

©1995 г.

РЕЗОНАНСНОЕ РАМАНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ИНТЕРФЕЙСНЫХ ФОНОНАХ В СВЕРХРЕШЕТКЕ GaAs/AlAs В СИЛЬНОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

*Д.Н.Мирлин, А.А.Сиренко, Р.Планель**

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021, Санкт-Петербург, Россия

* Laboratoire de Microstructures et de Microelectronique-CNRS,
92225 Bagneux, France

(Получена 20 сентября 1994 г. Принята к печати 22 сентября 1994 г.)

В сверхрешетке GaAs/AlAs исследованы зависимости интенсивности резонансного рамановского рассеяния на интерфейсных фононах от магнитного поля, температуры и мощности возбуждения. В сильном магнитном поле наблюдалась полосы интерфейсных фононов, рассеяние на которых запрещено по закону сохранения импульса. Осцилляции интенсивности рамановского рассеяния при изменении магнитного поля соответствуют резонансам энергии квантов возбуждающего света с уровнями магнитоэкситонов, которые являются промежуточным состоянием при рассеянии. Интенсивность интерфейсных фононов уменьшается при увеличении температуры. Предположено, что это обусловлено температурно-индукционной делокализацией магнитоэкситонов, связанных с статическими дефектами, которые ответственны за несохранение импульса в процессе рассеяния. Наблюдалось возрастание энергии локализации при увеличении магнитного поля.

Введение

На границе раздела двух сред, из которых по крайней мере одна является полярной («активная» среда), возникают поверхностные колебательные моды. Частоты этих поверхностных колебаний заключены между частотами продольных (ω_{LO}) и поперечных (ω_{TO}) колебаний, т.е. там, где диэлектрическая проницаемость активной среды отрицательна. Дисперсионные зависимости поверхностных колебаний получаются при решении системы уравнений Максвелла, а их амплитуда затухает по мере удаления от границ раздела. Поверхностные колебания были обнаружены и исследованы методами инфракрасной [1] и рамановской [2] спектроскопии.

При наблюдении в геометрии обратного рассеяния, обычно используемой для непрозрачных сред, интенсивность рамановского рассеяния на поверхностных фонах очень мала. Малость сечения рассеяния в этом случае обусловлена тем, что нормальная компонента волнового вектора поверхностной волны q_z является мнимой (z — направление нормали к границе раздела). В результате в геометрии обратного рассеяния становится невозможным строгое выполнение закона сохранения импульса и сильно уменьшается сечение рассеяния по сравнению со случаем наблюдения в геометрии «на просвет» [3,4].

Тем не менее спектры поверхностных фонаов удается зарегистрировать и в геометрии обратного рассеяния. Недавно для гетероструктуры GaAs/AlAs их дисперсионные зависимости $\omega(q_{||})$ были получены из рамановских спектров, снятых при наклонном падении возбуждающего луча света. Дисперсионная зависимость $\omega(q_{||})$ измерялась в той области волновых векторов $q_{||}$, где существенны эффекты запаздывания, т.е. $q_{||} \approx \omega_{TO}/c$ [5]. Здесь $q_{||}$ — составляющая волнового вектора фона в плоскости границы раздела.

В многослойных структурах с малыми толщинами слоев d , такими что $q_{||}d < 1$ (например, в полупроводниковых сверхрешетках и структурах с квантовыми ямами), поверхностные волны, локализованные на разных (соседних) поверхностях, перекрываются. Это приводит к появлению так называемых интерфейсных фонаов ($q_{||} \neq 0$), распространяющихся вдоль оси z , т.е. к появлению вещественной части в $q_z \neq 0$.

Теория таких коллективных возбуждений была развита в [6,7]. В частном случае $q_{||}d_1 \gg 1$ и $q_{||}d_2 \gg 1$, где $d_{1,2}$ — толщины слоев, составляющих сверхрешетку (формула (6) из работы [6]), следует $\varepsilon_1(\omega) = -\varepsilon_2(\omega)$, что совпадает с условием существования поверхностных волн на границе раздела двух полубесконечных сред. В общем случае частоты интерфейсных мод могут быть представлены в виде двух ветвей $\omega^{\pm}(q_{||}, d_2)$ для каждого интервала продольно-поперечного расщепления $\omega_{LO} - \omega_{TO}$ обеих сред.¹ При этом вид функций $\omega(q_{||})$ зависит от $q_z(d_1 + d_2)$ как от параметра [7,8].

