

УДК 535.375.5

ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ И КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ЛЕГИРОВАННЫХ СВЕРХРЕШЁТКАХ GaAs/AlAs*

В. А. Володин

¹Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13

²Новосибирский государственный университет,

630090, г. Новосибирск, ул. Пирогова, 2

E-mail: volodin@isp.nsc.ru

С применением метода спектроскопии комбинационного рассеяния света исследовано взаимодействие фононов и свободных носителей заряда в легированных полупроводниковых наноструктурах (сверхрешётках). В легированных сверхрешётках на основе полярных полупроводников коллективные колебательные моды свободных носителей заряда (плазмоны) экранируют дальнедействующее кулоновское взаимодействие катионов и анионов, что приводит к образованию смешанных фонон-плазмонных мод. Исследована угловая дисперсия (анизотропия) фонон-плазмонных мод в легированных сверхрешётках GaAs/AlAs. Наблюдаемая анизотропия обусловлена анизотропией диэлектрической проницаемости в сверхрешётках.

Ключевые слова: фононы, плазмоны, локализация, комбинационное рассеяние света.

Введение. Прогресс в физике и технологии полупроводников связан с полупроводниковыми наноструктурами: сверхрешётками (СР) и латеральными сверхрешётками (ЛСР), квантовыми проволоками (КП) и квантовыми точками (КТ). Пространственное ограничение носителей заряда в наноструктурах изменяет форму волновых функций, их энергетический спектр квантуется, что приводит к модификации оптических и электронных свойств, вызывая фундаментальный и практический интерес [1, 2]. Колебательный спектр наноструктур отличается от колебательных спектров составляющих их объёмных материалов. Он определяется составом, размерами, формой, механическими напряжениями этих материалов [3, 4]. Важно знать, как фонон-плазмонное и электрон-фононное взаимодействие модифицирует колебательный спектр легированных полупроводниковых наноструктур и, как следствие, спектр комбинационного рассеяния света (КРС). Для объёмных полупроводников и твёрдых растворов это взаимодействие изучено в [3]. В полярных полупроводниках фононы образуют связанные моды с коллективными колебаниями свободных носителей заряда (плазмонами) — так называемые фонон-плазмонные моды [5]. Понижение симметрии в наноструктурах, локализация фононов, возникновение дискретного колебательного спектра в КТ приведут к усложнению механизма фонон-плазмонного взаимодействия.

Цель данной работы — исследование фонон-плазмонных мод в полупроводниковых СР, что позволит развить методику для бесконтактной оценки концентрации свободных носителей заряда в полупроводниковых наноструктурах со сложным фононным спектром.

Аппаратура. Методы измерений. Набор легированных СР GaAs/AlAs был изготовлен с применением метода молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs с ориентацией (100). Толщина слоёв AlAs составляла 1,4 нм, толщина слоёв GaAs варьировалась

*Работа выполнена при частичной поддержке Президиума РАН (проект № 24.29).

от 0,2 (субмонослойные покрытия) до 0,7 нм. Сверхрешётки содержали от 200 до 400 периодов. Рост СР осуществлялся при температуре подложки 550 °С в условиях структурной перестройки типа (2×4) поверхностей GaAs и AlAs, это контролировалось с помощью метода дифракции быстрых электронов. Сверхрешётки в процессе роста были однородно легированы кремнием, его концентрация составляла $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, что по оценкам должно давать при комнатной температуре объёмную концентрацию электронов порядка $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. В целях изоляции от подложки СР выращены на буферном слое AlAs толщиной в 0,3 мкм. Все СР покрыты защитным слоем GaAs толщиной 50 Å. Дисперсия фононов и смешанных фонон-плазмонных мод исследовалась с применением спектроскопии КРС. Все спектры регистрировались при комнатной температуре при возбуждении линией аргонового лазера 514,5 нм. Использовался спектрометр Т64000 производства "Horiba Jobin Yvon" (Франция), принадлежащий научно-образовательному комплексу «Наносистемы и современные материалы» Новосибирского государственного университета. Детектором служила кремниевая матрица фотоприёмников, охлаждаемая жидким азотом. Применялась приставка для микроскопических исследований КРС на базе микроскопа "Olympus". Латеральное разрешение определялось размерами лазерного пучка в фокусе и равнялось 1 мкм. Мощность излучения, достигающего до образца, составляла 2 мВт, излучение не вызывало заметного нагрева образцов.

