

12,13,03,10

Проявление неоднородности состава квантовых проволок $Zn_{1-x}Mg_xTe$ в спектрах комбинационного рассеяния света

© Т.Н. Заварицкая¹, И.В. Кучеренко¹, G. Karczewski², Н.Н. Мельник¹,
В.С. Виноградов¹, W. Zaleszyk²

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Москва, Россия

² Институт физики Польской академии наук,
Варшава, Польша

E-mail: kusheren@sci.lebedev.ru, vvs@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 25 мая 2010 г.)

Исследованы спектры резонансного комбинационного рассеяния света квантовых проволок $Zn_{1-x}Mg_xTe$. Обнаружена зависимость частот продольных оптических фононов $ZnTe$ - и $MgTe$ -подобных мод (LO1 и LO2) от энергии фотона. Характер этих зависимостей коррелирует с изменением частот оптических фононов сплавов $Zn_{1-x}Mg_xTe$ от состава (x). Это дает основание предположить, что квантовые проволоки неоднородны по составу. Данное предположение подтверждает также увеличение отношения интенсивностей мод LO2 и LO1 в спектрах комбинированного рассеяния света при увеличении энергии возбуждения.

1. Введение

Полупроводниковые соединения типа II–VI вызывают возросший в последнее время интерес благодаря широкой запрещенной зоне этих материалов и возможности создания на их основе оптоэлектронных приборов, работающих в коротковолновой области. Среди наноструктур II–VI семейство теллуридов оказывается чрезвычайно привлекательным для создания приборов, излучающих в зеленой спектральной области. Очень важным свойством бинарных соединения II–VI является их хорошее смешивание, что дает возможность формирования тройных соединений на их основе. В этом контексте тройные соединения на основе $ZnTe$ с примесью $Mn(Zn_{1-x}Mn_xTe)$, а также с примесью $Mg(Zn_{1-x}Mg_xTe)$ заслуживают особого внимания. В объемных кристаллах $Zn_{1-x}Mg_xTe$ максимальная концентрация Mg не превышает $x = 45$. Однако метод молекулярно-лучевой эпитаксии позволяет выращивать эпитаксиальные слои $ZnMgTe$ во всей области составов. Эпитаксиальные слои $Zn_{1-x}Mg_xTe$ уже используются в качестве барьерных слоев в структурах с квантовыми ямами $ZnTe$. Поэтому весьма важно изучать свойства этих новых наноструктур.

Мы представляем результаты исследования спектров комбинационного рассеяния света (КРС) квантовых проволок $Zn_{1-x}Mg_xTe$ ($0 \leq x \leq 0.5$) при возбуждении перестраиваемым Ar^+ -лазером с энергиями фотонов 2.18–2.73 eV.

2. Образцы

Квантовые проволоки (КП) $Zn_{1-x}Mg_xTe$ были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на под-

ложках GaAs, ориентированных по осям (100) и (111) (см. таблицу).

В качестве катализатора использовалась осажденная на подложку пленка Au толщиной 10 Å. Средний диаметр проволок составлял 30 nm, а длина примерно 1 μm. Нанопроволоки ориентированы вдоль кристаллографического направления (111). Структурные свойства выращенных КП исследовались на просвечивающей электронной микроскопе высокого разрешения и методом дифракции рентгеновских лучей (XRD). Технология выращивания и результаты структурных исследований КП приведены в [1].

3. Результаты эксперимента и их обсуждение

В работе исследуются спектры КРС образцов с КП $Zn_{1-x}Mg_xTe$ при возбуждении Ar^+ -лазером, перестраиваемым в диапазоне длин волн 5681–4545 Å, при комнатной температуре. Спектры КРС регистрировались спектрометром U-1000, соединенным с микроскопом, в геометрии обратного рассеяния с разрешением 1.5 cm^{-1} . Спектры оптических фононов объемных сплавов $Zn_{1-x}Mg_xTe$ были ранее исследованы в [2,3].