Рамановские спектры интерфейсных фонаов в сверхрешетках GaAs/AlAs наблюдались впервые в условиях резонанса [8], а затем исследовались в ряде других работ [9–13]. Надо, однако, отметить, что хотя обнаруженные в этих работах полосы в спектрах рассеяния и лежат в упомянутых выше областях продольно-поперечного расщепления для GaAs и AlAs, но их частоты не удовлетворяют совокупности закона сохранения для $q_{||}$ и вида дисперсионных зависимостей $\omega(q_{||})$.

Появление рамановского рассеяния на интерфейсных фонах при возбуждении вдали от экситонных резонансов наблюдалось при приложении сильного, до 7 Т, продольного ($B \parallel z$) магнитного поля [9,10]. Наряду с этим происходило и усиление рамановского рассеяния на объемных локализованных (confined) оптических фонах. При увеличении интенсивности возбуждающего света P наблюдалось умень-

¹ Мы пользуемся обозначениями ветвей интерфейсных фонаов ω^+ и ω^- в соответствии с [8]. ω^+ соответствует симметричному, а ω^- несимметричному относительно центра слоя GaAs электростатическому потенциалу, возникающему при смещении узлов кристаллической решетки.

шение интенсивности рассеяния на интерфейсных фонах, так что при $P \cong 4 \cdot 10^3$ Вт/см² индуцированное магнитным полем рассеяние практически исчезало. Аналогичное, однако значительно более слабое уменьшение интенсивности с увеличением P наблюдалось и для рассеяния на объемных оптических фонах [11].

В цитированных работах [9–13] обсуждается природа статических дефектов исследованных структур, ответственных за несохранение импульса в процессе рамановского рассеяния на интерфейсных фонах. Рассматривались две основные гипотезы, связывающие это явление либо с локализацией экситонов (являющихся промежуточным состоянием в процессе рассеяния света) на флуктуациях ширины квантовых ям, либо с влиянием заряженных примесей. Вопрос о природе дефектов остался открытым. С одной стороны, в случае учета влияния заряженных примесей увеличение интенсивности накачки может, конечно, приводить к их нейтрализации фотовозбужденными носителями и, соответственно, к уменьшению воздействия на интенсивность рассеяния. Однако роль магнитного поля в этом процессе осталась неясной. С другой стороны, влияние шероховатостей гетерограниц, или островков, на интенсивность рассеяния, которое может возрастать в магнитном поле, трудно компенсировать за счет фотовозбужденных носителей [9–11].

С целью прояснить ситуацию мы предприняли в данной работе исследование интенсивности рамановского рассеяния на интерфейсных фонах от магнитного поля, температуры и интенсивности накачки.

Экспериментальная техника

Измерения спектров рамановского рассеяния проводились в сверхрешетке GaAs/AlAs, выращенной по методу молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке с ориентацией (001). Сверхрешетка специально не легирована и состояла из 50 пар чередующихся слоев GaAs шириной 65 Å (квантовые ямы) и AlAs шириной 22 Å (барьеры).

Измеренные по спектрам люминесценции и спектрам возбуждения люминесценции энергии экситонных переходов, связанных с квантованными ($N = 1$ и $N = 2$) состояниями тяжелых (HH) и легких (LH) дырок, составляли: $E_{1HH} = 1.614$ эВ, $E_{1LH} = 1.625$ эВ, $E_{2HH} = 1.92$ эВ, $E_{2LH} = 2.01$ эВ.

Спектры рамановского рассеяния были получены при возбуждении образца линиями Kr⁺-лазера с энергиями квантов $\hbar\omega_{exc} = 1.833$ и 1.916 эВ. Таким образом, в первом случае возбуждающий свет поглощался только в первой подзоне размерного квантования, а во втором случае энергия кванта возбуждения совпадала с энергией экситонного перехода E_{2HH} . Далее оба случая будут рассмотрены отдельно.

Регистрация рамановских спектров проводилась в геометрии обратного рассеяния. Магнитное поле B до 7.5 Т было направлено вдоль оси роста структуры. При исследовании влияния температуры на спектры рамановского рассеяния интенсивность возбуждения не превышала 10² Вт/см² во избежание дополнительного разогрева образца лазерным светом.

