

$(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3/\text{ZnSe}$ 短周期超晶格 多量子阱的共振 Raman 谱

侯永田 何国山 张树霖

北京大学物理系, 北京 100871

彭中灵 李 杰 袁诗鑫

中国科学院上海技术物理研究所, 上海 200083

1992年12月3日收到

在 $(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3/\text{ZnSe}$ 短周期超晶格多量子阱中, 根据一维线性链模型计算的结果与实验结果的比较表明, 我们在不同的共振条件下分别观察到了来自多量子阱的阱中和垒中 ZnSe 限制纵光学声子模的 Raman 散射. 与 GaAs/AlAs 量子阱的偏振选择定则不同, 在共振条件下, 我们在两种偏振配置下都观察到了阱中 ZnSe 限制模 LO_1 , 并认为这种不同可能来源于样品特殊的电子子带结构和光学声子行为.

PACC: 7830; 7865; 6320

近年来, II-VI 族应变层超晶格由于其在制作可见光波段光电器件方面广阔的应用前景而日益受到重视, 特别是 CdSe/ZnSe, ZnTe/ZnSe 等超晶格, 它们的带隙处于可见光的蓝绿波段, 是制作蓝绿发光器件的最重要的材料之一. 最近, 用 CdZnSe/ZnSe 单量子阱制作的输出蓝绿激光的二极管已有文献报道^[1], 因此对这种材料的结构和光学性质的研究有着十分重要的意义.

由于 ZnSe 和 CdSe 具有较大的晶格失配, 难以生长出高质量的 CdSe/ZnSe 超晶格结构, 因此目前研究得最多的是 CdZnSe/ZnSe 合金型超晶格. 最近, 我们生长了一种新的 $(\text{CdSe})_n(\text{ZnSe})_m/\text{ZnSe}$ 短周期超晶格多量子阱(SSQW)结构, 即多量子阱的阱层设计为 $(\text{CdSe})_n(\text{ZnSe})_m$ 短周期超晶格(n, m 代表化合物的层数), 以降低阱层和垒层的晶格失配. 光荧光谱和 X 射线衍射实验都证明它具有较高的晶体质量^[2]. 本文报道对这种新型量子阱的共振 Raman 散射光谱的研究结果.

本实验所用样品都是用原子层外延方法生长的, 生长所用的衬底为 GaAs(001) 基片, 其上先生长 1—2 μm 厚的 ZnSe 过渡层, 然后再生长所需要的 $(\text{CdSe})_n(\text{ZnSe})_m/\text{ZnSe}$ 短周期超晶格多量子阱结构^[2,3]. 样品 Z_1 和 Z_2 分别为 7 个周期的 $[(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3]_{14}/(\text{ZnSe})_{130}$ 和 $[(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3]_{15}/(\text{ZnSe})_{130}$ 的多量子阱. 来自阱中的自由激子的发光峰分别在 2.57 和 2.54 eV^[2]. Raman 光谱实验在液氮(81K) 温度和近背散射条件下进行, 分光系统为附加第三单色仪的 SPEX-1403 双单色仪, 光源为氩离子激光器, 由致冷光电倍增管接收散射信号. 晶轴方向为 $X=(100)$, $Y=(010)$, $Z=(001)$.

