

# Проявление эффектов взаимодействия в спектрах рамановского рассеяния слоев квантовых точек CdTe с узкими барьерами ZnTe

© В.С. Виноградов, Л.К. Водопьянов, Г. Карчевски\*, Н.Н. Мельник

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,  
119991 Москва, Россия

\* Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,  
02-668 Warsaw, Poland

E-mail: vvs@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 21 апреля 2005 г.  
В окончательной редакции 30 августа 2005 г.)

Исследованы спектры рамановского рассеяния света сверхрешеток из слоев самоорганизующихся квантовых точек CdTe, разделенных узкими барьерами ZnTe в 10 и 5 монослоев. В области колебательных мод CdTe кроме полос  $\sim 120$  и  $140 \text{ cm}^{-1}$ , наблюдавшихся ранее в спектрах образцов с более широкими барьерами (25 и 12 монослоев), присутствовала также полоса  $\sim 147 \text{ cm}^{-1}$ . Эта полоса объясняется симметричной модой колебаний пары квантовых точек, в которой колебания их дипольных моментов происходят навстречу друг другу. Подобного типа модой колебаний материала, окружающего квантовую точку (ZnTe), можно объяснить сдвиг полосы  $\sim 200 \text{ cm}^{-1}$  вблизи LO моды ZnTe в низкочастотную сторону.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 03-02-7110).

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

В настоящее время полупроводниковые микроструктуры (квантовые ямы, нити и точки) пользуются повышенным вниманием исследователей, так как эти структуры по сравнению с обычными полупроводниками обладают новыми физическими свойствами, полезными для применений в таких областях как опто- и микроэлектроника, квантовые компьютеры. Существенными факторами, определяющими физику микроструктур и их технологические свойства, являются упругие напряжения, градиенты физических полей, границы раздела и пониженная размерность.

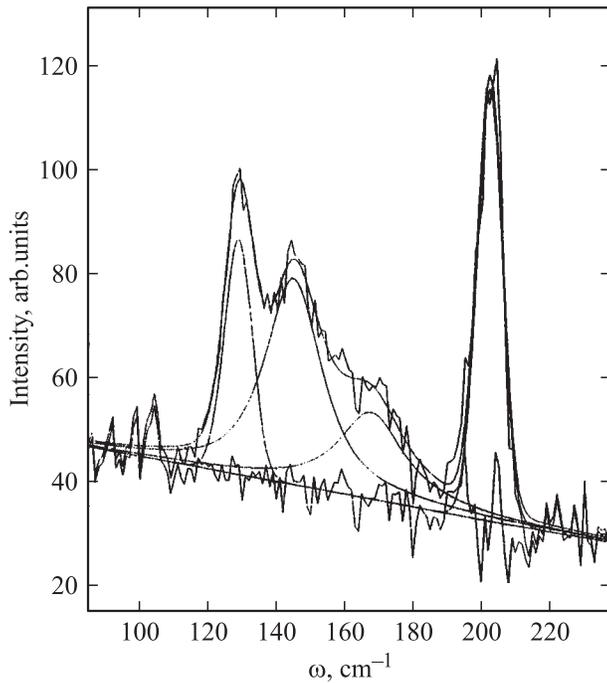
Важной частью этого направления является исследование микроструктур на основе твердых растворов группы II–VI, перспективных для конструирования источников света в сине-голубой области и других применений.

Ранее [1] нами были исследованы спектры рамановского рассеяния света слоев из самоорганизующихся квантовых точек (КТ) CdTe, перемежаемых слоями ZnTe, и установлено, что они качественно отличаются от спектров других структур с КТ. В структурах с шириной барьера ZnTe в 75, 25 и 12 монослоев (МС) в области колебательных мод CdTe наблюдались две полосы  $\sim 120$  и  $\sim 140 \text{ cm}^{-1}$ , а в области колебательных мод ZnTe — полоса при  $\sim 200 \text{ cm}^{-1}$ . Спектр этих структур был объяснен в предположении отсутствия взаимодействия между колебаниями различных КТ. Полосы при  $\sim 120$  и  $\sim 140 \text{ cm}^{-1}$  были отождествлены соответственно с модой „плененных“ в КТ CdTe фононов и ее симметричной кулоновской (пограничной) модой. Полоса при  $\sim 200 \text{ cm}^{-1}$  объяснена накладывающимися друг на друга дипольной (LO) модой объемного ZnTe и симметричной модой ZnTe, окружающего КТ.