Экспериментальные результаты

На рис. 1, *a, b* приведены спектры рамановского рассеяния при энергии возбуждения 1.833 эВ при гелиевой температуре. При $B = 0$ (рис. 1, *a*) регистрируется только полоса, соответствующая LO -фонону GaAs (LO_1). Интенсивности LO_1 -фонона, измеренные в геометриях $z(x, x)\bar{z}$ и $z(x, y)\bar{z}$ ($x \parallel (100)$, $y \parallel (010)$, $z \parallel (001)$), практически равны по величине. Расщепление полосы LO_1 -фонона, обусловленное квантованиям, не наблюдалось из-за сравнительно большой толщины квантовых ям.

В магнитном поле возникают новые полосы со сдвигами 290 и 374 cm^{-1} в области продольно-поперечного расщепления для GaAs и AlAs соответственно, а также полоса со сдвигом 402 cm^{-1} , примыкающая со стороны низких частот к частоте LO -фонона AlAs (рис. 1, *b*). В силу сказанного выше мы относим полосы 290 и 374 cm^{-1} к рамановскому рассеянию на интерфейсных фононах, а именно полоса 290 cm^{-1} (IF_1) соответствует ω^+ GaAs-подобной (GaAs-like) ветви, а полоса 374 cm^{-1} (IF_2) — ω^+ AlAs-подобной (AlAs-like) ветви. Максимум

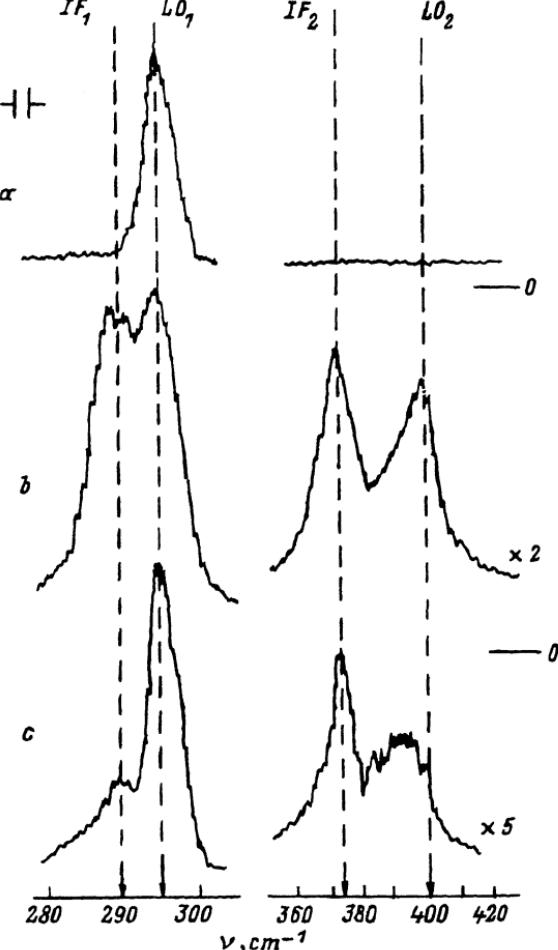


Рис. 1. Спектры рамановского рассеяния сверхрешетки GaAs/AlAs в геометрии $z(x, x)\bar{z}$. $T = 2 \text{ K}$, интенсивность возбуждения $P = 10^2 \text{ Вт}/\text{см}^2$. Квантованные оптические и интерфейсные фононы GaAs (AlAs) обозначены $LO_{1(2)}$ и $IF_{1(2)}$ соответственно. *a* — $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.833 \text{ эВ}$, $B = 0$. *b* — $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.833 \text{ эВ}$, $B = 7.5 \text{ Т}$. *c* — $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.916 \text{ эВ}$, $B = 0$.

