

ZnSe-ZnTe 应变层超晶格远红外反射谱

崔 捷 陈云良 王海龙 干福熹
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文首次报道室温下测量的分子束外延生长的 ZnSe-ZnTe 应变层超晶格的远红外反射谱。得到了 ZnSe、ZnTe 横光学声子模。用长波长超晶格介电理论和多层吸收薄膜理论进行曲线拟合, 确定 II-VI 族 ZnS、eZnTe 材料的一些基本材料参数, 如横光学声子频率、模衰减常数、模振荡强度、高频介电常数等。本文首次报道这些参数。

关键词: 应变层超晶格、远红外反射、分子束外延、横光学声子模。

一、引 言

II-VI 族宽禁带化合物超晶格是很有潜力的制做可见光波段光电器件的半导体材料。人们目前的研究工作主要集中于激子特性^[1~6], 如荧光特性、光吸收特性等。也有人用 Raman 光谱方法研究一些声子特性^[7~11]。我们用远红外反射光谱研究 II-VI 族超晶格材料的声子模。远红外反射方法不仅可以方便地通过声子模的测量来检测微结构材料的质量, 同时和 Raman 光谱相比也有其优越之处, 首先, 各种声子模都是非禁戒的, 在远红外波段, 由于衰减深度很大, 因此整个超晶格结构都可以探测到, 不象 Raman 散射那样只能探测表面附近几个周期以内的结构。同时远红外波段超晶格的介电函数表达式比较简单, 我们可以方便地利用介电函数理论分析实验曲线, 而 Raman 光谱难以做到这一点。III-V 族 AlGaAs-GaAs 系列超晶格的远红外反射谱已有一些报道^[12~15], II-VI 族窄禁带化合物 HgTe-CdTe 超晶格的远红外反射谱也有报道^[16, 17], 但 II-VI 族宽禁带化合物超晶格材料的远红外反射谱未见报道。

本文首次报道 II-VI 族 ZnSe-ZnTe 应变层超晶格的远红外反射谱, 并采用长波长超晶格介电理论和多层吸收薄膜反射理论分析反射谱, 用计算机进行曲线拟合, 确定 II-VI 族 ZnSe、ZnTe 材料的一些基本材料参数, 如横光学声子频率、模衰减常数、模振荡强度、高频介电常数等。

二、实验、结果和讨论

1. 实验

ZnSe-ZnTe 应变层超晶格样品是采用分子束外延方法生长在 [100]GaAs 衬底上(需先生长 ZnSe 缓冲层)和 [100]InP 衬底上。结构参数由 X 射线衍射测量结合生长速率确定。

用 Fourier 远红外光谱仪测量室温正入射 $100\sim 500\text{ cm}^{-1}$ 区域的反射曲线, 分辨率 2 cm^{-1} 。

2. 结果和讨论

图 1 是 ZST-22 号样品的远红外反射谱(其结构参数为 ZnSe 层厚 86 \AA , ZnTe 层厚 86 \AA , 周期数 10, ZnSe 缓冲层厚 $0.12\text{ }\mu\text{m}$, 衬底是 $[100]\text{GaAs}$)。反射率在 $150\sim 250\text{ cm}^{-1}$ 区域有两个峰, 分别在 180 cm^{-1} 和 210 cm^{-1} 附近, 它们分别是 ZnTe、ZnSe 的横光学声子模 (TO 模)。我们发现在 ZnSe-ZnTe 应变层超晶格中的 ZnTe 的 TO 模和 ZnSe 的 TO 模相对体材料相应的 TO 模有所移动, 并且随结构参数变化^[7], 说明这种超晶格结构各层中有非均匀应力存在, 它们改变了每层材料的声子模频率。我们也测量了 ZnSe-ZnTe 混晶的声子谱, 呈现单一模^[18], 该模频率位于 ZnTe、ZnSe 材料 TO 模之间, 也随结构参数变化。如图 2 所示。(310 cm^{-1} 附近的峰是 InP 衬底的 TO 模)。因此可以很容易地利用远红外反射谱鉴定材料是否为良好的超晶格材料^[9]。