Экспериментальные результаты. Для того чтобы исследовать анизотропию фононных и фонон-плазмонных мод, необходимо варьировать угол падения волнового вектора лазерного излучения. Поскольку рассматриваемые СР непрозрачны в видимом свете, изучение КРС возможно только в так называемой геометрии обратного рассеяния. Чтобы исследовать фонон-плазмонные моды с волновым вектором, направленным по нормали к плоскости СР, необходимо применять геометрию нормального падения (волновые векторы падающего и рассеянного фотонов направлены по нормали к СР). Чтобы исследовать фонон-плазмонные моды с волновым вектором, лежащим в плоскости СР, требуется применять геометрию, в которой волновые векторы падающего и рассеянного света расположены в плоскости СР. Это возможно, если использовать обратное рассеяние от «торца» СР, как показано на рис. 1. Поскольку толщины СР составляли доли микрона, применялась схема КРС с микроприставкой, свет фокусировался на торец СР.

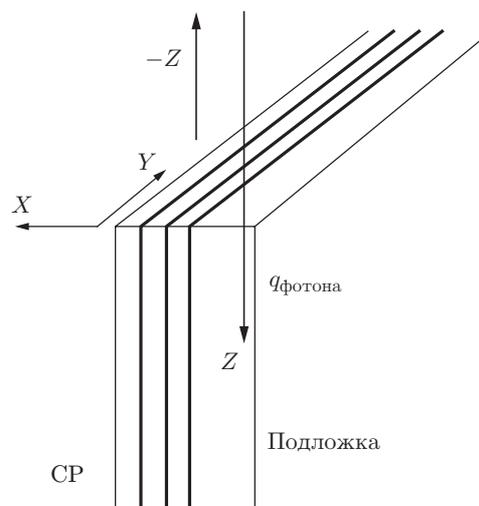


Рис. 1. Схема обратного КРС: импульсы падающего и рассеянного света направлены по нормали к СР (вдоль оси X) либо в плоскости СР (вдоль оси Z, $q_{\text{фотона}}$). Оси X, Y и Z соответствуют кристаллографическим направлениям (100), (01 $\bar{1}$) и (011)

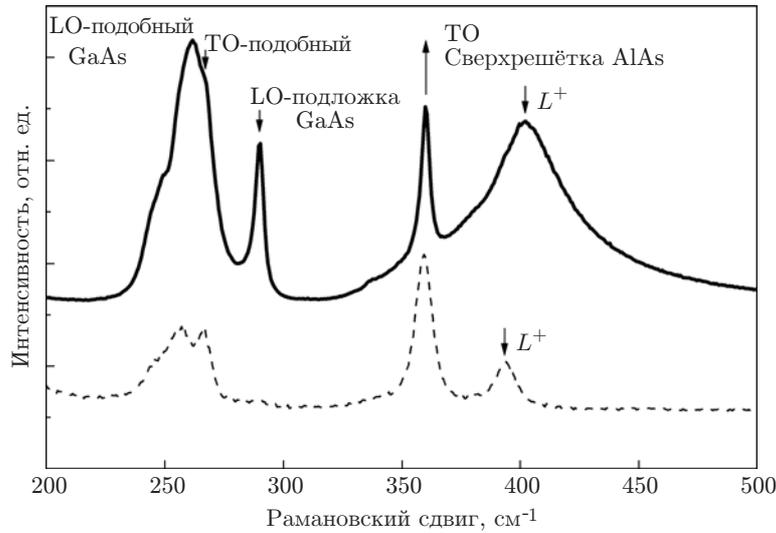


Рис. 2. Спектры КРС легированной СР GaAs(0,35 нм)/AlAs(1,4 нм): сплошная линия — волновой вектор света перпендикулярен поверхности СР, штриховая — волновой вектор света параллелен поверхности СР