В настоящей работе для выяснения вопроса о том, как сказывается на рамановском спектре взаимодействие между колебательными модами различных КТ, исследуются структуры с малыми ширинами барьера ZnTe (до 10, 5 МС), где это взаимодействие ожидается заметным.

Сверхрешетки со слоями КТ выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке (100) GaAs [2,3]. На подложку наносился буферный слой ZnTe толщиной в несколько микрон, на который затем наращивалась сверхрешетка из слоев CdTe толщиной 3 МС, разделенных барьерами ZnTe толщиной 5, 10 и 50 МС. Число периодов менялось от  $N = 1$  до 400. По данным электронной микроскопии [2,3], КТ имеют ширину 60–100 Å и высоту 20 Å. Расстояния между центрами КТ вдоль слоя составляли величину порядка 100–150 Å. Расстояния между слоями для образцов с барьерами 10, 50 МС — более 40 Å. В образце с барьером 5 МС это расстояние составляет 20 Å, и КТ соседних слоев почти соприкасаются. Спектры рамановского рассеяния регистрировались на спектрометре U-1000 в геометрии обратного рассеяния при возбуждении линией 4880 Å Ar<sup>2+</sup>-лазера. Спектральное разрешение составляло  $1 \text{ cm}^{-1}$ .

Спектры образцов с ширинами барьера 10 и 50 МС в основном совпадали со спектрами рамановского рассеяния образцов с более широкими барьерами, исследованными в [1]. Наблюдались полосы  $\sim 120$ ,  $\sim 140$  и  $\sim 200 \text{ cm}^{-1}$ . В этих образцах наблюдалась также полоса при  $170 \text{ cm}^{-1}$ , совпадающая по частоте с LO-модой объемного CdTe. Эти моду мы приписываем колебанию смачивающего слоя CdTe. Спектр рамановского рассеяния образца с шириной барьера 10 МС ZnTe и  $N = 20$  представлен на рис. 1. На рис. 2 изображен



**Рис. 1.** Спектр рамановского рассеяния для сверхрешетки квантовых точек CdTe/ZnTe, зарегистрированный при комнатной температуре в геометрии обратного рассеяния при возбуждении линией 4880 Å аргонового лазера. Кривые с шумами — экспериментальный спектр, гладкие кривые — результат контурного анализа. Параметры образца: ширина барьера 10 МС, число периодов  $N = 20$ .

рамановский спектр образца с шириной барьера 5 МС ZnTe и  $N = 400$ . Полоса  $\sim 170 \text{ cm}^{-1}$  отсутствует, а полоса вблизи  $\sim 200 \text{ cm}^{-1}$  существенно сдвинута в низкочастотную сторону. Кроме того, сложная структура в районе  $120\text{--}150 \text{ cm}^{-1}$  раскладывается не на две, а на три полосы с частотами 126.5, 142 и  $147 \text{ cm}^{-1}$ .

Чтобы понять изменения в спектре рамановского рассеяния при уменьшении ширины барьера, проанализируем влияние на спектр таких факторов как взаимодействие колебательных мод различных КТ, упругие напряжения, взаимная диффузия CdTe и ZnTe. Отметим, что влияние кулоновского взаимодействия на экситонные возбуждения пары КТ экспериментально исследовалось в [4]. В этой работе также содержатся ссылки на работы, где изучалось взаимодействие электронных и колебательных возбуждений в аналогичных структурах из КТ структурах из растворенных макромолекул.

Решим, прежде всего, задачу о колебательных модах пары КТ. Для этого будем использовать соотношения макроскопической электродинамики, описывая материал КТ и ее окружения непрерывными средами с собственными диэлектрическими функциями. Пренебрежение дискретной структурой КТ оправдано, поскольку постоянная решетки много меньше размеров КТ и длины волны фигурирующих в задаче возбуждений.