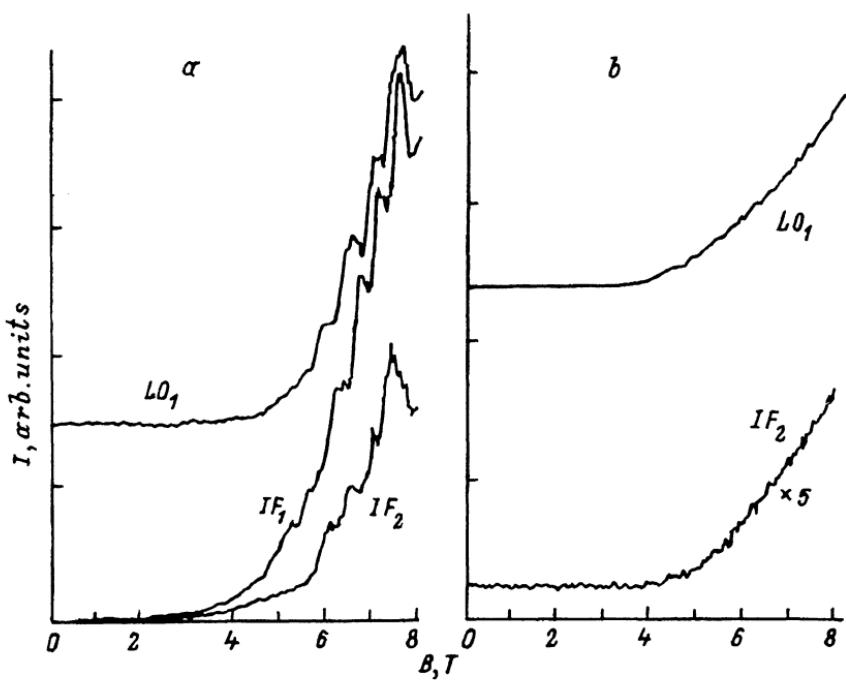


Рис. 2. Интенсивности рассеяния I на интерфейсных (IF_1) и оптических (LO_1) фононах GaAs и интерфейсных фононах AlAs (IF_2) в зависимости от магнитного поля. Геометрия $z(x + iy, x + iy)\bar{z}$, $T = 2$ К, $P = 10^2$ Вт/см 2 . $\hbar\omega_{\text{exc}}, \text{эВ}$: $a = 1.833$, $b = 1.916$.

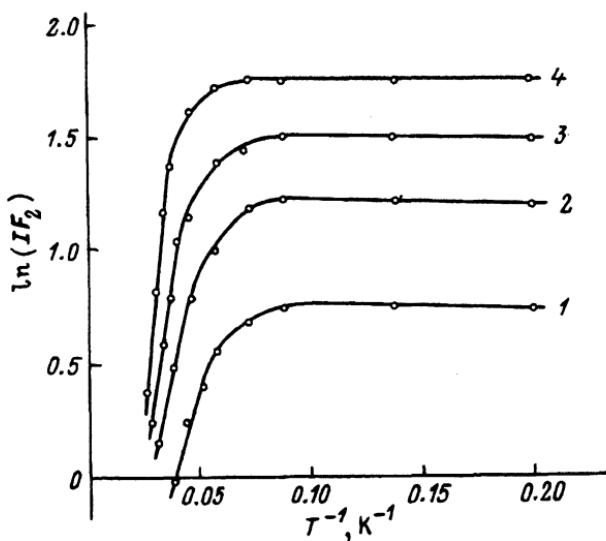


Рис. 3. Зависимости интенсивностей рассеяния на интерфейсных фононах IF_2 от температуры. B, T : 1 — 5.7, 2 — 6.1, 3 — 6.4, 4 — 6.8. $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.833$ эВ, $P = 10^2$ Вт/см 2 .

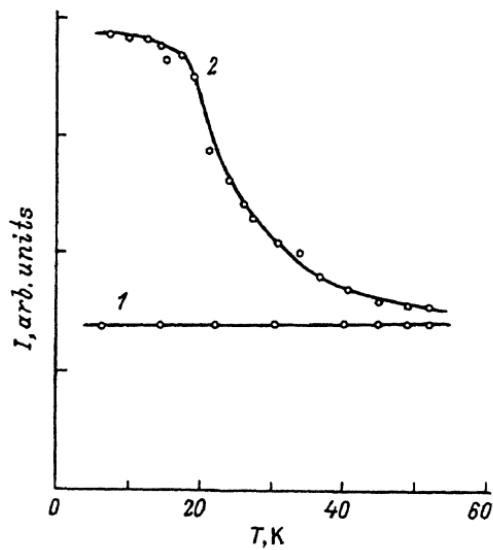


Рис. 4. Зависимости интенсивности I рассеяния на LO_1 -фононах от температуры без магнитного поля (1) и в магнитном поле 7.5 Т (2). $\hbar\omega_{exc} = 1.833$ эВ, $P = 10^2$ Вт/см 2 .

