

CdSe/ZnTe 超晶格微观界面模的多声子喇曼光谱研究*

侯永田 金 鹰 张树霖

(北京大学物理系 北京 100871)

李 杰 袁诗鑫

(中国科学院上海技术物理所 上海 200083)

摘要 在 CdSe/ZnTe 超晶格中观察到了超晶格的微观界面模的基础上,本文主要研究了这种微观界面模的多声子散射,结果表明我们首次观察到了达4级的微观界面模的多声子喇曼散射,它具有不同于光学类体模多声子谱的光谱特征及共振行为,通过分析,我们认为这种不同正是微观界面模具有强烈的局域特性的反映。

PACC: 6320, 7830, 6865

II-VI 族化合物半导体材料表现出强烈的多声子散射,是其不同于 III-V 族或 IV 族半导体的重要特征之一,在具有闪锌矿或纤锌矿结构的 II-VI 族化合物半导体中观察到了高达近 10 级的多声子喇曼散射。从六、七十年代开始,人们对 II-VI 族半导体中的多声子散射已经作了许多理论及实验研究^[1]。在 II-VI 族半导体材料中观察到的较高级的多声子散射都是在共振条件下由 Frolich 电声子相互作用导致的 LO 声子的多重模的喇曼散射。根据已有的实验结果,II-VI 族化合物中的多声子喇曼散射具有如下光谱特征^[2,3]: (1) 多声子模的频率基本上是一级 LO 声子的整数倍,其偏差在 1% 之内,即只有布里渊区中心附近的声子对多声子散射有贡献,(2)多声子模具有偏振特性,即各多声子模具有与一级声子模类似的偏振特性,(3) 多声子模的线宽随级数 m 增加而稍有展宽,但差别很不明显,(4)多声子模的强度具有明显的共振特性,越接近发光峰的多声子峰的强度越强,当出射光子的能量低于发光峰值后,多声子峰的强度急剧下降。

对半导体超晶格量子阱的多声子喇曼散射,近来已有一些实验报道。在体材料中未观察到高级多声子喇曼散射的 GaAs 和 AlAs,在它的超晶格结构中观察到了高级($m=4$)的多声子喇曼散射^[4,5]。在 II-VI 族 ZnTe/ZnSe, CdTe/HgTe, ZnSe/ZnSeS 和 CdTe/CdMnTe, CdTe/ZnTe 超晶格中也观察到了高级的多声子模^[6-11]。虽然对超晶格量子阱中多声子喇曼散射的研究还比较少,更缺乏系统的理论分析,但是总的看来,已有的实验结果都表明它与上述体材料的多声子喇曼散射具有相同的光谱特征。

* 中国自然科学基金资助的项目

1993年7月8日收到本文, 1993年10月21日收到修改稿

在两种组份材料没有共同原子的 AB/CD 类超晶格中,由于界面上“错键”的存在,会出现一种超晶格的微观界面模 (Mi-IF mode)。在 InAs/GaSb 超晶格中, Fasolino 等人^[12]根据线性链模型 (LCM) 的计算,首先指出了在这种超晶格中微观界面模的存在,并详细分析了其特点,我们在 CdSe/ZnTe 超晶格中第一次从实验上观察到了这种微观界面模^[13]。实验结果及 LCM 的计算分析表明,所观察到的界面模来源于超晶格界面上的 Zn—Se 键,这种界面模的出现,不仅如文献[12]所指出的是由于 Zn—Se 键较小的约化质量,而且 Zn—Se 键较大的力常数也有同样重要的贡献^[14],本文将主要研究 CdSe/ZnTe 超晶格中这种新观察到的微观界面模的多声子散射。

实验所用的样品 S1 是用原子层外延方法生长的 CdSe/ZnTe 超晶格,衬底为 GaAs(001) 面,超晶格生长在 ZnTe 过渡层上。样品 S1 结构为 80 个周期的 $(\text{CdSe})_4/(\text{ZnTe})_8$ 。由于 CdSe 和 ZnTe 的晶格失配很小 (0.3%),应力效应可以忽略。光谱实验在液氮 (80K) 温度和近背散射条

