

Зонная структура и спектр фотолюминесценции сверхрешетки $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}/\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ с вертикально совмещенными квантовыми точками

© Н.В. Сибирев^{*¶}, В.Г. Талалаев^{+^}, А.А. Тонких^{*^,^,^}, Г.Э. Цырлин^{*^,^,^},
В.Г. Дубровский[^], Н.Д. Захаров[^], Р. Werner[^]

* Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
190103 Санкт-Петербург, Россия

+ Институт физики им. В.А. Фока, Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Петродворец, Россия

^ Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik,
06120 Halle (Saale), Deutschland

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

(Получена 6 мая 2005 г. Принята к печати 9 июня 2005 г.)

Проведен теоретический анализ энергетической зонной диаграммы многослойных гетероструктур $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}/\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ с вертикально совмещенными квантовыми точками. С учетом флуктуаций толщины слоев в колонках квантовых точек и экситон-фононного взаимодействия показано, что электронные состояния формируют минизону. Дырочные волновые функции остаются локализованными в квантовых точках. Спектр оптических переходов в 20-слойной структуре, рассчитанный для комнатной температуры, хорошо согласуется с экспериментально измеренным спектром фотолюминесценции, показывающим интенсивную полосу вблизи 1.6 мкм. Теоретически и экспериментально установлен характерный признак существования минизоны в сверхрешетке — интегралы перекрытия электронных и дырочных волновых функций и интегральная интенсивность фотолюминесценции полосы квантовых точек Ge описываются квадратичной зависимостью от количества периодов структуры.

PACS: 68.65.-k, 71.83.-k, 73.21.-b, 73.63.Kv

1. Введение

Созданию эффективных светоизлучающих устройств на основе кремния посвящено в последнее время большое количество работ. Актуальность данных исследований связана с использованием оптических соединений в качестве альтернативы электрическим цепям, связывающим современные интегральные схемы. Одним из перспективных направлений в данной области является создание на основе кремниевой матрицы наноразмерных гетероструктур с квантовыми точками (КТ) германия, способных давать излучение на длине волны 1.55 мкм. Ранее нами были продемонстрированы фото- и электролюминесценция [1,2] при комнатной температуре вблизи 1.6 мкм для селективно легированных сурьмой многослойных гетероструктур Ge/Si с вертикально совмещенными КТ Ge. Наличие высокотемпературной люминесценции из области КТ Ge, превосходящей на несколько порядков интенсивность ТО-полосы кремния, является нетривиальным фактом и не находит объяснения в рамках обычной модели экситонной рекомбинации для КТ Ge [3]. Известно, что гетеропереход Ge/Si имеет энергетическую структуру 2 типа, в которой состояния носителей разного типа разделены гетерограницей: электроны находятся в слоях Si, а дырки локализованы в слоях Ge. Следствием этого является весьма низкая внешняя квантовая эффективность люминесценции таких структур (10^{-6}). Достаточно высокая

эффективность электролюминесценции, достигнутая нами в работах [1,2], интерпретируется возникновением электронной минизоны в сверхрешетке Ge/Si.

В данной работе нами проведено теоретическое обоснование электронной зонной структуры для сверхрешетки Ge/Si с вертикально совмещенными КТ и рассчитаны спектры фотолюминесценции (ФЛ), исследованные ранее экспериментально в работах [1,2]. Используется одномерная модель потенциала, который задается толщиной и глубиной потенциальных ям квазипериодической сверхрешетки $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$, числом слоев N и потенциалом на внешних границах с матрицей Si.

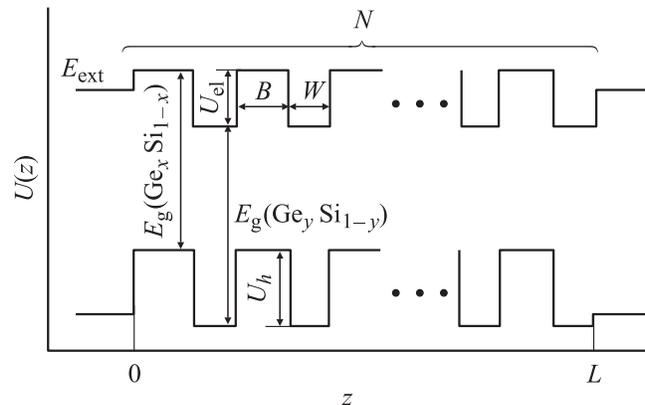


Рис. 1. Схема энергетической зонной диаграммы многослойной структуры $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ ($x > y$) с количеством периодов N . Координата z — направление роста структуры.

