

Резонансное комбинационное рассеяние света в наноструктурах с квантовыми точками InGaAs/AlAs

А. Г. Милехин¹⁾, А. И. Торопов, А. К. Бакаров, Ш. Шульце*, Д. Р. Т. Цан*

Институт физики полупроводников Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

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

Поступила в редакцию 24 апреля 2006 г.

Экспериментально исследовано комбинационное рассеяние света оптическими фононами в наноструктурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlAs}$ с квантовыми точками состава $x = 0.3 \div 1$ в условиях выходного резонанса. Обнаружены особенности, обусловленные рассеянием GaAs- и InAs- подобными оптическими фононами в квантовых точках, и определены частоты фононов в зависимости от состава точек. С увеличением энергии возбуждения наблюдается красный сдвиг частоты GaAs-подобного фонона в квантовых точках, что свидетельствует о комбинационном рассеянии света, селективном по размеру квантовых точек. В резонансных условиях наблюдалось многофононное рассеяние света вплоть до третьего порядка оптическими и интерфейсными фононами, включая обертоны фононов первого порядка материалов InGaAs и AlAs и их комбинации.

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

Элементарные колебательные возбуждения в наноструктурах с самоорганизованными квантовыми точками In(Ga)As/Al(Ga)As вызывают значительный интерес теоретиков [1, 2] и экспериментаторов [3–8]. В потенциальных оптоэлектронных устройствах на основе квантовых точек (КТ) знание фононного спектра исключительно важно, поскольку фононы влияют на скорость релаксации возбужденных электронов [9] и на подвижность носителей заряда. Наиболее распространенным экспериментальным методом изучения колебательного спектра КТ является спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС). Спектры КРС первого порядка КТ InAs/Al(Ga)As (включая рассеяние оптическими, интерфейсными и акустическими фононами) изучены достаточно подробно, однако данные по КРС в КТ твердых растворов (например, InGaAs) довольно скудные [10, 11]. Еще меньше известно о многофононном рассеянии в этих структурах [11, 12]. Вместе с тем, было показано [13], что многофононные процессы являются значимыми для электронной релаксации в структурах с КТ и могут способствовать решению проблемы деградации фотолюминесценции (ФЛ) в КТ малого размера.

В данной работе представлены результаты изучения одно- и многофононного КРС в структурах с КТ твердого раствора InGaAs в матрице AlAs.

Исследованные структуры были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на установке

Riber 32P в ростовой моде Странского–Крастанова на подложках GaAs, ориентированных в направлении (001), при температуре 500 °C. Образцы состояли из 10 периодов, каждый из которых содержал слой с КТ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ номинальной толщиной 8.7, 5.3, 2.6, 2.25 монослоев соответственно с $x = 0.3, 0.5, 0.75, 1.0$ и слой AlAs толщиной 23.5 нм. Для предотвращения окисления структуры были покрыты слоем GaAs толщиной 20 нм.

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

Спектры КРС были записаны при температуре 20 К с помощью спектрометра Dilor XY800. Линии Ar^+ - и Kr^+ -лазеров с длинами волн в диапазоне 476.2–752.5 нм были использованы для возбуждения. Спектры были измерены в геометрии обратного рассеяния от планарной поверхности при температуре 20 К. Применяемые геометрии рассеяния были $z(xx)\bar{z}$ и $z(yx)\bar{z}$, где x , y и z параллельны направлениям [100], [010] и [001], соответственно. Спектральное разрешение составляло 2 см^{-1} во всем спектральном диапазоне.