Такой подход при описании свойств КТ сейчас широко применяется (см. литературу в [1]).

КТ будем представлять сферами радиуса  $R_0$ , расположенными на расстоянии  $R$  между их центрами. Будем предполагать, что в КТ могут содержаться свободные носители, а вне КТ они отсутствуют. Квазистатистический потенциал  $\varphi$  от зарядов, возникающих на поверхности и внутри ( $i$ ) КТ при ее колебании, описывается уравнением  $\Delta\varphi - \kappa^2\varphi = 0$ , где  $\kappa$  — константа экранирования, а также уравнением Лапласа  $\Delta\varphi = 0$  вне ( $e$ ) КТ. Этот потенциал от КТ с номером  $k$  представим в виде

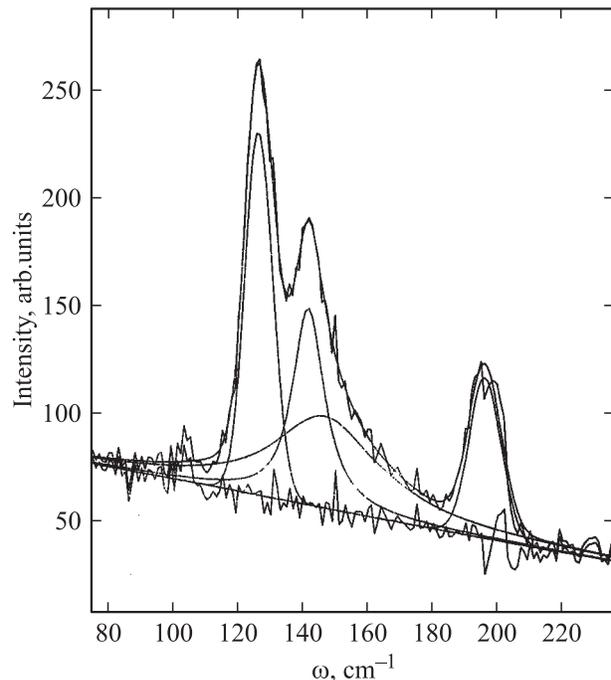
$$\varphi_{i(e)k}(\mathbf{r}) = \sum_{lm} C_{lm}^{i(e)k} R_l^{i(e)}(r_k) Y_{lm}(\theta_k, \phi_k). \quad (1)$$

Радиальная функция внутри КТ имеет вид  $R_l^i(r) = A_l (\pi/(2kr))^{1/2} I_{l+1/2}(\kappa r)$  [5]; нормировочный коэффициент  $A_l = 1 \cdot 3 \cdot 5 \dots (2l+1) \cdot (\kappa R_0)^{-l}$  выбран так, чтобы при  $r \rightarrow 0$   $R_l^i(r) \rightarrow (r/R_0)^l$ . Вне КТ радиальная функция имеет вид  $R_l^e(r) = (r/R_0)^{-(l+1)}$ .

Потенциал вне пары КТ с номерами  $k = 1, 2$  записывается следующим образом:

$$\varphi_e(\mathbf{r}) = \varphi_{e1}(\mathbf{r}) + \varphi_{e2}(\mathbf{r}). \quad (2)$$

В (1) и (2) сферические координаты  $r_k, \theta_k, \phi_k$  связываются с центром КТ, имеющей номер  $k$ , направление общей оси  $z$  выбирается от точки  $k = 1$  к точке  $k = 2$ . Сферические функции  $Y_{lm}(\theta, \phi)$  выбираются в виде  $Y_{lm}(\theta, \phi) = \vartheta_{lm}(\theta)\Phi_m(\phi)$ ,  $\Phi_m(\phi) = (2\pi)^{-1/2} \exp(im\phi)$ ,  $\vartheta_{lm}(\theta) = (-1)^m (N_{lm})^{-1/2} P_l^m(\cos\theta)$  ( $m \geq 0$ ),  $N_{lm} = (2/2l+1)[(l+m)!/(l-m)!]$ .