На рис. 2 показаны спектры КРС сверхрешётки GaAs(0,35 нм)/AlAs(1,4 нм), зарегистрированные в геометриях $X(Y\bar{Y})-X$ и $Z(Y\bar{Y})-Z$. Здесь и далее оси в скобках соответствуют направлениям поляризаций векторов напряжённости электрического поля падающей и рассеянной электромагнитных волн, а оси вне скобок показывают направления волновых векторов падающей и рассеянной электромагнитных волн. Таким образом, в геометрии $X(Y\bar{Y})-X$ фотон рассеивается на фоновых и фонон-плазмонных модах, волновой вектор которых перпендикулярен СР. В геометрии $Z(Y\bar{Y})-Z$ фотон рассеивается на фоновых и фонон-плазмонных модах, волновой вектор которых лежит в плоскости слоёв СР. Пики в области $240-267\text{ см}^{-1}$ обусловлены рассеянием на продольных оптических (ЛО) фононах, локализованных в слоях GaAs. Несмотря на то что геометрия $X(Y\bar{Y})-X$ является запрещённой для рассеяния на поперечных оптических (ТО) фононах, в спектре проявляются пики, соответствующие КРС на данных модах. По-видимому, это связано с нарушением правил отбора по симметрии в короткопериодных СР с неидеально плоской гетерограницей. В исследуемых СР уровень легирования таков, что плазмоны взаимодействуют с продольными оптическими фононами AlAs-типа [6]. Смешанные фонон-плазмонные моды обозначены на рис. 2 как L^+ . Похожие спектры наблюдались для легированных твёрдых растворов $\text{Ga}_x\text{Al}_{(1-x)}\text{As}$ в [7]. Очевидно, что в случае твёрдых растворов никакой угло-

Экспериментально обнаруженная и рассчитанная разница частот L^+ смешанных фонон-плазмонных мод с волновыми векторами, нормальными к слоям СР и параллельными слоям СР

Толщина слоёв GaAs, нм	Волновой вектор перпендикулярен слоям СР		Волновой вектор параллелен слоям СР	
	Экспериментальные данные, см^{-1}	Рассчитанные данные, см^{-1}	Экспериментальные данные, см^{-1}	Рассчитанные данные, см^{-1}
0,2	405	410	400	404
0,35	403	409,4	393	400
0,7	390	407,8	388	393,8

вой анизотропии фонон-плазмонных мод быть не должно, поэтому авторы работы [7] её не исследовали. В нашем случае видно, что частоты L^+ -мод, зарегистрированные в разных геометриях, различаются.

Были также проанализированы легированные СР с толщинами слоёв GaAs 0,2 и 0,7 нм. Толщина слоёв AlAs во всех СР составляла 1,4 нм. В таблице приведены экспериментальные частоты L^+ -мод с направлениями распространения вдоль слоёв СР и нормально к слоям легированных СР. Наблюдаемая разница в частотах смешанных фонон-плазмонных мод отражает их анизотропию по направлению волнового вектора. Здесь же приведены рассчитанные данные положения пиков.

Расчёты и обсуждение результатов. Для объёмных полярных полупроводников фонон-плазмонное взаимодействие хорошо изучено и частоты фонон-плазмонных мод определяются в простой модели. Квадрат частоты плазмона с волновым вектором много меньшим волнового вектора Ферми [5] имеет вид

$$\Omega_p^2 = \frac{4\pi N e^2}{m^* \varepsilon_\infty}, \quad (1)$$

где N — объёмная концентрация свободных носителей заряда; e — заряд электрона; m^* — эффективная масса; ε_∞ — диэлектрическая проницаемость для частот много больше фононных (но меньше оптических). Волновое число Ферми для электронов в GaAs с концентрацией $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ составляет $3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$, тогда как максимально возможное (при рассеянии назад фотона с длиной волны 514,5 нм) волновое число квазичастицы $\approx 10^6 \text{ см}^{-1}$. Известно, что поправка к частоте плазмона вследствие дисперсии пропорциональна квадрату волнового числа q : $\Omega_p^2(q) = \Omega_p^2(0) + (3/5)q^2 v_F^2$ [8]. Для данной концентрации скорость Ферми v_F равна $5,4 \cdot 10^7 \text{ см/с}$ и поправка к плазмонной частоте не превышает 5 %. В пределах этой точности полная диэлектрическая проницаемость кристалла (с учётом вклада фононов и плазмонов, но без учёта затухания) [5]

$$\varepsilon_{\text{total}} = \varepsilon_\infty \left(\frac{\omega_{\text{LO}}^2 - \omega^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2} - \frac{\Omega_p^2}{\omega^2} \right). \quad (2)$$

Нули диэлектрической проницаемости соответствуют частотам собственных колебаний. Тогда частоты связанных фонон-плазмонных мод (L^+ и L^-)

$$\omega_{L^+, L^-}^2 = \frac{1}{2} \{ (\Omega_p^2 + \omega_{\text{LO}}^2) \pm [(\Omega_p^2 + \omega_{\text{LO}}^2)^2 - 4\Omega_p^2 \omega_{\text{TO}}^2]^{1/2} \}. \quad (3)$$

Из анализа формул (1) и (3) следует, что в объёмном слое GaAs при концентрации электронов приблизительно от $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и выше фонон-плазмонное взаимодействие становится существенным; невозможно выделить «чистые» фононные или плазмонные моды. В спектрах КРС должны наблюдаться L^+ -моды с частотами заметно большими частот ЛО-фононов и L^- -моды с частотами несколько меньшими частот ТО-фононов.