Для характеристики исследуемых образцов и определения их структурных параметров ис-

¹⁾e-mail: milekhin@thermo.isp.nsc.ru

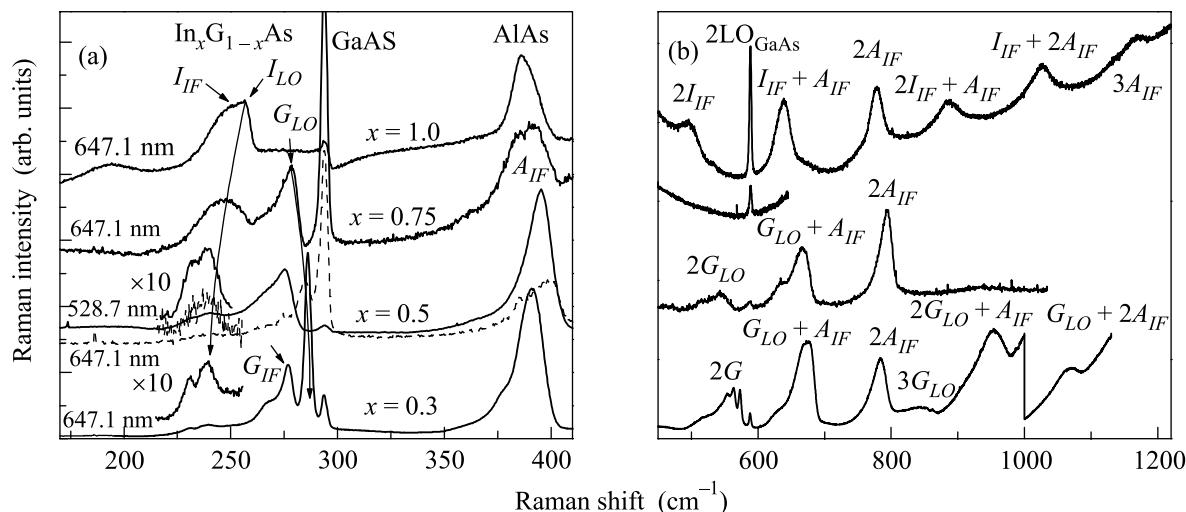


Рис.1. Экспериментальные спектры КРС структур с КТ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlAs}$ при $x = 1, 0.75, 0.5, 0.3$, измеренные в геометрии рассеяния $z(xx)\bar{z}$ при длине волны возбуждающего света 528.7 и 647.1 нм. Изменение частот InAs-подобных LO фононов с уменьшением содержания индия в КТ показано стрелкой

пользовалась электронная микроскопия высокого разрешения (ВРЭМ) на пропускание. Изображения поперечного среза указывают на пирамидообразную форму КТ InAs с основанием порядка 10 нм и высотой около 1.5 нм [3]. КТ InGaAs имеют линзоподобную форму и больший размер (основание (высота) около 10 нм ($3 \div 4$ нм) и $20 \div 30$ нм ($4 \div 6$ нм) для соответственно $x = 0.75$ и $x < 0.75$). Неоднородность размеров КТ в слое составляет величину порядка 20%. Размер КТ постепенно увеличивается от нижних слоев к верхним, что вносит дополнительный разброс параметров КТ.

Как обсуждалось в работе [14], колебательный спектр твердого раствора InGaAs носит двухмодовый характер. Правила отбора для структур с самоорганизованными КТ A^3B^5 разрешают наблюдение продольных оптических (LO) фононов в геометрии рассеяния $z(yx)\bar{z}$. В геометриях рассеяния $z(yx)\bar{z}$ и $z(xx)\bar{z}$ в резонансных условиях могут наблюдаться интерфейсные (IF) фононы [5].

На рис.1 представлены спектры КРС структур с КТ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlAs}$ при $x = 0.3; 0.5; 0.75; 1.0$, измеренные в диапазоне частот оптических фононов в геометрии рассеяния $z(x,x)\bar{z}$.

В спектрах КРС первого порядка наблюдаются особенности вблизи $240 \div 250$, $270 \div 290$ и 400 см^{-1} , обусловленные соответственно InAs- и GaAs-подобными LO фононами КТ InGaAs (обозначенные на рис.1а как I_{LO} и G_{LO}) и слоев AlAs (не показано на рисунке), и вблизи 240, 280 и 380 см^{-1} , связанные с InAs-, GaAs-, AlAs-подобными IF фононами (соответственно I_{IF} , G_{IF} и A_{IF}) [5].