**Рис. 2.** То же, что и на рис. 1, но с другими параметрами образца: ширина барьера 5 МС, число периодов  $N = 400$ .

Коэффициенты  $C_{lm}^{ik}$ ,  $C_{lm}^{ek}$  определяются из граничных условий

$$\Phi_{ik}(\mathbf{r})|_{r_k=R_0} = \Phi_e(\mathbf{r})|_{r_k=R_0}, \quad (3)$$

$$\varepsilon_i(\omega)[\partial\Phi_{ik}(\mathbf{r})/\partial r_k]|_{r_k=R_0} = \varepsilon_e(\omega)[\partial\Phi_e(\mathbf{r})/\partial r_k]|_{r_k=R_0}, \quad (4)$$

где  $\varepsilon_i(\omega)$ ,  $\varepsilon_e(\omega)$  — диэлектрические функции материала КТ и окружения. Далее будем интересоваться симметричными решениями, активными в рамановском рассеянии. К таким решениям относятся решения с  $m = 0$ . При удовлетворении требований граничных условий на поверхности КТ, например с номером  $k = 1$ , удобно выразить координаты  $r_2, \theta_2$  через  $R_0, R, \theta_1$ . Соответствующие соотношения на поверхности КТ с  $k = 1$  имеют вид  $r_2 = R(1 - 2qx + q^2)^{1/2}$ ,  $\cos\theta_2 = -(1 - qx)(R/r_2)$ ,  $r_2^{-1} = R^{-1} \left[ \sum_{l=0}^{\infty} q^l P_l(x) \right]$ , где  $q = (R_0/R)$ ,  $x = \cos\theta_1$ .

Подставим (1) и (2) в (3) и (4) для  $k = 1$ . Умножив получившиеся соотношения на  $P_l(\cos\theta_1)$  ( $l = 0, 1$ ) и проинтегрировав по  $\theta_1$ , получим

$$\begin{aligned} \alpha_0 C_0^{i1} - C_0^{e1} &= q C_0^{e2} - 3^{1/2} q^2 C_1^{e2}, \\ \beta_0 \varepsilon_i(\omega) C_0^{i1} + \varepsilon_e(\omega) C_0^{e1} &= 0, \\ \alpha_1 C_1^{i1} - C_1^{e1} &= 3^{-1/2} q^2 C_0^{e2} - 2q^3 C_1^{e2}, \\ \beta_1 \varepsilon_i(\omega) C_1^{i1} + 2\varepsilon_e(\omega) C_1^{e1} &= \\ &= 3^{-1/2} q^2 \varepsilon_e(\omega) C_0^{e2} - 2q^3 \varepsilon_e(\omega) C_1^{e2}, \end{aligned} \quad (5)$$

где с учетом линейных по параметру  $\nu = (1/3)(\kappa R_0)^2$  членов  $\alpha_0 = 1 + 2^{-1}\nu$ ,  $\beta_0 = \nu$ ,  $\alpha_1 = 1 + (3/10)\nu$ ,  $\beta_1 = 1 + (9/10)\nu$ . В уравнениях (5) в величинах  $C_{lm}^{ik}$ ,  $C_{lm}^{ek}$  опущен индекс  $m = 0$ , коэффициенты перед ними рассчитаны с учетом членов до  $q^3$  включительно. Вторая группа уравнений для КТ с  $k = 2$  получается из (5) инверсией. При этом происходит замена  $1 \rightarrow 2$ , и  $C_{10}^{ik}$ ,  $C_{10}^{ek}$  с нечетными  $l$  меняют знак.