Средняя концентрация Mg в $Zn_{1-x}Mg_xTe$, определенная методом XRD

Номер образца	Наименование	Подложка	x
1	101107A	GaAs(100)	25
2	101107B	GaAs(100)	28
3	101107C	GaAs(100)	30
4	111307A	GaAs(111)	56

Было показано, что перестройка фононного спектра этих сплавов имеет двухмодовый характер. В спектрах КРС квантовых проволок $Zn_{1-x}Mg_xTe$ также проявляются $ZnTe$ - и $MgTe$ -подобные моды, характерные для объемных образцов. На рис. 1 представлены спектры КРС образца № 1 (см. таблицу) при энергиях фотона 2.33, 2.41 и 2.54 eV. На спектрах четко видны линии продольного $ZnTe$ -подобного фонона (LO1), продольного $MgTe$ -подобного фонона (LO2), суммарные колебания LO1+LO2, 2LO1+LO2, а также двух-, трех- и четырехфононные повторения моды LO1 и двухфононная мода LO2. Узкие интенсивные линии спектров указывают на хорошее качество кристаллической структуры КП. $ZnMgTeLO$ фононные обертоны вплоть до 5 порядка наблюдаются в условиях резонанса по рассеянному свету (outgoing resonance). Мы обнаружили, что частота моды LO1 уменьшается, а моды LO2 — увеличивается с ростом энергии фотонов E_{phot} . Из рис. 1 видно, что частота моды LO1 уменьшается от 203.5 cm^{-1} ($E_{phot} = 2.33\text{ eV}$) до 198 cm^{-1} ($E_{phot} = 2.5\text{ eV}$), а моды LO2 возрастает от 267.5 до 273 cm^{-1} . Частоты мод 2LO1, 3LO1 и 2LO2 изменяются соответствующим образом. Зависимость частоты моды LO1 от E_{phot} в образцах № 1, 2 и 4 представлены на рис. 2. Для всех образцов характерно уменьшение частоты LO1 фонона с ростом E_{phot} . Так, в образце № 2 частота уменьшается на 13 cm^{-1} в указанном диапазоне энергии. На рис. 3 показана зависимость частоты LO2-фонона от E_{phot} . Видно, что она увеличивается с ростом E_{phot} в образце № 2 на 8 cm^{-1} . Следует отметить, что в объемных сплавах $Zn_{1-x}Mg_xTe$ ($x = 0.1-0.4$) частоты мод LO1 и LO2 не зависят от E_{phot} в пределах 0.5 cm^{-1} . Мы предположили, что зависимость частот мод LO1 и LO2 от энергии возбуждения в квантовых нитях связана с неоднородным распределением Mg. В работе [1] высказывалось предположение на основании измерения дифракции рентгеновских лучей о существовании композиционной неоднородности по оси роста проволоки. На существование такой неоднородности указывает большая ширина линий дифракции.

Поскольку сечение резонансного КРС в десятки раз больше нерезонансного, спектр КРС образца с неоднородными КП при данной энергии E_{phot} будет определяться таким участком КП, в котором энергия резонансного электронного перехода близка к энергии фотона. Известно, что ширина запрещенной зоны сплавов $Zn_{1-x}Mg_xTe$ зависит от x : она увеличивается с ростом x [4]. Таким образом, изменяя E_{phot} , мы получаем спектры КРС от разных областей КП. Характер зависимостей частот LO1 и LO2 от E_{phot} в КП аналогичен композиционным зависимостям оптических фононов в объемных сплавах $Zn_{1-x}Mg_xTe$ [2,3]: частота LO1 уменьшается, а LO2 увеличивается с ростом x . Мы исключили несколько факторов, которые могут оказывать влияние на частоту оптических фононов: деформация и пространственное ограничение (эффект конфинмента). Согласно нашим данным, частоты продольных оптических фононов КП

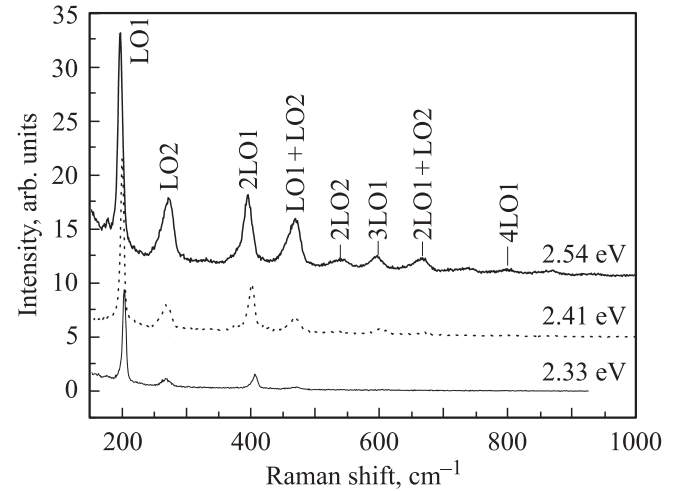


Рис. 1. Спектр КРС образца № 1 при $T = 300\text{ K}$.