Частотное положение InAs- (GaAs-) подобных оптических фононов сдвигается в область низких (высоких) частот с уменьшением x . Этот сдвиг показан на рис.1а стрелками и согласуется с двухмодовым поведением оптических фононов в твердом растворе [14] с учетом механических напряжений. КТ InGaAs подвержены сжатию вдоль слоев КТ и растяжению в направлении роста структуры, что вызывает высокочастотный сдвиг фононов в КТ относительно частот объемных фононов в InGaAs [4].

С увеличением энергии возбуждения наблюдается красный сдвиг линий LO фонона InAs для структур InAs/AlAs, обусловленный КРС, селективным по размеру КТ (рис.2а). Величина сдвига близка к ранее опубликованным данным [3, 15]. Согласно предложенной модели [3, 15], КТ большего размера, имеющие меньшую энергию межзонных электронных переходов в КТ, вносят основной вклад в спектры КРС при энергии возбуждения в красной области спектра, которая оказывается близкой к резонансу с электронными переходами. КТ меньшего размера обладают большей энергией межзонных переходов. Это приводит к увеличению их относительного вклада в спектры КРС при больших энергиях лазера. В КТ малого размера эффект локализации становится значительным, что вызывает заметный низкочастотный сдвиг оптических фононов КТ вследствие их отрицательной дисперсии. Заметим, что этот же эффект наблюдался и для массива неоднородных КТ Ge [16].

Для КТ твердого раствора InGaAs интенсивность КРС InAs-подобными фононами существенно меньше по сравнению с соответствующим значением для КТ