полосы 402 см $^{-1}$ совпадает по частоте с максимумом в спектре рассеяния на LO -фононах AlAs (LO_2), полученным при возбуждении с энергией $\hbar\omega_{exc} = 2.41$ эВ. Отметим, что приведенный на рис. 1, б спектр близок по характеру к рамановскому спектру образца C (GaAs/AlAs — 60 Å/20 Å) из работы [8].

Интенсивность полос рассеяния на интерфейсных фононах ($IF_{1,2}$), так же как и на оптических фононах ($LO_{1,2}$), растет и осциллирует при увеличении магнитного поля (рис. 2, а). Зависимость интенсивности рассеяния на интерфейсных фононах IF_2 от температуры представлена на рис. 3. Характерной особенностью является то, что при $T > 25$ К IF_2 уменьшается с ростом температуры экспоненциально: $IF_2 \sim \exp(E_b/kT)$. При этом величина E_b заметно увеличивается при увеличении магнитного поля.

Наблюдавшееся нами в магнитном поле увеличение интенсивности рассеяния на LO_1 -фононах исчезает при повышении температуры. При $T \geq 45$ К (рис. 4) зависимость $LO_1(T)$, измеренная при $B = 7.4$ Т, выходит на значения $LO_1(T)$, полученные в нулевом магнитном поле.

Мы провели исследования зависимостей интенсивностей IF_1 и LO_1 от интенсивности возбуждения в диапазоне $P \leq 10^3$ Вт/см 2 в магнитном поле $B = 7.5$ Т. При этом использовались два способа крепления образца. В первом случае (рис. 5, а) образец был помещен непосредственно в жидкий гелий под откачкой и температура образца оставалась близкой к 2 К. Наблюдалась близкая к линейной зависимость IF_1 и LO_1 от интенсивности накачки вплоть до ее максимальных значений. При этом отношение IF_1/LO_1 практически не зависело от P .

Во втором случае (рис. 5, б) образец размещался на теплоизолирующем держателе, находившемся в парах жидкого Не. Участок роста $IF_1(P)$ при малых значениях интенсивности накачки сменяется участком падения, вплоть до полного исчезновения линий интерфейсных фононов при $P = 10^3$ Вт/см 2 . Отношение IF_1/LO_1 быстро уменьшается при увеличении P . Такие зависимости IF_1 , LO_1 от интенсивности на-