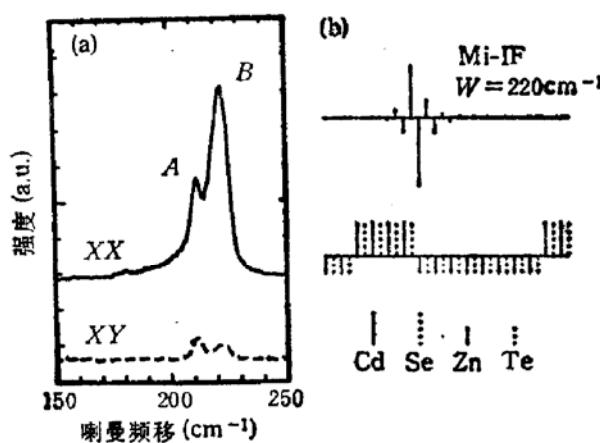


图 1 (a) 样品 S1 在 501.7 nm 激光激发下的一级喇曼光谱以及 (b) 由线性链模型计算得到的微观界面模的振动本征矢示意图

件下进行。由于沿(001)生长的 CdSe/ZnTe 超晶格具有 C_{2v} 对称性,坐标轴选为 $X=(110)$, $Y=(\bar{1}\bar{1}0)$, $Z=(001)$ 。

在图 1 所示的样品 S1 的一级喇曼光谱中观察到了两个具有 A_1 对称性的声子模,一个是谱峰标为 A 的位于 209 cm^{-1} 的超晶格中 ZnTe 的 LO 类体模,而另一个谱峰标为 B 的则是超晶格的微观界面模,它位于 222 cm^{-1} ^[13,14]。根据图 1 中用一维线性链模型计算得到的样品 S1 的微观界面模振动位移本征矢可以看到,这种微观界面模的振动强烈地局域在超晶格的 Zn—Se 界面附近,是一种局域性很强的微观界面模^[13]。

图 2 是用 501.7, 496.5 和 488.0 nm 激光激发下样品 S1 在 (XX) 偏振配置下的多

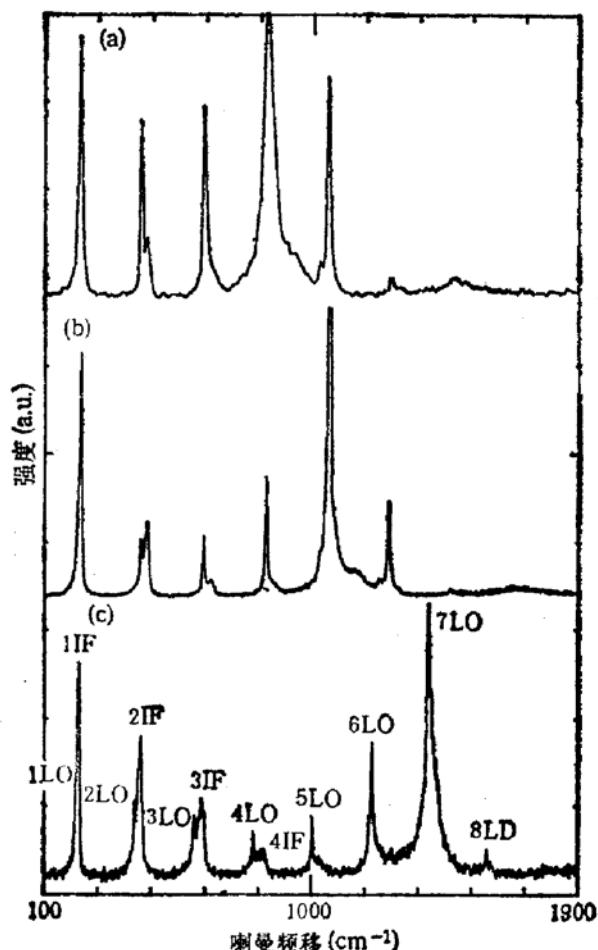


图 2 CdSe/ZnTe 超晶格样品 S1 的多声子光谱
激发光波长分别为: (a) 501.7 nm (b) 496.5 nm
和 (c) 488.0 nm

声子谱。在图 2 中, 我们分别明显地观察到了最高达 8 级的 ZnTe LO 类体模和 4 级的超晶格 Mi-IF 模的多重散射谱, 实验测得的各级多重散射谱的频率 ω 和线宽 Γ 列于表 1。由图 2 可以看出, 这里所观察到的 ZnTe LO 类体模的多重模具有与前面所述的 II-VI 族半导体材料多声子喇曼散射相同的光谱特征, 是来自于与超晶格中扩展型激子共振的多声子喇曼散射^[10,11]。

表 1 图 2 中 ZnTe LO 模和超晶格 Mi-IF 模的多重模的频率 $\omega(\text{cm}^{-1})$ 和线宽 $\Gamma(\text{cm}^{-1})$

m	1	2	3	4	5	6	7	8
LO 模 (ω)	210	422	634	844	1056	1258	1468	1678
IF 模	(ω)	222	444	664	882			
	(Γ)	7	14	24	34			

而对于 Mi-IF 模的多重模, 它们具有和体材料 LO 多声子散射相似的频率和偏振特性。由表 1 可以看出, 其频率基本上是一级 Mi-IF 模频率的整数倍。但仔细分析后发现, 图 2 中 Mi-IF 模的多重模的线宽变化及强度的共振行为与类体模的多声子谱存在明显的差别。