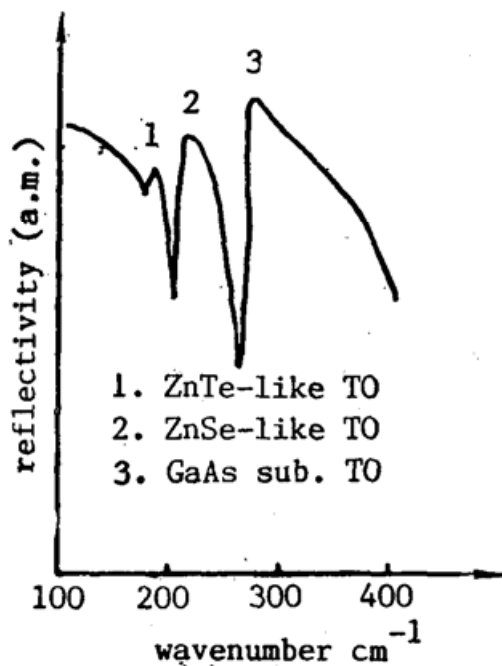


Fig. 1 The measured far-infrared reflectivity spectrum of ZnSe-ZnTe strained-layer superlattice

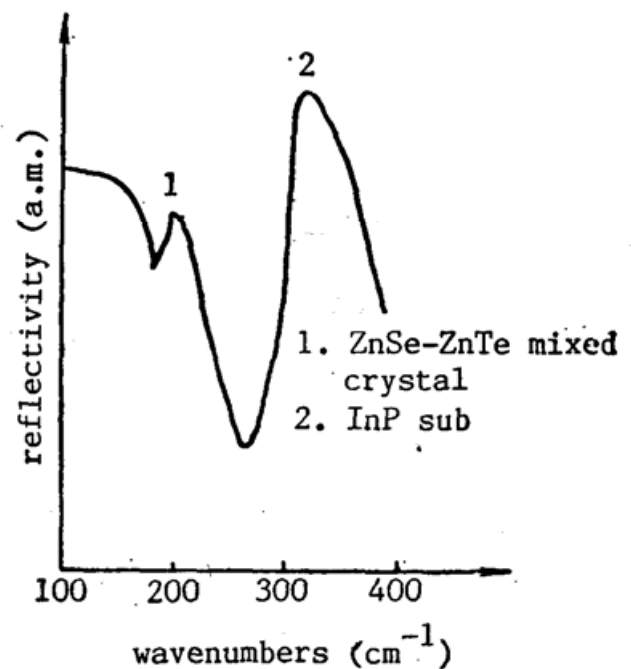


Fig. 2 The measured far-infrared reflectivity spectrum of ZnSe-ZnTe mixed crystal system

考虑到这种超晶格材料在远红外波段是强吸收的, 因此用长波长超晶格介电函数理论结合多层吸收薄膜的反射理论讨论反射谱。

尽管这种应变层超晶格中每层都有很大的应力, 但应变分量的平行分量中有两个是相等的, 这两个分量在垂直于超晶格生长的平面内^[7], 因此仍可以将这种超晶格看做单轴介质, 这样可以写出超晶格结构的介电常数为^[19]

$$\epsilon_{\perp}(\omega) = (\epsilon_1 d_1 + \epsilon_2 d_2) / (d_1 + d_2), \quad \epsilon_{\parallel}^{-1}(\omega) = (\epsilon_1^{-1} d_1 + \epsilon_2^{-1} d_2) / (d_1 + d_2)$$

对 TO 模, 只考虑垂直超晶格生长方向的分量 $\epsilon_{\perp}(\omega)$ 。写出超晶格在正入射光时的介电函数为

$$\epsilon_{BL} = (\epsilon_1 d_1 + \epsilon_2 d_2) / (d_1 + d_2), \quad (1)$$

ϵ_1, ϵ_2 分别是两种材料的介电函数, d_1, d_2 是相应每一层的厚度。缓冲层和衬底可近似看做体材料, 它们的介电函数是

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + S\omega_{\text{TO}}^2 / (\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega), \quad (2)$$

式中 ϵ_{∞} 、 S 、 γ 、 ω_{TO} 分别是高频介电常数、模振荡强度、模衰减系数、TO 声子频率。这些都是材料的基本参数, II-VI 族的 S 、 γ 等未见报道。

将介电函数写成因式形式

$$\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' = (n^2 - K^2) + i \cdot 2nK, \quad (3)$$

n 、 K 是折射率和消光系数, 复折射率 $N = n + iK$ 。有

$$n = \left[\frac{1}{2} (\epsilon'^2 + \epsilon''^2)^{\frac{1}{2}} + \epsilon' \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (4)$$

$$K = \left[\frac{1}{2} (\epsilon'^2 + \epsilon''^2)^{\frac{1}{2}} - \epsilon' \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (5)$$

