et al., *Appl. Phys. Lett.* **69**, 943 (1996).
18. A. G. Milekhin, A. I. Torgov, A. K. Bakarov et al., *Phys. Rev. B* **70**, 085314 (2004).
19. S.-Fen. Ren, Z.-Q. Gua, and D. Lub, *Sol. St. Comm.* **113**, 273 (2000).
20. Huaxiang Fu, V. Ozolins, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **59**, 2881 (1999).

21. Yu. A. Pusep, G. Zanelatto, S. W. da Silva et al., Phys. Rev. B **58**, R1770 (1998).
22. R. Ruppin and R. Englman, Rep. Progr. Phys. **33**, 149 (1970).
23. E. Menendez, C. Trallero-Giner, and M. Cardona, Phys. Stat. Sol. (b) **199**, 81 (1997).
24. N. Liu, H. K. Lyeo, C. K. Shih et al., Appl. Phys. Lett. **80**, 4345 (2002).
25. J. Marquez, L. Geelhaar, and K. Jacobi, Appl. Phys. Lett. **78**, 2309 (2001).
26. D. M. Bruls, J. W. A. M. Vugs, P. M. Koenraad et al., Appl. Phys. Lett. **81**, 1708 (2002).
27. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, A. I. Nikiforov et al., Phys. Rev. B **67**, 125318 (2003).
28. A. G. Milekhin, A. I. Toropov, A. K. Bakarov et al., Physica E **21**, 241 (2004).
29. P. A. Knipp and T. L. Reinecke, Phys. Rev. B **46**, 10310 (1992).
30. F. Comas, C. Trallero-Giner, N. Studart, and G. E. Marques, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 6469 (2002).
31. M. C. Klein, F. Hache, D. Ricard, and C. Flytzanis, Phys. Rev. B **42**, 11124 (1990).
32. Z. C. Feng, S. Perkowitz, D. K. Kinell et al., Phys. Rev. B **47**, 13466 (1993).