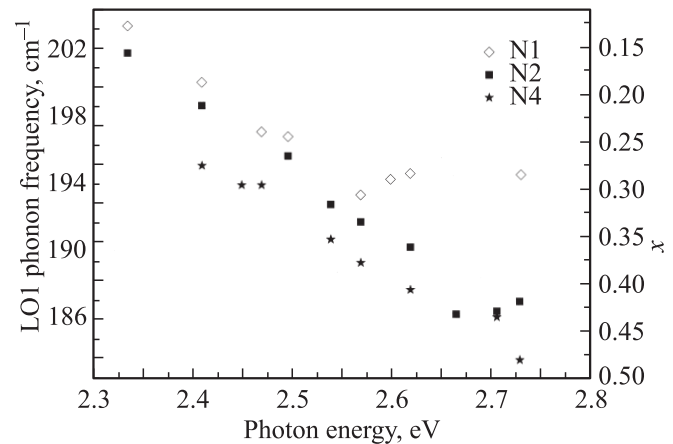


Рис. 2. Зависимости частоты моды LO1 от энергий фотона и состава (x) в образцах № 1, 2 и 4.

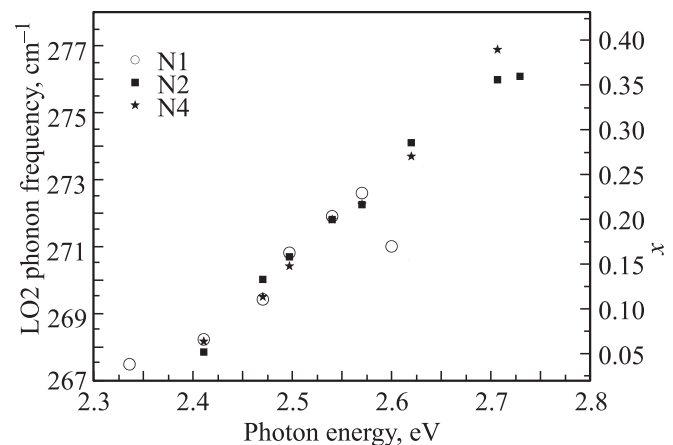


Рис. 3. Зависимости частоты моды LO2 от энергий фотона и состава (x) в образцах № 1, 2 и 4.

ZnSe [5] и ZnTe [6] совпадают с частотой фононов объемных кристаллов. Влияние пространственного ограничения на фоновые спектры также можно исключить, так как этот эффект становится заметным при толщине нити ≤ 10 nm. Мы оценили пределы изменения концентрации Mg в образцах № 1, 2, 4 на основании композиционных зависимостей частот мод LO1 и LO2 в сплавах ZnMgTe [3] (рис. 2 и 3). Из рис. 2 видно, что в образце № 1 частота LO1 почти не изменяется при $E_{\text{phot}} \geq 2.6$ eV. Это означает, что в данном образце нет областей с концентрацией $x \geq 0.28$. В образце № 2 „насыщение“ начинается при $E_{\text{phot}} \geq 2.66$ eV, что соответствует $x = 0.42$. В образце № 4, напротив, нет составов с $x \leq 0.27$. Пределы изменения концентрации Mg в нитях, полученные из зависимостей частот LO2 от x (рис. 3), с точностью примерно 5% совпадают с данными рис. 2. Если ввести понятие усредненной концентрации Mg по нитям (x_{av}), то эта величина равна ≈ 0.2 в образце № 1, 0.28 в образце № 2, 0.36 в образце № 3. В образце № 4 величина x_{av} больше, чем в образцах № 1, 2, 3, однако мы можем лишь утверждать, что она > 0.4 . Значения x_{av} в образцах № 1, 2, 3 коррелируют с теми, которые получены из измерений дифракции рентгеновских лучей (XRD) (см. таблицу).