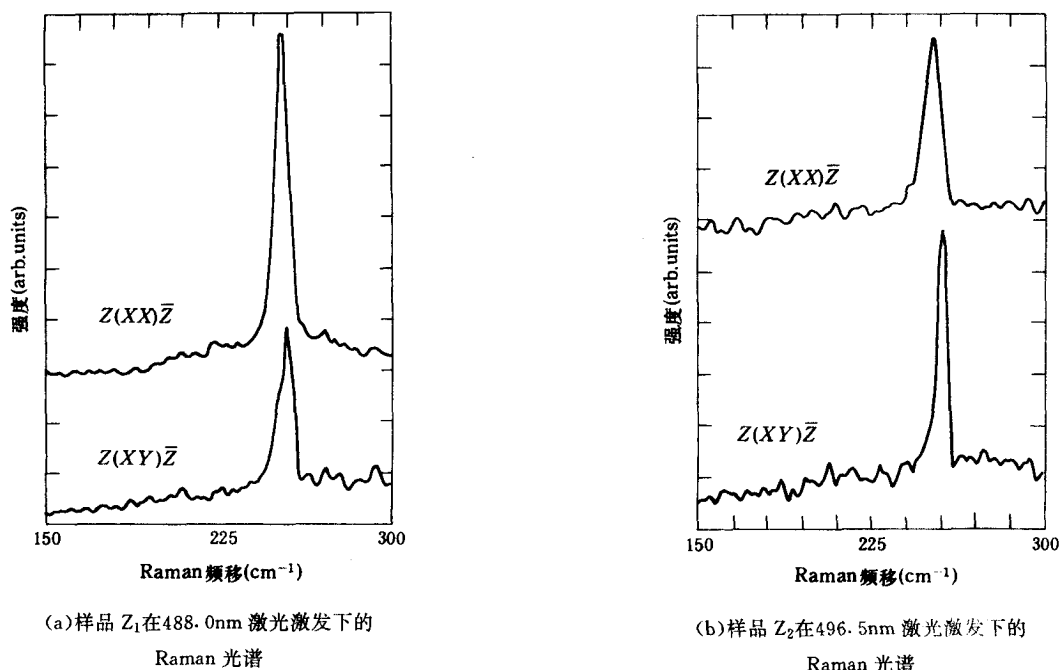


图1 共振 Raman 谱

图1(a)和(b)为样品 Z_1 和 Z_2 在波长分别为 488.0 nm (2.54 eV) 和 496.5 nm (2.50 eV) 激光激发下的 LO 声子频率范围内的近共振 Raman 光谱. 从图1可以看出, 在 $Z(XX)\bar{Z}$ 偏振配置下, 在两个样品中观察到的 Raman 峰都位于 252cm^{-1} . 考虑到 ZnSe 和 CdSe 体材料 LO 声子在 Γ 点的频率分别为 255cm^{-1} ^[4] 和 201cm^{-1} ^[5], 多量子阱的垒层厚度为 130 个原子层, 垒层的限制效应很小, 作为一级近似可以忽略, 而且由于多量子阱是赝晶 (pseudomorphic) 生长的, 应变只存在于 CdSe 层中, 应变对 ZnSe 中 LO 声子的频率也没有影响, 因此 252cm^{-1} 处的 Raman 峰不可能来源于垒中 ZnSe 的 LO 声子的散射. 由于阱中短周期超晶格的周期数比较大 (分别为 14 和 15 个周期), 而且超晶格中限制光学模的色散比较小, 因此多量子阱垒层的存在对阱中 ZnSe 限制 LO 模频率的影响可以忽略. 我们用一维线性链 (LCM) 模型, 在只考虑了最近邻近近似的情况下, 计算了 $(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3$ 短周期超晶格的声子色散曲线, 得到 $(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3$ 短周期超晶格中 ZnSe 限制模 LO_1 和 LO_2 在 Γ 点的频率分别为 250.3cm^{-1} 和 234.6cm^{-1} . 根据色散曲线的计算结果和实验光谱的比较, 我们将 252cm^{-1} 处的 Raman 峰指认为构成多量子阱阱层的短周期超晶格中 ZnSe 限制模 LO_1 的散射. 在 $Z(XY)\bar{Z}$ 偏振配置下, 在两个样品中都观察到了在 255cm^{-1} 处的 Raman 峰, 而且在样品 Z_1 和 Z_2 的光谱中, 在 252cm^{-1} 处都还存在一个肩状 LO_1 峰. 根据体材料 ZnSe 的 $\omega_{\text{LO}}(\Gamma) = 255\text{cm}^{-1}$ 以及上述关于多量子阱垒层限制效应的讨论, 我们把 255cm^{-1} 的峰归属于来自多量子阱垒层 ZnSe 的 LO 声子类体模的散射.