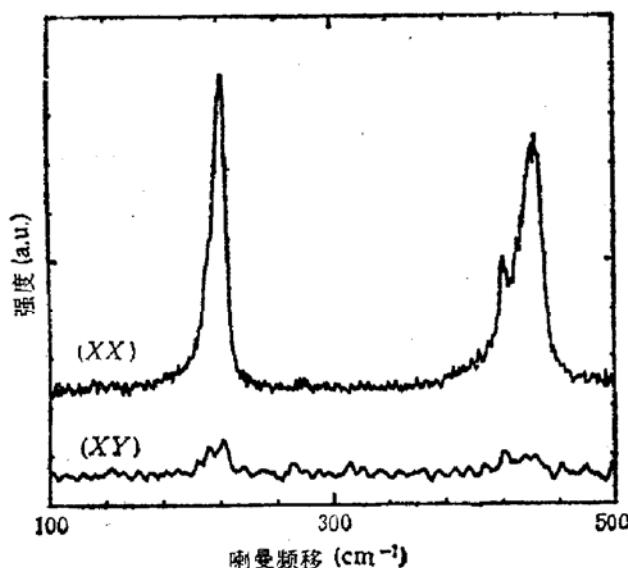


图 3 样品 S1 的一级和二级偏振喇曼光谱

首先, Mi-IF 多重模的线宽明显地随级数 m 的增大而展宽, 这种明显的展宽与类体模的多声子散射的光谱特征不同。上述多重模结构可能是共振喇曼散射 (RRS), 也可能是来源于入射光子激发的中间态的热激子以放出声子形式弛豫发光的热荧光过程 (HL), 其中 HL 中多重模的线宽有明显变化, 七十年代, 人们曾对这两种过程进行了系统的理论分析^[12], 结果表明, HL 和 RRS 是物理本质不同的两个光学过程, HL 可以看成是由连续的两个不同的单光子过程, 即吸收和发射组成的非相干过程, 在这个过程中出射光子与入射光子之间是偏振不相干的。而 RRS 则是一个双光子相干过程, 同时伴随着声子的产生或消灭, 其中出射光子与入射光子保持偏振相干特性。因此 RRS 和 HL 过程的主要差别在于它们的偏振特性不同。HL 是偏振不相干的。光谱中多重模从低级到高级逐渐失去偏振记忆。为了考察上述线宽的展宽是否是来自于热荧光过程, 我们仔细研究了样品 S1 在 488.0 nm 激光激发下一级和二级声子 (XX) 和 (XY) 的偏振光谱, 其结果示于图 3。从图 3 中可以看出, 2 Mi-IF 模仍具有和 1 Mi-IF 模相同的偏振特性, 即只能在 (XX) 偏振下被观察到, 而且这里更明显地看到了这种线宽的变化。3 级和 4 级多声子谱也存在同样的偏振特性。这说明由本质性的偏振特性判断, 观察到的 Mi-IF 的多重模是来自于

偏振不相干的。而 RRS 则是一个双光子相干过程, 同时伴随着声子的产生或消灭, 其中出射光子与入射光子保持偏振相干特性。因此 RRS 和 HL 过程的主要差别在于它们的偏振特性不同。HL 是偏振不相干的。光谱中多重模从低级到高级逐渐失去偏振记忆。为了考察上述线宽的展宽是否是来自于热荧光过程, 我们仔细研究了样品 S1 在 488.0 nm 激光激发下一级和二级声子 (XX) 和 (XY) 的偏振光谱, 其结果示于图 3。从图 3 中可以看出, 2 Mi-IF 模仍具有和 1 Mi-IF 模相同的偏振特性, 即只能在 (XX) 偏振下被观察到, 而且这里更明显地看到了这种线宽的变化。3 级和 4 级多声子谱也存在同样的偏振特性。这说明由本质性的偏振特性判断, 观察到的 Mi-IF 的多重模是来自于

多声子喇曼散射,这里的线宽变化并非来源于热荧光过程,必另有原因。

值得注意的是,我们所观察到的 Mi-IF 多声子谱的这种展宽与 Martin 在 CsI 中所观察到的杂质局域振动模的多声子喇曼光谱具有类似的谱线展宽特征^[16]。Martin 将这种展宽归结为非简谐作用导致的杂质局域模的衰变(decay)。前面已经指出 Mi-IF 模也是一种局域性很强的振动模,在局域特性上非常类似于晶体中的杂质振动模,因此,我们认为观察到的 Mi-IF 模多声子谱中的线宽变化十分可能也来自于这种展宽机制。