Из спектров КРС следует, что отношение интенсивностей мод LO2 и LO1 также зависит от энергии фотона. На рис. 4 представлены спектры КРС образца № 3 для трех энергий возбуждения. Хорошо видно, что отношение интенсивностей мод LO2/LO1 увеличивается с ростом E_{phot} . Мы проанализировали отношение интегральных интенсивностей мод LO2/LO1 в зависимости от E_{phot} в образцах № 1, 3, 4 (рис. 5). Известно, что в полупроводниковых сплавах $A_{1-x}B_xC$ отношение интенсивностей продольных оптических фононов AC- и BC-подобных мод хорошо описывается формулой: $I_{BC}/I_{AC} = Bx/2(1-x)$ [7,8]. Это соотношение используют, например, для определения состава квантовой точ-

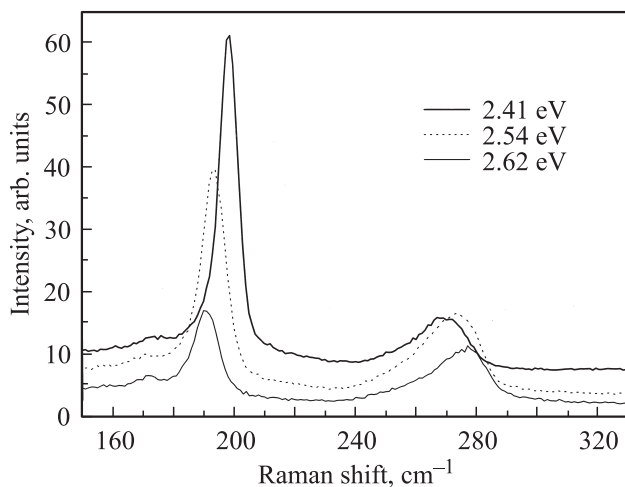


Рис. 4. Спектры КРС образца № 3 при энергиях фотона 2.41, 2.54, и 2.62 eV.

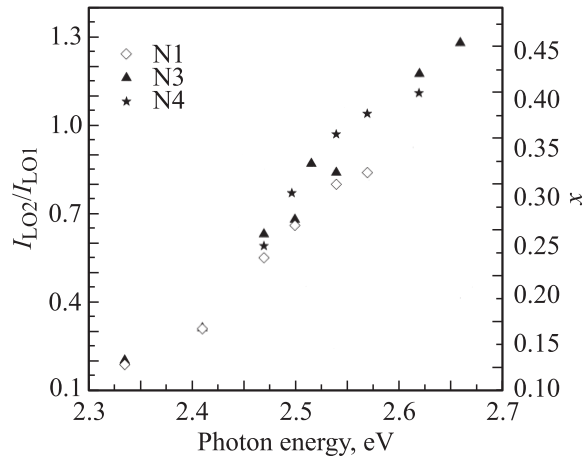


Рис. 5. Зависимость отношения интегральных интенсивностей мод LO2 и LO1 от энергий фотона и состава в образцах № 1, 3 и 4.

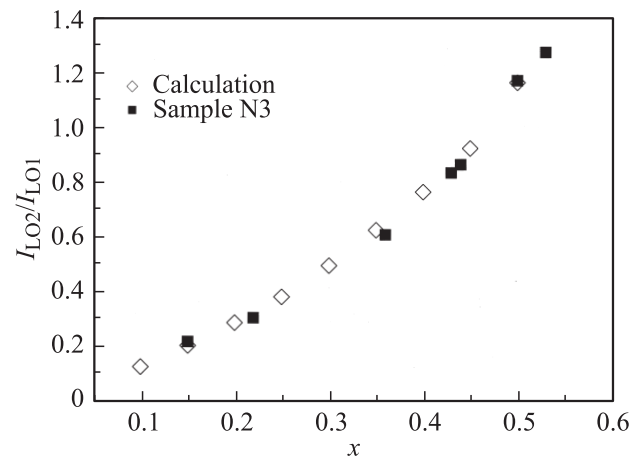


Рис. 6. Зависимость отношения интегральных интенсивностей мод LO2 и LO1 от состава в образце № 3 и расчетная функция $I_{LO2}/I_{LO1} = Bx/2(1-x)$, $B = 2.3$.