¶ E-mail: sibirVN@mail.ru

Схематично данная модель изображена на рис. 1. Для данной модели решается уравнение Шредингера для электронов и дырок методом матриц переноса. Выбор одномерной модели обоснован следующими экспериментальными фактами. Методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) нами было установлено, что в исследуемых структурах КТ вертикально совмещены и формируют колонки в направлении роста [1]. Содержание Ge в колонках (x, y) измерено по методике [4] и носит периодический характер с амплитудой от $x = 0.8$ до $y = 0.1$. Флуктуации толщины слоев (до 20%) учитываются настоящими расчетами. Методами ФЛ и электролюминесценции было установлено [2], что колонки, образованные КТ $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$ и наноразмерными слоями $\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$, обеспечивают излучательную рекомбинацию экситонов в полосе с максимумом вблизи 1.6 мкм. Основным параметром, влияющим на положение максимума люминесценции, является высота КТ (в одномерной модели — толщина B слоя $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$).

2. Расчет энергетического спектра

Одним из параметров расчета структуры зон гетеропереходов является величина разрыва зоны проводимости и связанная с ней величина разрыва валентной зоны. По экспериментальным данным ПЭМ о составах Ge-КТ Si-слоя и (Si-спейсера) на гетерогранице Ge/Si и расчетным данным [5], полученным с учетом упругих напряжений, разрыв зоны проводимости должен составлять около 200 мэВ. Заметим, однако, что в работах других авторов по различным соображениям этот разрыв выбирается меньшим (от 0 до 100 мэВ). Тем не менее достоверно установлено, что разрыв для валентной зоны на гетеропереходе Ge/Si много больше, чем для зоны проводимости. Нами был применен расширенный анализ аррениусовских активационных барьеров для интерпретации температурной зависимости интенсивности полосы ФЛ, соответствующей рекомбинации носителей в колонках Ge-КТ. Этот анализ показал, что энергия активации E_a электрона с дискретного уровня в яме в квазиконтинуум для наших структур зависит от толщины W спейсера $\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$, а не от высоты B квантовой точки $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$. Это значит, что в слое W для электронов существует реальная квантовая яма с дискретным уровнем и высотой барьера, превышающей $k_B T$ при комнатной температуре. Установлено, что с увеличением толщины W от 3.0 до 6.5 нм энергия активации E_a растет в пределах 40–80 мэВ. Для расчетов была выбрана глубина ямы для электронов U_{el} ($U_{el} = \Delta E_c$) в диапазоне $E_a < U_{el} < 200$ мэВ. Эта величина являлась подгоночным параметром при сопоставлении экспериментальных и теоретических данных.

Для расчета спектров ФЛ находились собственные значения операторов Шредингера для электронов и для дырок в периодическом потенциале $U(z)$, изображенном

на рис. 1. Для электронов оператор Шредингера определялся формулой [6]

$$H_{el} = -\frac{d}{dz} \frac{\hbar^2}{2m_{el}^*} \frac{d}{dz} + U_{el}(z). \quad (1)$$

Здесь m_{el}^* — эффективная масса электрона, равная m_{Ge}^{el} в слоях $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ и m_{Si}^{el} в слоях $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$. Учитывалась проекция продольной составляющей эффективной массы на направление роста z для составов $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$, $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$. Величина $U_{el}(z)$ в соотношении (1) — потенциальная энергия, которая считалась равной нулю для слоев $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$, отрицательной в слоях $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ ($-U_{el}$) и равной E_{ext} в матрице Si. Каждой величине U_{el} соответствовала энергия активации E_a . В результате нескольких итераций абсолютная величина U_{el} приводилась к энергии активации E_a электронного состояния, определенной экспериментально для данной структуры. При этом мы требовали выполнения неравенства $E_{ext} > U_{el}$ (если это условие не выполняется, то электроны мигрируют в матрицу кремния). На границах слоев $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ и $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ ставилось условие непрерывности волновой функции $\psi(z)$ и импульса $m_{el}^* d\psi/dz$.