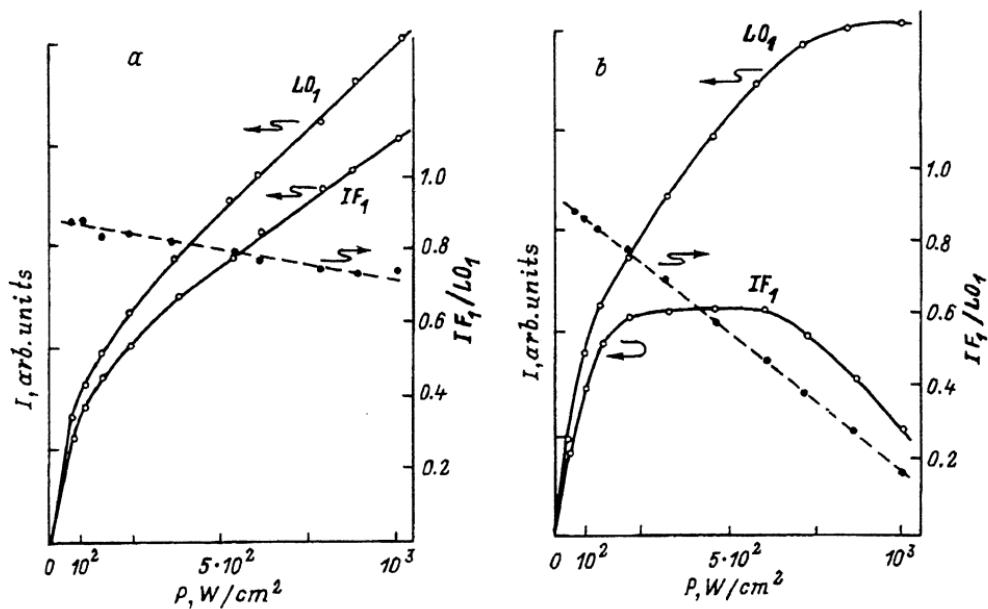


Рис. 5. Зависимости интенсивности I рассеяния на интерфейсных (IF_1) и оптических (LO_1) фонах от плотности мощности накачки P . Штриховые линии — отношение IF_1/LO_1 . $B = 7.5$ Т. $\hbar\omega_{exc} = 1.833$ эВ. a — образец помещен непосредственно в жидкий гелий под откачкой, $T = 2$ К. b — образец размещен на теплоизолирующем держателе в парах жидкого гелия.

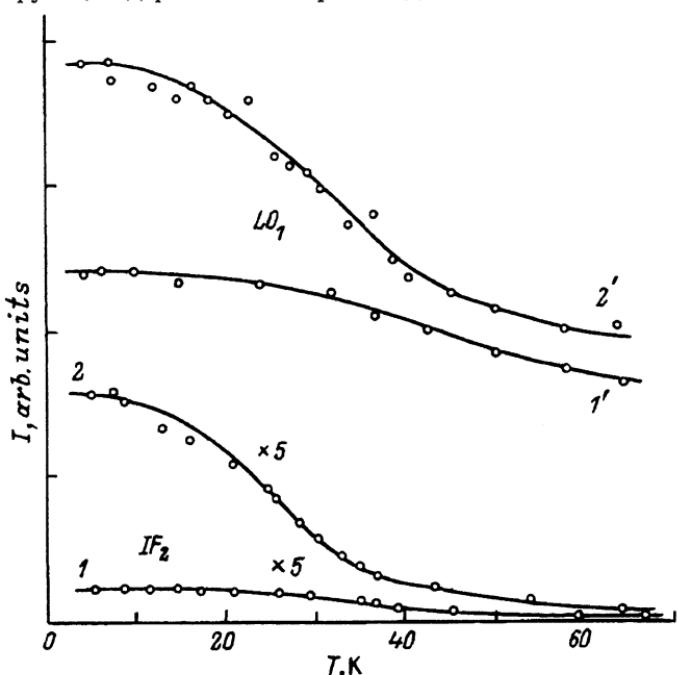


Рис. 6. Зависимости интенсивностей I интерфейсных (IF_2) и оптических (LO_1) фонах от температуры без магнитного поля ($1, 1'$) и в магнитном поле 7.5 Т ($2, 2'$). $\hbar\omega_{exc} = 1.916$ эВ. $P = 10^2$ Вт/см².

качки близки к ранее полученным результатам [9], где эффект падения интенсивности интерфейсных фононов с ростом мощности накачки связывался с влиянием фотовозбужденных носителей, а именно с экранированием поля заряженных примесей, ответственных, по мнению авторов, за несохранение импульса в рамановском процессе.

При резонансном возбуждении с экситонным переходом $2HN$ в спектре рамановского рассеяния наблюдаются полосы интерфейсных фононов и без магнитного поля (рис. 1,с). Интенсивность IF_1 -фонона в геометрии $z(x,x)\bar{z}$ много больше, чем в геометрии $z(x,y)\bar{z}$, что свидетельствует о преимущественно фрелиховском механизме рассеяния, характерном для резонансных условий. Наблюдалось возрастание интенсивностей интерфейсных и оптических фононов при увеличении магнитного поля. Соответствующие зависимости приведены на рис. 2,б. Зависимости интенсивностей LO_1 - и IF_2 -фононов от температуры при резонансном возбуждении приведены на рис. 6 для случаев нулевого магнитного поля и магнитного поля 7.5 Т.

Обсуждение экспериментальных результатов

Рассмотрим сначала случай, когда возбуждающий свет поглощается только в первой подзоне размерного квантования, т.е. $\hbar\omega_{exc} < E_{2HN}$.