ки Ge/Si [8]. Из рис. 5 видно, что во всех образцах отношение интегральных интенсивностей I_{LO2}/I_{LO1} возрастает с увеличением E_{phot} . Это является еще одним свидетельством в пользу предположения о существовании композиционной неоднородности в КП. На рис. 6 показаны экспериментальная зависимость $I_{LO2}/I_{LO1} = f(x)$ для образца № 3 и расчетная кривая по приведенной выше формуле. Наилучшее согласие получено для $B = 2.3$, что близко к значению, приведенному в [8].

4. Заключение

Таким образом, показано, что при резонансном КРС в неоднородных квантовых проволоках ZnMgTe большим энергиям возбуждения соответствуют области с большим значением x . Характер зависимости частот оптических фононов от E_{phot} в КП определяется их зависимостью от состава, которая известна для объ-

емных сплавов. В квантовых проволоках $Zn_{1-x}Mn_xTe$ ($x = 0.24, 0.29$) также существует монотонная зависимость частоты $ZnTe$ -подобной моды (LO1) от энергии фотона: она увеличивается при увеличении E_{phot} примерно на 1 cm^{-1} в интервале $2.33\text{--}2.73 \text{ eV}$ [6]. Характер этих изменений также согласуется с композиционной зависимостью моды LO1 в сплавах $ZnMnTe$ [9].

Мы полагаем, что исследования спектров резонансного КРС при различных, но близких по величине энергиях возбуждения могут быть использованы для определения степени неоднородности по составу в таких наноструктурах, как квантовые проволоки, квантовые точки и квантовые ямы. Данный метод обладает высоким пространственным разрешением. Наши исследования КРС квантовых точек Ge/Si показали, что при выполнении резонансных условий можно получить хороший спектр даже от одного слоя квантовых точек высотой 1 nm [10].

Список литературы

- [1] E. Janik, E. Dynowska, P. Dluzewski, S. Kret, A. Presz, W. Zaleszczyk, W. Szuszkiewicz, J.F. Morhange, A. Petrouchik, S. Mackowski, T. Wojtowicz. *Nanotechnology* **19**, 365 606 (2008).
- [2] K. Vodopyanov, E.A. Vinogradov, N.N. Melnik, V.G. Plotnitchenko, J. Chevallier, J.C. Guillaume. *J. de Physique* **39**, 627 (1973).
- [3] R. Vogelgessang, A.J. Mayur, M. Dean Sciacca, Eunsoo Oh, I. Miotkowski, A.K. Ramdas, S. Rodriguez. *J. Raman Spectr.* **27**, 239 (1996).
- [4] X. Liu, U. Bindly, Y. Sasaki, J.K. Furdina. *J. Appl. Phys.* **91**, 2839 (2002).
- [5] Н.Н. Мельник, В.С. Виноградов, И.В. Кучеренко, Г. Карчевски, О.С. Пляшечник. *ФТТ* **51**, 787 (2009).
- [6] В.С. Виноградов, Т.Н. Заварицкая, G. Karczewski, И.В. Кучеренко, Н.Н. Мельник, W. Zaleszczyk. *ФТТ* **52**, 1634 (2010).
- [7] M.A. Renicci, J.B. Renucci, M. Cardona. *Int. Proc. of the 2nd Int. Conf. on light scattering on solids/ Ed. M. Balkanski. Flammarion, Paris (1971). P. 326.*
- [8] P.H. Tan, K. Brunner, D. Bougeard, G. Abstreiter. *Phys. Rev. B* **68**, 125 302 (2003).
- [9] D.L. Peterson, A. Petron, W. Girit, A.K. Ramdas, S. Rodriguez. *Phys. Rev. B* **33**, 1160 (1986).
- [10] И.В. Кучеренко, В.С. Виноградов, Н.Н. Мельник, Л.В. Арапкина, В.А. Чапнин, К.В. Чиж, В.А. Юрьев. *ФТТ* **50**, 1888 (2008).