其次,我们发现, Mi-IF 模的各多重模之间的相对强度,以及各级 Mi-IF 模对同级 ZnTe LO 类体模的相对强度都随 m 的增大而减弱。当趋近严格的出射共振时,ZnTe LO 类体模的多声子谱的强度表现出明显的逐渐增强的趋势,与本文开头所述的多声子散射的特征是相符的。但对于 Mi-IF 多重模的散射,我们没有观察到这种趋势。我们认为这是由于 Mi-IF 模的振动强烈地局域在界面附近,虽与超晶格界面两边阱和垒中的激子都能够产生耦合,但是比之于 LO 类体模与存在于整个垒层的扩展激子的共振,其耦合强度小得多,我们认为正是这种耦合强度的差别导致了上述共振行为的不同。

综上所述,我们在 CdSe/ZnTe 超晶格中,明显地观察到了 $m=4$ 级的微观界面模的多声子散射,虽然这种微观界面模的多声子谱的光谱特征在其频率和偏振特性上与 LO 模多声子喇曼散射的特征相同,但在线宽与强度变化方面却与 LO 声子的多声子谱有明显差别。经过分析,我们认为这两种与(类)体模多声子喇曼散射不同的光谱特征是微观界面模具有强烈局域特性的反映。从而说明,我们观察到的 CdSe/ZnTe 超晶格的微观界面模的多声子谱仍应归之于喇曼散射过程。它或许也表明超晶格中多声子喇曼散射和热荧光过程的本质区别主要在于光谱的频率和偏振特征。

参 考 文 献

- [1] M. Cardona, in "Light scattering in Solids II", edited by M. Cardona and Guntherodt (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1982), P. 145 and P. 167.
- [2] R. C. Leite, J. F. Scott and T. C. Damen, Phys. Rev. Lett., 1969, 22: 780.
- [3] M. V. Klein and S. P. S. Porto, Phys. Rev. Lett., 1969, 22: 782.
- [4] D. J. Mowbray, M. Cardona and K. Ploog, Phys. Rev., 1991, B43: 11815.
- [5] M. H. Meynadier, F. Finkman, M. D. Sturge, J. M. Worlock, and M. C. Tamargo, Phys. Rev., 1987, B35: 2517.
- [6] S. Nakashima, A. Wada, H. Fujiyasu, M. Aoki and H. Yang, J. Appl. Phys., 1987, 62: 2009.
- [7] Z. C. Feng, S. Perkowitz and O. K. Wu, Phys. Rev., 1990, B41, 6057.
- [8] K. Shahzad, D. J. Olego, C. G. Van de Walle and D. A. Cammack, J. Lumin., 1990, 46: 109.
- [9] E.-K. Suh, D. U. Bartholomew, A. K. Ramdas, S. Rodrigues, S. Venugopalan, L. A. Kolodziejski and R. L. Gunshor, Phys. Rev., 1987, B36: 4326.
- [10] S. L. Zhang, Y. T. Hou, M. Y. Shen, J. Li and S. X. Yuan, Phys. Rev., 1993, B47: 12937.
- [11] 张树霖,侯永田,申猛燕,张小洁,李杰,袁诗鑫,半导体学报,1992,13: 453.
- [12] A. Fasolino, E. Molinan and J. C. Maan, Phys. Rev., 1986, B33, 8889.
- [13] Y. Jin, Y. T. Hou, S. L. Zhang, J. Li, S. X. Yuan and G. G. Qin, Phys. Rev., 1992, B45: 12141.
- [14] Y. Jin, Y. T. Hou, S. L. Zhang, J. Li, S. X. Yuan and G. G. Qin, in Proceedings of the 21st International Conference on The Physics of Semiconductors, Beijing, China, August 10—14, 1992, Editors: Ping Jiang and Hou-Zhi Zheng, World Scientific, P. 815.
- [15] Y. R. Shen, Phys. Rev., 1974, B9: 622.
- [16] T. P. Martin, Phys. Rev., 1976, B13: 3617.

Multiphonon Raman Scattering of Microscope Interface Phonon Mode in CdSe/ZnTe Superlattice

Hou Yongtian, Jin Ying and Zhang Shulin

(*Physics Department, peking University, Beijing 100871*)

Li Jie and Yuan Shixin

(*Shanghai Institute of Technical Physics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083*)

Abstract The multiphonon Raman scattering of microscopic interface phonon mode in CdSe/ZnTe superlattice has been studied based on our previous observation of this interface phonon mode, and overtones of interface mode up to 4th order has been observed. The Raman spectra reveal a difference of the multiphonon spectra of interface mode from that of LO bulk-like phonon mode. According to a tentative discussion, we think this difference reflects the vibrational localization of the interface phonon mode.

PACC: 6320, 7830, 6865