Для СР диэлектрическая проницаемость становится анизотропной. Рассмотрим, как это будет влиять на анизотропию фонон-плазмонных мод в СР. Пусть диэлектрические проницаемости материалов 1 и 2 [3]

$$\varepsilon_{1,2} = \varepsilon_{\infty 1,2} \left(\frac{\omega_{\text{LO}1,2}^2 - \omega^2}{\omega_{\text{TO}1,2}^2 - \omega^2} \right).$$

Тогда, если эти материалы составляют СР с толщиной слоёв d_1 и d_2 , в приближении эффективной среды (формула (3.27) в [3]) диэлектрическая проницаемость для электрического поля, направленного вдоль осей X , Y и Z , запишется как

$$\begin{aligned}\varepsilon_X &= \langle \varepsilon^{-1} \rangle^{-1} = \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2 (d_1 + d_2)}{\varepsilon_2 d_1 + \varepsilon_1 d_2}; & \varepsilon_{\infty, X} &= \frac{\varepsilon_{\infty 1} \varepsilon_{\infty 2} (d_1 + d_2)}{\varepsilon_{\infty 2} d_1 + \varepsilon_{\infty 1} d_2}; \\ \varepsilon_{Y, Z} &= \langle \varepsilon \rangle = \frac{\varepsilon_1 d_1 + \varepsilon_2 d_2}{d_1 + d_2}; & \varepsilon_{\infty Y, Z} &= \frac{\varepsilon_{\infty 1} d_1 + \varepsilon_{\infty 2} d_2}{d_1 + d_2}.\end{aligned}\quad (4)$$

В случае наличия в СР плазменных колебаний к фоновому вкладу в диэлектрическую проницаемость добавится ещё и вклад от плазмонов. По аналогии с выражением (2) запишем диэлектрическую проницаемость смешанной фонон-плазмонной моды, распространяющейся вдоль оси X (нормальная геометрия регистрации), как

$$\varepsilon_{X, \text{total}} = \varepsilon_X - \varepsilon_{\infty, X} (\Omega_p^2 / \omega^2). \quad (5)$$

Для смешанной фонон-плазмонной моды, распространяющейся вдоль слоёв СР (геометрия регистрации с фокусированием в торец СР), диэлектрическая проницаемость имеет вид

$$\varepsilon_{Y, Z, \text{total}} = \varepsilon_{Y, Z} - \varepsilon_{\infty Y, Z} (\Omega_p^2 / \omega^2). \quad (6)$$

Необходимо отметить, поскольку диэлектрическая проницаемость на больших частотах входит в плазмонную частоту (формула (1)), то её анизотропия в СР сокращается, поэтому удобнее (5) и (6) переписать в виде

$$\varepsilon_{X, \text{total}} = \varepsilon_X - \tilde{\Omega}_p^2 / \omega^2, \quad \varepsilon_{Y, Z, \text{total}} = \varepsilon_{Y, Z} - \tilde{\Omega}_p^2 / \omega^2, \quad \tilde{\Omega}_p^2 = (4\pi N e^2) / m^*. \quad (7)$$