为了证实上述指认, 图2示出样品 Z_1 在 457.9 nm 激光激发下的 Raman 光谱. 由于 457.9 nm (2.71 eV) 激光的光子能量接近多量子阱中扩展激子的能量 (约为 ZnSe 体材料的带隙, 2.72 eV), 观察到的光谱是多量子阱垒层的近共振的 Raman 散射^[6], 所以在两种

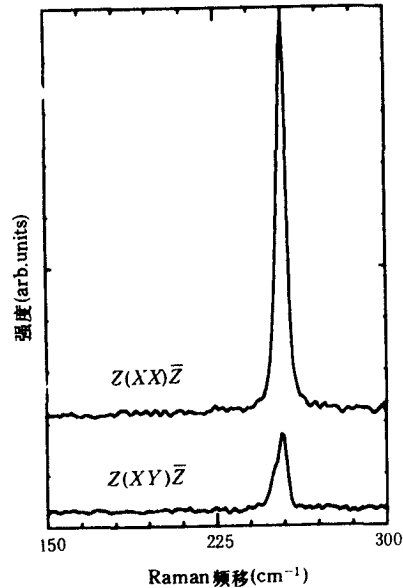


图2 样品 Z_1 在 457.9 nm 激光激发下的
Raman 光谱

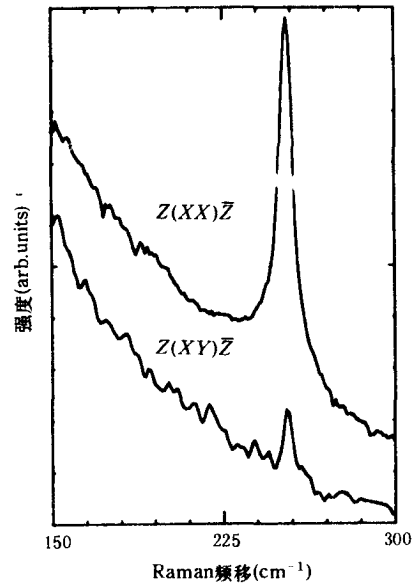


图3 样品 Z_2 在 488.0 nm 激光激发下的
Raman 光谱

偏振配置下所观察到的位于 255cm^{-1} 的 Raman 峰只能是来自垒层 ZnSe 的类体 LO 声子的散射. 图3示出样品 Z_2 在 488.0 nm (2.54 eV) 激光激发下的 Raman 光谱, 此时入射光子是与限制在样品 Z_2 阱中的激子严格共振的. 从图3中可以看到, 在两种偏振配置下所观察到的 Raman 峰的频率均为 252cm^{-1} , 它们应该来源于多量子阱中短周期超晶格 ZnSe 限制模 LO_1 . 这些实验事实从另一个方面说明我们对这两个光谱结构的指认是合理的.

为了考察界面合金化对 SSQW 光学声子模的影响, 我们在假设阱层已完全合金化, 即量子阱结构为 $\text{Cd}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}/\text{ZnSe}$ 的情况下, 计算了多量子阱合金化阱层的 LO 模的频率. 对于 $\text{Cd}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}$ 体合金材料, 其光学声子模表现为单模行为, LO (Γ) 频率为 249cm^{-1} ^[7]. 由于我们的多量子阱样品的阱宽为 60 个原子层, 限制效应可以忽略, 可只考虑应变对 LO 声子频率的影响. 在样品为膜晶生长的情况下, 我们根据文献[8, 9]计算得到的 ω_{LO} 为 259.6cm^{-1} , 其中所用的 CdZnSe 合金的各种参数都取 ZnSe 体材料的相应参数^[8]. 理论计算结果远大于实验结果, 这说明界面的合金化不足以影响到我们上述指认的合理性.

以上由声子色散曲线, 即 Raman 频率角度出发的讨论, 指认了各个 Raman 峰的归属, 但我们发现光谱的偏振特性却偏离了现有的超晶格和量子阱结构限制光学模的 Raman 散射理论中关于偏振的选择定则. 根据最近黄昆和朱邦芬发展的 Raman 散射微观理论^[10], 由 Frolich 电声相互作用决定的 n 为偶的限制 LO_n 声子的散射只出现在 $Z(\text{XX})\bar{Z}$ 偏振配置下, 而由形变势相互作用决定的 n 为奇的 LO_n 声子只在 $Z(\text{XY})\bar{Z}$ 偏振配置下出现. 在共振条件下, n 为偶的 LO_n 声子的散射通常得到极大的共振增强. 在 GaAs/AlAs 超晶格中的共振 Raman 光谱实验已证实了上述结论^[11]. 但在我们的多量子阱的共振 Raman 光谱中, 在 $Z(\text{XX})\bar{Z}$ 和 $Z(\text{XY})\bar{Z}$ 偏振配置下同时观察到了短周期超晶格中的 ZnSe