Рост и осцилляции интенсивностей интерфейсных, так же как и оптических, фононов при увеличении магнитного поля выше 5 Т (рис. 2,а), показывают, что промежуточным состоянием в процессе рассеяния света являются магнитные экситоны или, что справедливо для уровней с большими номерами Ландау, скоррелированные электронно-дырочные пары. Наличие в спектре «запрещенного» рассеяния на интерфейсных фононах можно объяснить тем, что промежуточное состояние локализовано. Наши экспериментальные результаты свидетельствуют в пользу модели локализации магнитных экситонов на островках флуктуации ширины квантовых ям [5]. Рост интенсивности рассеяния в магнитном поле отражает рост числа локализованных состояний. Действительно, дополнительное пространственное ограничение экситонов в плоскости квантовой ямы, вызванное магнитным полем, позволяет им локализоваться на островках меньших размеров.

Увеличение температуры приводит к тому, что время жизни экситона в локализованном состоянии уменьшается, т.е. растет однородная ширина промежуточного состояния. Соответственно уменьшается как интенсивность запрещенного рассеяния на интерфейсных фононах, так и магнитная добавка к интенсивности рассеяния на LO -фононах, целиком, как следует из приведенных на рис. 4 результатов, обусловленная вкладом локализованных состояний. Действительно, при $T > 45$ К, когда уже полностью исчезает рассеяние на интерфейсных фононах, интенсивность рассеяния на LO -фононах не зависит от магнитного поля. Отметим, что подобные температурные зависимости интенсивности рамановского рассеяния на LO -фононах наблюдались вблизи экситонных резонансов в работах [14,15], где обсуждалось влияние низкотемпературной локализации экситонов на интенсивность рассеяния на LO -фононах. Полученные нами температурные зависимости интенсивности интерфейсных фононов позволяют определить энергию локализации магнитных экситонов E_b . Мы наблюдали увеличение этой энергии от 2 до 5 мэВ при увеличении магнитного поля от 5.7 до 7.4 Т.

При анализе влияния накачки на интенсивности *LO*- и *IF*-фононов (рис. 5,*a,b*) следует принять во внимание заметное различие зависимостей *IF*₁, *LO*₁ от *P* для случаев *a* и *b*, а также приведенные выше зависимости *IF*_{1,2} и *LO*₁ от температуры. Мы полагаем, что уменьшение интенсивности интерфейсных фононов с ростом накачки (случай *b*) может быть объяснено локальным разогревом образца в точке фокусировки возбуждающего света. Оценка, проведенная с использованием полученных результатов, показала, что в случае *b* при *P* = 10³ Вт/см² локальная температура образца была около 40 К.

Сравним зависимости интенсивностей *IF*- и *LO*-фононов от магнитного поля и температуры с аналогичными для случая резонансного возбуждения, т.е. $\hbar\omega_{\text{exc}} = E_{2HH}$ ($\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.916 \text{ эВ}$.) Наличие в спектре при *T* = 2 К полос интерфейсных фононов и без магнитного поля указывает на то, что промежуточным состоянием является локализованный *2HH*-экситон.

При приложении магнитного поля происходит увеличение интенсивности как *IF*_{1,2}, так и *LO*_{1,2}-фононов, хотя оно не столь сильное, как при $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.833 \text{ эВ}$. Осцилляции интенсивности рамановского рассеяния отсутствуют (рис. 2,*b*), следовательно, вклад в рассеяние от состояний магнитных экситонов, связанных с первой подзоной размерного квантования, скорее всего невелик. Уменьшение интенсивности рамановского рассеяния с увеличением температуры (рис. 6) в случае резонанса возбуждения с *2HH*-экситоном, по-видимому, также обусловлено его делокализацией. Полученные значения энергии делокализации оказались не зависящими от магнитного поля и составляли *E_b* = 5.3 мэВ.

Заключение

Таким образом, в работе исследованы зависимости интенсивности рамановского рассеяния на интерфейсных и оптических фононах в сверхрешетке GaAs/AlAs от магнитного поля, мощности накачки и температуры. Полученные результаты согласуются с предположением [5], что при низких температурах локализованные на статических дефектах, вблизи гетерограниц, состояния экситона являются промежуточными при рассеянии света как на интерфейсных, так и на оптических фононах. В роли этих дефектов в специально не легированных структурах могут выступать островки, возникающие при флюктуации ширины квантовых ям [5,12].² Локализация промежуточного состояния усиливается при резонанском возбуждении с уровнями как размерного, так и магнитного квантования экситонов. Из температурных зависимостей интенсивности рассеяния получены величины энергий делокализации промежуточного состояния. Зависимости интенсивности рамановского рассеяния на интерфейсных фононах от мощности накачки, наблюдавшиеся ранее в работах [9–11], могут быть объяснены температурным разогревом образцов.