由(1)~(5)式可分别得出超晶格层、缓冲层、衬底的折射率和消光系数, 进一步由多层吸收膜的反射理论推导反射率的理论公式^[20]。

对正入射情形, 当入射光从第 $j-1$ 层传播到第 j 层, Fresnel 系数是

$$r_j = g_j + ih_j = \frac{N_{j-1} - N_j}{N_{j-1} + N_j},$$

$$\text{式中 } g_j = \frac{(n_{j-1}^2 + K_{j-1}^2) - (n_j^2 + K_j^2)}{(n_{j-1} + n_j)^2 + (K_{j-1} + K_j)^2}, \quad h_j = \frac{2(n_{j-1}K_j - n_jK_{j-1})}{(n_{j-1} + n_j)^2 + (K_{j-1} + K_j)^2}.$$

这样可得到第 j 层等效 Fresnel 系数为

$$\rho_j^2 = \frac{G^2 + H^2}{G'^2 + H'^2}, \quad \tan \xi_j = \frac{H'}{G'}$$

$$\tan \eta_j = \frac{H}{G}, \quad \Delta_j = \eta_j - \xi_j$$

其中 $H = h_j + e^{-\alpha_j} (h_{j+1} \cos \theta_j - g_{j+1} \sin \theta_j)$, $G = g_j + e^{-\alpha_j} (g_{j+1} \cos \theta_j + h_{j+1} \sin \theta_j)$,

$$H' = e^{-\alpha_j} [(h_j g_{j+1} + h_{j+1} g_j) \cos \theta_j - (g_j g_{j+1} - h_j h_{j+1}) \sin \theta_j],$$

$$G' = 1 + e^{-\alpha_j} [(g_j g_{j+1} - h_j h_{j+1}) \cos \theta_j + (h_j g_{j+1} + h_{j+1} g_j) \sin \theta_j],$$

式中 $\alpha_j = -\frac{4\pi}{\lambda} K_j d_j$, $\theta_j = -\frac{4\pi}{\lambda} n_j d_j$, λ 是入射波长。

由递推关系得到第 $j-1$ 层等效 Fresnel 系数

$$\rho_{j-1} e^{i\Delta_{j-1}} = \frac{r_{j-1} + \rho_j e^{i\Delta_j} e^{-2i\Delta_{j-1}}}{1 + r_{j-1} \rho_j e^{i\Delta_j} e^{-2i\Delta_{j-1}}}$$

式中 $e^{-2i\Delta_j} = e^{-\alpha_j} (\cos \theta_j - i \sin \theta_j)$ 。

这样递推到 ρ_1 , 从而得到整个超晶格系统的反射系数 ρ_1^2 , 它在 ω_{TO} 附近出现极大值。利用计算机进行反射率的曲线的拟合, 从而确定公式中包含的最基本材料参数 ϵ_{∞} 、 S 、 γ 、 ω_{TO} 等。

图 3 是得到的拟合曲线, * 是测试数据, 实线是上述理论计算曲线。表 1 列出得到的结构参数。

我们在进行理论计算时, 假设超晶格中每种材料层厚度严格一致。实际上样品的每层厚度会有一些变化。反射峰是各层相互干涉的结果, 结构参数的涨落会使反射峰展宽。按照介电理论, TO 声子峰的上升前沿对应 ω_{TO} 值, 因此在进行曲线拟合时, 注重这一部分的逼近。从得到的材料参数看, ZnSe 的 TO 模频率比体材料相应值减小(体材料 ZnSe 的 TO

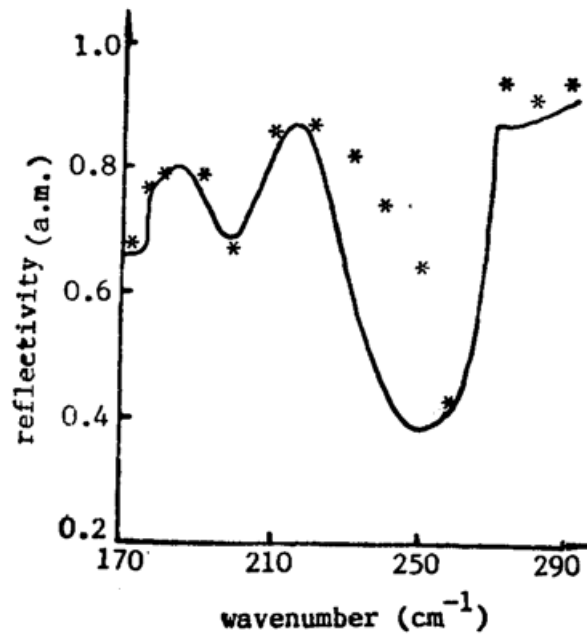


Fig. 3 Measured (*) and fitted (—) far-infrared reflectivity spectrum of ZnSe-ZnTe SLS sample ZST-22 at 300 K