Система из восьми уравнений для КТ  $k = 1, 2$  легко решается, если ввести коэффициенты  $S_0^{i(e)} = C_0^{i(e)1} + C_0^{i(e)2}$ ,  $D_1^{i(e)} = C_1^{i(e)1} - C_1^{i(e)2}$  для симметричных и  $D_0^{i(e)} = C_0^{i(e)1} - C_0^{i(e)2}$ ,  $S_1^{i(e)} = C_1^{i(e)1} + C_1^{i(e)2}$  для антисимметричных мод соответственно. Приравняв к нулю детерминанты каждой из систем, получим уравнения для определения частот колебательных мод пары КТ. Их можно объединить в одно уравнение

$$y(\omega)^2 - y(\omega)(y_0^s + y_1^s) + y_0^s y_1^s + u^s = 0, \quad (6)$$

где  $y(\omega) = \varepsilon_e(\omega)/\varepsilon_i(\omega)$ ;  $y_0^s, y_1^s$  — решения уравнения (6) в отсутствие взаимодействия между модами с  $l = 0$  и  $1$ , т.е. при  $u^s = 0$ . Последние имеют вид  $y_0^s = -(\beta_0/\alpha_0)\sigma_s$ ,  $y_1^s = -(\beta_1 h_s)/(2\alpha_1 g_s)$ ,  $u^s = [\beta_0(\alpha_1 - \beta_1)q^4]/(2\alpha_0 \alpha_1 g_s)$ , где  $\sigma_s = 1 + sq$ ,  $h_s = 1 + 2sq^3$ ,  $g_s = 1 - sq^3$ . Коэффициент  $s$  принимает значения  $1$  и  $-1$  для симметричных и антисимметричных мод соответственно.

При малых  $\nu$  и  $q$  получим  $y_0^s = -\nu(1 + sq)$ ,  $y_1^s = -(1/2)/[1 + (3/5)\nu](1 + 3sq^3)$ ,  $u^s = -(3/10)(\nu q^2)^2$ . Из этих соотношений следует, что взаимодействие  $u^s$  между парными модами с  $l = 0$  и  $1$  имеет значительно меньшую величину, чем их расщепление на симметричную и антисимметричную компоненты для данного  $l$ . По этой причине  $u^s$  будем пренебрегать. Оценим, прежде всего, влияние взаимодействия на частоты парных мод с  $l = 1$ . Эти моды представляют собой колебания дипольных моментов КТ в фазе ( $s = -1$ ) и в противофазе ( $s = 1$ ) по отношению друг к другу. Поскольку точные значения параметров  $\nu, q$  извлечь из эксперимента сложно, и, кроме того, малые  $\nu$  слабо влияют на моды с  $l = 1$ , будем делать оценки для  $\nu = 0$  и значений  $q_{\min} = 0$ ,  $q_{\max} = 0.5$ . Решая уравнение  $y(\omega) = y_1^s$  с этими значениями параметров и константами диэлектрических функций CdTe ( $\omega_{\text{TO}} = 140 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_{\text{LO}} = 171 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\varepsilon_0 = 10.1$ ,  $\varepsilon_{\infty} = \varepsilon_0(\omega_{\text{TO}}/\omega_{\text{LO}})^2 = 6.77$ ) и ZnTe ( $\omega_{\text{TO}} = 177 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_{\text{LO}} = 203 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\varepsilon_0 = 10.3$ ,  $\varepsilon_{\infty} = \varepsilon_0(\omega_{\text{TO}}/\omega_{\text{LO}})^2 = 7.68$ ), получим следующие значения частот парных мод с  $l = 1$ . Для мод, связанных с колебаниями материала КТ (CdTe)  $\omega = 146 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0$ ),  $\omega = 148 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0.5, s = 1$ ),  $\omega = 144.5 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0.5, s = -1$ ), а для мод, окружающего КТ материала (ZnTe),  $\omega = 198 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0$ ),  $\omega = 197 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0.5, s = 1$ ),  $\omega = 199.7 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0.5, s = -1$ ).

Частота наблюдаемой в образцах с шириной барьера 5 МС третьей моды CdTe  $\omega = 146.7 \text{ cm}^{-1}$  близка к рассчитанному значению частоты моды, активной в рамановском рассеянии,  $\omega = 148 \text{ cm}^{-1}$  ( $q = 0.5, s = 1$ ). Мода ZnTe  $\omega = 196 \text{ cm}^{-1}$  существенно сдвинута в низкочастотную сторону по сравнению с ее положением в образцах с более широкими барьерами. Этот сдвиг может быть объяснен увеличением интенсивности парной симметричной моды колебаний ZnTe, окружающего КТ. Таким образом, наблюдающиеся в спектре изменения при переходе к образцам с узкими барьерами согласуются с нашими представлениями об увеличении взаимодействия между колебательными модами КТ и возникновении парных мод.