² По-видимому, на опыте могут реализовываться и другие причины проявления в рамановских спектрах интерфейсных фононов (за счет дефектов иного типа). Отметим, что в работе [13] интерфейсные фононы наблюдались при температуре 80 К, т.е. гораздо большей, чем в наших экспериментах.

В заключение авторы выражают благодарность М.Кардоне и Р.Мерлину за обсуждение результатов, Н.Н.Леденцову за измерение спектров возбуждения, Н.Н.Фалееву за рентгеновские измерения. Выполнение работы поддержано Volkswagen Foundation и Российским фондом фундаментальных исследований. Предварительные результаты работы опубликованы ранее [16].

Список литературы

- [1] D.N. Mirlin. In: *Surface Polaritons* (Amsterdam, 1982) [Поверхностные поляритоны (М., 1985)].
- [2] S. Ushioda, R. Loudon. In: *Surface Polaritons* (Amsterdam, 1982) [Поверхностные поляритоны (М., 1985)].
- [3] В.И. Вяземский, Е.Л. Ивченко, Д.Н. Мирлин, И.И. Решина. ФТТ, **17**, 227 (1975).
- [4] Y.J. Chen, E. Burstein, D.L. Mills. Phys. Rev. Lett., **34**, 1516 (1975).
- [5] M. Nakayama, M. Ishida, N. Sano. Phys. Rev. B, **38**, 6348 (1988).
- [6] E.P. Pokatilov, S.I. Beril. Phys. St. Sol. (b), **110**, K75 (1982).
- [7] R.E. Camley, D.L. Mills. Phys. Rev. B, **29**, 1695 (1984).
- [8] A.K. Sood, J. Menendez, M. Cardona, K. Ploog. Phys. Rev. Lett., **54**, 2115 (1985).
- [9] D. Gammon, R. Merlin, H. Morkoc. Phys. Rev. B., **35**, 2552 (1987).
- [10] D. Gammon, L. Shi, R. Merlin, G. Ambravicius, K. Ploog, H. Morkoc. Superlatt. Microstruct., **4**, 405 (1988).
- [11] G. Ambravicius, M. Cardona, R. Merlin, K. Ploog. Sol. St. Commun., **65**, 1035 (1988).
- [12] K.T. Tsen, D.J. Smith, S.-C.Y. Tsen, N.S. Kumar, H. Morkoc. J. Appl. Phys., **70**, 418 (1991).
- [13] H.D. Fuchs, D.J. Mowbray, M. Cardona, S.A. Chalmers, A.C. Gossard. Sol. St. Commun., **79**, 223 (1991).
- [14] J.E. Zucker, A. Pinczuk, D.S. Chemla, A.C. Gossard. Phys. Rev. B, **35**, 2892 (1987).
- [15] J.E. Zucker, E. Isaacs, D. Heiman, A. Pinczuk, D.S. Chemla. Surf. Sci., **196**, 563 (1988).
- [16] D. Mirlin, A. Sirenko, R. Planell. Sol. St. Commun., **91**, 545 (1994).

Редактор Л.В. Шаронова

Resonance Raman scattering by interface phonons in the magnetic field in GaAs/AlAs superlattice

D.N.Mirlin, A.A.Sirenko, R.Planell*

A.F.Ioffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia

*Laboratoire de Microstructures et de Microelectronique-CNRS, 92225 Bagneux, France

The dependence of the intensity of the resonance Raman scattering by interface (IF) phonons in GaAs/AlAs superlattice on the magnetic field, temperature and pumping power has been investigated. The IF phonon spectra, which are to be forbidden according to the momentum conservation condition, have been observed in the magnetic field. Oscillations of the IF phonon intensity vs. magnetic field have been observed. The IF intensity decreases with the increase in temperature. Such a behavior is considered connected with the temperature induced delocalization of magnetoexcitons bound at static defects, which are responsible for the violation of the momentum conservation during the scattering. It was found that the delocalization energy increased with the magnetic field.