Частота плазмона $\tilde{\Omega}_p$ здесь отличается от частоты плазмона Ω_p (выражение (1)), она записана в форме, не зависящей от диэлектрической проницаемости, т. е. изотропна. Для нахождения нулей диэлектрической проницаемости в случае СР необходимо решать уравнение третьей степени. Аналитические выражения будут выглядеть весьма громоздко, поэтому уравнения (7) после подстановки ε_X и $\varepsilon_{Y, Z}$ решены численно. Находились значения частот, при которых диэлектрические проницаемости $\varepsilon_{X, \text{total}}$ и $\varepsilon_{Y, Z, \text{total}}$ обращаются в нуль. Как уже отмечалось, уравнения (7) имеют по три корня, частота L^+ -моды — это корень одного из уравнений (7) с наибольшим значением. Результаты зависимости частот L^+ -мод (для различных направлений распространения) при концентрации электронов $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ приведены в таблице. При расчётах были использованы следующие параметры: диэлектрическая проницаемость на больших частотах для GaAs 10,89, для AlAs 8,16; частоты LO-фононов для GaAs 291 см^{-1} , для AlAs 402 см^{-1} ; частоты TO-фононов для GaAs 267 см^{-1} , для AlAs 361 см^{-1} ; эффективная масса электрона бралась как для объёмного слоя GaAs. Частоты L^+ -мод завышены в сравнении с экспериментальными в связи с тем, что вследствие локализации оптических фононов в СР их частоты меньше, чем в объёмных материалах.

Расчёты в такой простой модели дают некоторое расхождение с экспериментальными данными (см. таблицу). Видно, что разница частот мод с разными направлениями волновых векторов в расчётах растёт с приближением толщины слоёв GaAs к толщине слоёв AlAs. В эксперименте эта зависимость немонотонна. Очевидно, что для адекватного описания необходимо учесть анизотропию обратной эффективной массы, входящей в выражение для плазмонной частоты в уравнениях (7). В работе [9] предложен подход

к расчётам, точность которых зависит от тензора обратных эффективных масс. Для используемого соотношения толщин GaAs и AlAs мы имеем дело с СР второго типа [6]. При переходе СР GaAs/AlAs от первого ко второму типу происходит перемешивание электронных состояний Γ - и X -долин. Эффективные массы электронов в X -долинах GaAs и AlAs анизотропные, к тому же искусственно созданная симметрия в СР также вносит свой вклад в анизотропию масс. Следует отметить, что численная модель, изложенная в [9], учитывает и анизотропию диэлектрической проницаемости в СР, и эффекты локализации фононов.

Заключение. В сверхрешётках GaAs/AlAs экспериментально наблюдалась зависимость частот смешанных фонон-плазмонных мод от направления их волнового вектора, т. е. угловая анизотропия дисперсии. Этот результат можно интерпретировать как влияние анизотропии диэлектрической проницаемости в СР.

Автор выражает благодарность канд. физ.-мат. наук В. В. Преображенскому и канд. физ.-мат. наук Б. Р. Семягину за изготовление экспериментальных образцов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Алферов Ж. И.** История и будущее полупроводниковых гетероструктур // ФТП. 1998. **32**, № 1. С. 3–18.
2. **Леденцов Н. Н., Устинов В. М., Шукин В. А. и др.** Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры. Обзор // ФТП. 1998. **32**, № 4. С. 385–398.
3. **Light Scattering in Solids V: Superlattices and Other Microstructures** /Eds. M. Cardona, G. Güntherodt. Berlin: Springer-Verlag, 1989. 351 p.
4. **Степина Н. П., Зиновьева А. Ф., Дерябин А. С. и др.** Формирование и структурные свойства квантовых точек кремния в германии // Автометрия. 2013. **49**, № 5. С. 18–24.
5. **Рассеяние света в твердых телах.** Выпуск IV. Электронное рассеяние, спиновые эффекты, морфические эффекты /Под ред. М. Кардона, Г. Гюнтеродт. М.: Мир, 1986. 408 с.
6. **Володин В. А.** Экспериментальное обнаружение анизотропии фонон-плазмонных мод в сверхрешетках GaAs/AlAs(100) // Письма в ЖЭТФ. 2009. **89**, № 8. С. 483–485.
7. **Минтаиров А. М., Смекалин К. Е., Устинов В. М., Хвостиков В. П.** Фонон-плазмонные моды в спектрах комбинационного рассеяния света эпитаксиальных слоев n -Al_xGa_{1-x}As // ФТП. 1992. **26**, № 4. С. 614–628.
8. **Пайнс Д.** Элементарные возбуждения в твердых телах. М.: Мир, 1965. 195 с.
9. **Volodin V. A., Efremov M. D., Sachkov V. A.** Phonon-plasmon coupling modes in tunneling thin GaAs/AlAs (311) and (001) SLs: Raman studies and modeling // Nanophysics, Nanoclusters and Nanodevices /Ed. K. S. Gehar. N. Y.: Nova Science Publishers, Inc., 2006. P. 245–281.

Поступила в редакцию 2 июля 2013 г.