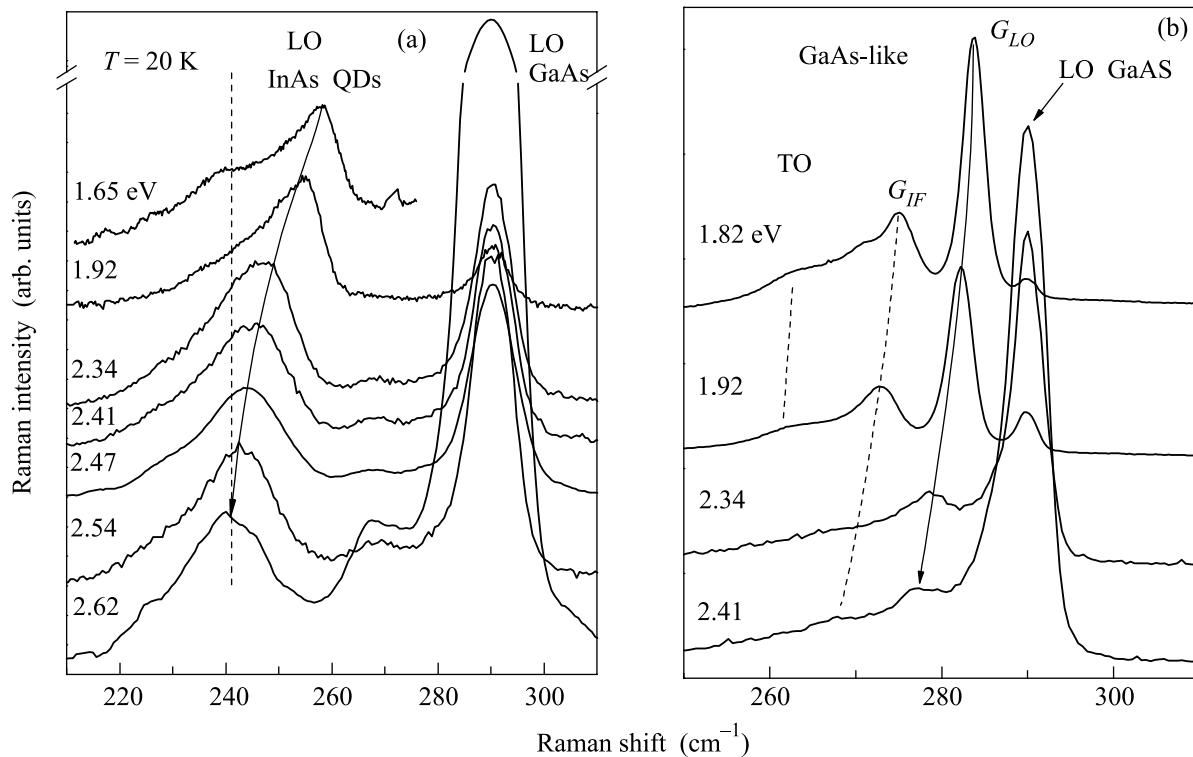


Рис.2. Экспериментальные спектры КРС структур с КТ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlAs}$ с (a) $x = 1$ и (b) $x = 0.3$, измеренные при различной энергии возбуждения при 20 К

InAs, поэтому InAs-подобные фононы не наблюдаются в спектрах КРС структур $\text{InGaAs}/\text{AlAs}$, записанных в нерезонансных условиях. Однако особенности, соответствующие GaAs-подобным LO фононам, отчетливо наблюдаются в спектрах КРС при различных энергиях возбуждения (рис.2b), а их частотное положение, как и в случае КТ InAs, уменьшается при увеличении энергии возбуждения, что указывает на резонансное КРС, селективное по размеру КТ InGaAs. Заметим, что возможным альтернативным объяснением уменьшения энергии GaAs-подобного LO фонона можно было бы считать КРС, селективное по составу КТ InGaAs. Тем более, что максимум ФЛ с ростом содержания индия в КТ сдвигается в высокоэнергетичную область (с 1.6 эВ при $x = 0.3$ до 1.8 эВ при $x = 0.75$). Однако в таком случае с ростом состава частота линии InAs-подобных фононов должна увеличиваться. В эксперименте (рис.1b), наоборот, наблюдается слабый низкочастотный сдвиг этой линии, что свидетельствует в пользу КРС, селективного по размеру КТ.

Энергия максимума полосы ФЛ исследуемых образцов (для КТ InGaAs она составляет величину порядка 1.6 ÷ 1.8 эВ) меньше, чем энергия фотона линии лазера 647.1 нм (1.92 эВ), поэтому выполняются условия выходного резонанса, при которых энергия

рассеянного света совпадает с энергией электронных переходов. В таких условиях наблюдается КРС высших порядков. Вид спектров практически одинаков для обеих использованных поляризаций, в то время как спектры КРС первого порядка, измеренные в геометрии $z(yx)\bar{z}$, проявляют дополнительно линии LO фононов AlAs (не показано на рисунке).

В спектрах КРС, записанных E_0 резонанса в КТ, наблюдаются обертоны LO фононов, интерфейсных InAs-, GaAs-подобных и AlAs фононов и составные тоны, происходящие от фононов материалов КТ и матрицы (рис.1b). Частоты обертонов с хорошей точностью (не хуже 2 cm^{-1}) равны сумме соответствующих значений колебательных мод первого порядка рассеяния. Для образца с $x = 0.3$ особенность $2G$ полностью воспроизводит структуру линий GaAs-подобных фононов на удвоенной частоте. Заметим, что на высоких частотах ФЛ дает увеличение постоянной составляющей сигнала, которая вычиталась для удобства представления данных.

Насколько известно авторам, это первое наблюдение обертонов IF фононов и составных тонов, происходящих не из разных фоновых ветвей одного материала, а из различных материалов (КТ и матрицы). Ранее сообщалось о наблюдении подобного эффекта в короткопериодных сверхрешетках GaAs/AlAs, вы-

ращенных на подложках GaAs, ориентированных в направлении [001] и [012] [17, 18]. В нанокристаллитах ZnO наблюдались и обертоны поверхностных оптических фононов [19], что указывает на сильное взаимодействие экситона с фрэлиховскими фононами. Резонансные особенности, наблюдаемые в спектрах КРС высших порядков, могут быть объяснены в рамках “каскадной” модели [20]. Согласно этой модели, процесс релаксации горячих экситонов включает в себя следующие стадии: а) поглощение падающего фотона с последующим возбуждением экситона, б) релаксация экситона в состояние с более низкой энергией с каскадной эмиссией *LO* фононов и в) излучательная рекомбинация экситона с эмиссией рассеянного фотона с энергией обертона.