Table 1 Phonon parameters giving best fit to the measured reflectivity curves for an ZnSe-ZnTe SLS

layer	ϵ_{∞}	$\omega_{\text{TO}}(\text{cm}^{-1})$	S	γ	$d(\text{\AA})$
ZnTe	8.3	178.2	4.63	24.7	86
ZnSe	5.8	206.0	1.91	27.4	86
ZnSe buffer	6.0	210.5	1.8	27.0	0.12/ μ
GaAs sub.	11.5	268.2	5.9	0.46	

模频率 209 cm^{-1}), 而 ZnTe 的 TO 模频率比体材料的增大 (ZnTe 体材料 TO 模频率 177 cm^{-1}), 这和用 Raman 光谱测量的结果是一致的^[9]。在 ZnSe-ZnTe 应变层超晶格系统中, 晶格是闪锌矿结构, ZnSe 和 ZnTe 晶格常数分别是 5.669 \AA , 6.104 \AA , 在 [100] 衬底上生长 SLS 结构时, 则在 (100) 平面内 ZnSe 层受双轴拉伸应力, ZnTe 层受双轴压缩应力, TO 模原子位移也在 (100) 平面内。从我们的实测曲线来看, 拉伸应力使声子模频率减小, 压缩应力使声子模频率增大。

三、结 束 语

远红外反射谱是鉴定晶体质量的良好手段, 也是测定超晶格材料 TO 声子模的简单方法, 比 Raman 光谱要方便得多。我们用此方法成功地测量了 II-VI 族 ZnSe-ZnTe 应变层超晶格 TO 声子模, 同时利用曲线拟合得到了这两种材料的几个基本参数。

感谢中国科学院上海光机所徐梁、沈爱东、沈玉华、丁浩等同志的帮助。

参 考 文 献

- [1] Masakazu Kobayashi *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**, No. 4 (Jan), 296.
 [2] Hiroshi Kuwabara *et al.*; *Japan. J. A. P.*, 1986, **25**, No. 9 (Sep), L707.
 [3] Toshiya Yokogawa *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **49**, No. 25 (Dec), 1702.
 [4] Akira Taike *et al.*; *Japan. J. A. P.*, 1987, **26**, No. 6 (Jun), L989.
 [5] Shigeo Fujita *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1985, **47**, No. 9 (Nov), 955.
 [6] K. Mohammed *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1987, **50**, No. 25 (Jun), 1820.
 [7] S. Nakashima *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**, No. 3 (Jan), 236.
 [8] S. Nakashima *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1987, **62**, No. 5 (Sep), 2009.
 [9] Masakazu Kobayashi *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1987, **61**, No. 3 (Feb), 1015.
 [10] Y. H. Wu *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**, No. 3 (Jan), 239.
 [11] J. Menendez *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1987, **50**, No. 16 (Apr), 1101.
 [12] M. S. Durschlag *et al.*; *Solid State Commun.*, 1981, **40**, No. 3 (Oct), 307.
 [13] K. A. Maslin *et al.*; *Solid State Commun.*, 1986, **60**, No. 5 (Nov), 461.
 [14] R. Sudharsanar *et al.*; *Proc. SPIE*, **794** (1987), 197.
 [15] A. S. Barker *et al.*; *Phys. Rev. (B)*, 1978 **B17**, No. 8 (Apr), 3181.
 [16] S. Perkowitz *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **49**, No. 13 (Sep), 806.
 [17] S. Perkowitz *et al.*; *J. Vac. Sci. Technol.*, 1987, **A5**, No. 5 (Sep/Oct), 3157.
 [18] S. Nakashima *et al.*; *J. Phys. Soc. Jpn.*, 1971, **30**, No. 5 (May), 1508.
 [19] N. Raj *et al.*; *Solid State Commun.*, 1985, **55**, No. 4 (Jul), 373.
 [20] O. S. Heavens; *«Optical Properties of Thin Solid Films»*, (Butter Worths Scientific Publications, London, 1955), 46~66.

Far-infrared reflectivity spectra of ZnSe-ZnTe Strained-Layer superlattices

CUI JIE, CHEN YUNLIANG, WANG HAILONG AND GAN FUXI
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 29 March 1990)

Abstract

Far-infrared reflectivity spectra have been measured for the first time on ZnSe-ZnTe strained-layer superlattices grown by molecular beam epitaxy. The spectra at 300 K display the ZnSe and ZnTe transverse optical phonon modes. The reflectivity spectrum can be explained by the long wavelength superlattice dielectric theory and the reflection theory of multiple absorbing layers. Fitting the experimental data with the computer calculated curve, the transverse optical phonon frequencies, mode damping constants, mode oscillator strengths and high frequency dielectric constant have been determined.

Key words: strained-layer superlattice; far-infrared reflectivity; molecular beam epitaxy; transverse optical phonon mode.