奇数的限制模 LO_1 , 这与理论预期以及以前的实验结果不一致. 我们认为这种不一致是与本文所用样品中不同于前述超晶格的电子子带结构和光学声子行为有关的. 在以往的理论文献[11]的实验中, 所研究的对象都为电子和声子是限制在阱层中的超晶格结构. 而我们的 SSQW 样品中, 电子波函数在短周期超晶格中是扩展的电子波函数, 电子波函数在 ZnSe 层中并不是象在 GaAs/AlAs 量子阱中那样是限制在 GaAs 层中的驻波函数, 而是指数函数 $(Ae^{kx} + Be^{-kx})$ 的形式. 而且, 短周期超晶格 ZnSe 层中的 LO 声子模也会穿透单层 CdSe, 成为“准限制”声子模. 在这种情况下, 电子和声子并不是限制在同一区域, 使黄朱模型导出选择定则的条件在此得不到满足, 因而导致奇的 LO 限制模在平行和垂直偏振谱中有可能都被观察到.

综上所述, 我们观察了 SSQW 的 LO 声子的共振 Raman 光谱, 根据线性链模型的计算, 把 252cm^{-1} 和 255cm^{-1} 的峰分别指认为阱层和垒层的 ZnSe 光学限制模, 并讨论了上述两个谱峰的偏振特性和选择定则.

- [1] M. A. Haase, J. Qiu, J. M. Depuydt and H. Cheng, *Appl. Phys. Lett.*, **59**(1991), 1272.
- [2] Zhongling Peng, Jie Li, Wenhua Yao, Li He, Xingyu Cheng and Shixin Yuan, *Appl. Phys. Lett.*, to be published.
- [3] Jie Li, Li He, Wei Shan, Xingyu Cheng and Shixin Yuan, *J. Cryst. Growth*, **111**(1991), 736.
- [4] D. J. Olego, K. Shahzad, D. A. Cammack and H. Cornelissen, *Phys. Rev.*, **B38**(1988), 5554.
- [5] Y. Jin, Y. T. Hou, S. L. Zhang, J. Li, S. X. Yuan and G. G. Qin, *Phys. Rev.*, **B45**(1992), 12141.
- [6] J. E. Zucker, A. Pinczuk, D. S. Chemla, A. Gossard and W. Wiegmann, *Phys. Rev.*, **B29**(1984), 7065.
- [7] M. Y. Valakh, A. P. Litvinchuk, R. S. Pekar, G. N. Polisskii, V. I. Sindorenko and A. M. Yaremko, *Phys. Status Solidi*, **(B)113**(1982)635.
- [8] F. Cerdeira, C. J. Buchenauer, F. H. Pollak and M. Cardona, *Phys. Rev.*, **B5**(1972), 580.
- [9] B. Jusserand, P. Voisin, M. Voos, L. L. Chang, E. E. Mendez and L. Esaki, *Appl. Phys. Lett.*, **46**(1985), 678.
- [10] Kun Huang, Bangfen Zhu and Hui Tang, *Phys. Rev.*, **B41**(1990), 5825.
- [11] Shu-lin Zhang, T. A. Gant, M. Delaney, M. V. Klein, J. Klem and H. Morkog, *Chinese Phys. Lett.*, **5**(1988), 113.

RESONANT RAMAN SCATTERING IN $(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3/\text{ZnSe}$ SHORT-PERIOD SUPERLATTICE MULTIPLE QUANTUM WELLS

HOU YONG-TIAN HE GUO-SAN ZHANG SHU-LIN

Department of Physics, Peking University, Beijing 100871

PENG ZHONG-LING LI JIE YUAN SHI-XIN

Shanghai Institute of Technical Physics, Academia Sinica, Shanghai 200083

(Received 3 December 1992)

ABSTRACT

In $(\text{CdSe})_1(\text{ZnSe})_3/\text{ZnSe}$ short-period superlattice multiple quantum wells, we observed the Raman scattering from ZnSe confined longitudinal optical phonon modes in both the barriers and wells of quantum wells under different resonant conditions. From comparison between theoretical analysis with linear chain model and experimental results, the observed ZnSe confined longitudinal optical phonon mode in the both configuration are shown to be LO_1 . This differs from the observations in GaAs/AlAs quantum wells and we tentatively attribute the disagreement to the different subband structures in our sample.

PACC: 7830; 7865; 6320