Таким образом, в спектрах резонансного комбинационного рассеяния света первого порядка периодическими структурами InGaAs/AlAs с самоорганизованными КТ обнаружены особенности, соответствующие оптическим и интерфейсным фононам материалов КТ и матрицы. Частоты оптических фононов в КТ смещены в красную область относительно соответствующих значений в объемных материалах вследствие механических напряжений. Низкочастотный сдвиг линий *LO* фононов InAs в КТ InAs и GaAs-подобных *LO* фононов в КТ InGaAs с увеличением энергии возбуждения свидетельствует о КРС, селективном по размеру КТ. В спектрах КРС, записанных в условиях выходного резонанса, обнаружен ряд обертонов и составных тонов оптических и интерфейсных колебаний вплоть до третьего порядка.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 06-02-90870 РФФИ – АН Молдовы 2006 г.). Авторы признательны Т.С.Шамирзаеву за предоставленные данные по ФЛ квантовых точек InGaAs/AlAs.

1. P. A. Knipp and T. L. Reinecke, Phys. Rev. B **46**, 10310 (1992).
2. F. Comas, C. Trallero-Giner, N. Studart, and G. E. Marques, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 6469 (2002).
3. A. Milekhin, D. A. Tenne, and D. R. T. Zahn, *Quantum Dots Structures: Raman and Infrared Spectroscopy in Quantum Dots and Nanowires*, Eds. Supriyo Bandyopadhyay and Hari Singh Nalwa, American Scientific Publishers, 2003, pp. 375-419.
4. D. A. Tenne, V. A. Haisler, A. I. Toropov et al., Phys. Rev. B **61**, 13785 (2000).
5. A. G. Milekhin, A. I. Toropov, A. K. Bakarov et al., Phys. Rev. B **70**, 085314 (2004).
6. J. Ibanez, A. Patane, M. Henini, et al., Phys. Rev. B **83**, 3069 (2003).
7. М. Ю. Ладанов, А. Г. Милехин, А. И. Торопов и др., ЖЭТФ, **101**, 554 (2005).
8. G. Zanelatto, Yu. A. Pusep, N. T. Moshegov et al., J. Appl. Phys. **86**, 4387 (1999).
9. D. K. Ridley, Phys. Rev. B **39**, 5282 (1989).
10. W. J. Choa, H. Rhob, J. D. Songa et al., Physica E **26**, 115 (2005).
11. М. Я. Валах, В. В. Стрельчук, А. Ф. Коломыс и др., ФТТ **39**, 140 (2005).
12. R. Heitz, H. Born, A. Hoffmann et al., Appl. Phys. Lett. **77**, 3746 (2000).
13. T. Inoshita and H. Sakaki, Phys. Rev. B **46**, 7260 (1992).
14. J. Groenen, R. Carles, G. Landa et al., Phys. Rev. B **58**, 10452 (1998).
15. D. A. Tenne, A. K. Bakarov, A. I. Toropov, and D. R. T. Zahn, Physica E **13**, 199 (2002).
16. А. Г. Милехин, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков и др., Письма в ЖЭТФ **81**, 33 (2005).
17. M. Y. Meynadier et al., Phys. Rev. B **35**, 2517 (1987).
18. Z. V. Popovic et al., Phys. Rev. B **40**, 1207 (1989).
19. V. V. Ursaki, Phys. Rev. B **70**, 155204 (2004).
20. R. M. Martin and C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **26**, 1241 (1971).