Сделаем несколько замечаний о свойствах мод с  $l = 0$  в нашей модели. Из выражения для  $y_0^s$  видно, что при отсутствии заряженных носителей в КТ ( $\nu = 0$ ) эта мода не взаимодействует с такими же модами соседних КТ (и вообще не активна ни в каком оптическом процессе). Это происходит потому, что при  $\nu = 0$  эта мода не вызывает появления внутри КТ электрического поля [1]. В реальной КТ отличное от нуля электрическое поле для мод с  $l = 0$  может возникать и при  $\nu = 0$  из-за отступления формы КТ от идеальной сферической или сфероидальной, а также наличия неоднородностей и переходного слоя у поверхности. Влияние носителей на моды  $l = 0$  в этом случае может быть заметным, если влияние перечисленных факторов относительно мало.

Проанализируем влияние на спектр КТ упругих напряжений. Найдем деформации КТ и ее окружения, предполагая, что решетки CdTe и ZnTe сопрягаются

когерентным образом. Это означает, что сфера CdTe радиуса  $R_i = na_i$  после ее однородного сжатия должна вкладываться в растянутую сферическую полость ZnTe радиуса  $R_e = na_e$ , где  $a_i, a_e$  — постоянные решетки недеформированных CdTe и ZnTe. После деформации  $R'_i = R'_e = R_0$ . Используя соотношения теории упругости [6], среди них условие равновесия поверхности КТ под влиянием тангенциальных напряжений, а также соотношение  $R_i/R_e = a_i/a_e$ , определим компоненты тензора деформации. Далее используем соотношения работы [7], связывающие изменения частот оптически активных мод и деформации. Найдем, что частота симметричной кулоновской моды КТ CdTe должна сдвигаться на величину  $\Delta\omega \approx 20 \text{ cm}^{-1}$  и иметь частоту  $160 \text{ cm}^{-1}$  вместо  $140 \text{ cm}^{-1}$ . Наблюдаемые в эксперименте упругие эффекты значительно слабее ( $|\Delta\omega| \sim 2-3 \text{ cm}^{-1}$  [1]), поэтому от предположения о когерентном сопряжении решеток CdTe и ZnTe в КТ приходится отказаться. К сдвигам колебательных мод CdTe и ZnTe навстречу друг другу должна приводить взаимная диффузия этих соединений у границы КТ. Однако в данном эксперименте такие эффекты замечены не были. Таким образом, упругие напряжения и взаимная диффузия относительно слабо влияют на колебательный спектр КТ CdTe/ZnTe.

Основной причиной, формирующей колебательный спектр удаленных друг от друга, а также близких КТ CdTe/ZnTe, является кулоновское взаимодействие.

## Список литературы

- [1] Л.К. Водопьянов, В.С. Виноградов, Н.Н. Мельник, Г. Карчевски. Письма в ЖЭТФ **77**, 3, 171 (2003).
- [2] G. Karczewski, S. Mackowski, M. Kutrowski et al. Appl. Phys. Lett. **74**, 3011 (1999).
- [3] S. Mackowski, G. Karczewski, T. Wojtowicz et al. Appl. Phys. Lett. **78**, 3884 (2001).
- [4] T. Unhold, K. Mueller, C. Lienau et al. Phys. Rev. Lett. **94**, 13, 137404 (2005).
- [5] М. Абрамовиц, И. Стиган. Справочник по специальным функциям. Наука, М. (1979). [M. Abramowitz, I. Stegun. Handbook of mathematical functions. National Bureau of Standards, (1964)].
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория упругости. Наука, М. (1987). С. 35.
- [7] В.С. Виноградов, Л.К. Водопьянов, С.П. Козырев, Ю.Г. Садофьев. ФТТ **41**, 11, 1948 (1999).