Для дырок оператор Шредингера определялся формулой

$$H_h = -\frac{d}{dz} \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \frac{d}{dz} + U_h(z). \quad (2)$$

Здесь m_h^* — эффективная масса тяжелой дырки, равная m_{Ge}^h в слоях $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ и m_{Si}^h в слоях $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$; $U_h(z)$ — потенциальная энергия, которая принималась равной нулю в слоях $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ и отрицательной в слоях $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ ($-U_h$). На границах слоев твердых растворов ставились те же условия непрерывности волновой функции и импульса, что и для электронов.

В силу постоянства потенциальной энергии в матрице Si задачу поиска собственных значений можно упростить. Вместо того чтобы решать задачу на всей оси z , ее достаточно решать на отрезке от начала первого барьера при $z = 0$ до конца последней ямы при $z = L$. Тогда требование ограниченности волновой функции на всей оси переходит в граничные условия:

$$\begin{aligned} \psi'(-0) &= \sqrt{\frac{2(E_{ext} - E)m_{Si}^{el}}{\hbar^2}} \psi(-0), \\ \psi'(L+0) &= -\sqrt{\frac{2(E_{ext} - E)m_{Si}^{el}}{\hbar^2}} \psi(L+0). \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь $L = N(\bar{B} + \bar{W})$ — координата конца последней ямы, где \bar{B} — средняя величина B , \bar{W} — средняя величина W . Для поиска собственных значений операторов Шредингера строились матрицы переноса, которые по заданным значениям функции и ее производной на одной стороне барьера (или ямы) давали значение функции и ее производной на другой стороне барьера (или

ямы). Для электронов матрица переноса через барьер (матрица туннелирования) имеет вид

$$M_B(B) = \begin{pmatrix} chqB & \frac{m_{\text{Si}}^{\text{el}}}{m_{\text{Ge}}^{\text{el}}} shqB \\ q \frac{m_{\text{Ge}}^{\text{el}}}{m_{\text{Si}}^{\text{el}}} shqB & chqB \end{pmatrix}. \quad (4)$$

Здесь $q = \sqrt{\frac{-2Em_{\text{Ge}}^{\text{el}}}{\hbar^2}}$ и E — значение энергии, при котором строится матрица туннелирования. Матрица переноса электронов через яму имеет вид

$$M_W(W) = \begin{pmatrix} \cos pW & \sin pW/p \\ -p \sin pW & \cos pW \end{pmatrix}, \quad (5)$$

где $p = \sqrt{\frac{2(E-U_{\text{el}})m_{\text{Si}}^{\text{h}}}{\hbar^2}}$. В этих терминах задача сводится к поиску корней $E(\{E_i\}_{i=1}^m)$ следующего уравнения:

$$\left\langle \prod_{i=1}^N M_B(B_i) M_W(W_i) \times \begin{pmatrix} 1 \\ \sqrt{\frac{2(E_{\text{ext}}-E)m_{\text{Si}}^{\text{el}}}{\hbar^2}} \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} \sqrt{\frac{2(E_{\text{ext}}-E)m_{\text{Si}}^{\text{el}}}{\hbar^2}} \\ 1 \end{pmatrix} \right\rangle = 0. \quad (6)$$

Здесь внешние угловые скобки обозначают скалярное произведение двумерных векторов. Спектр оператора Шредингера для дырок считался аналогично.

С учетом флуктуации толщины слоев в колонках квантовых точек расчет проводился для трех случаев: 1) толщина каждого из слоев соответствует средним величинам по ансамблю, и собственные значения оператора Шредингера равны $\{E_i\}_{i=1}^m$; 2) и 3) толщина слоя соответствует максимальной (2) или минимальной (3), и спектр значений — $\{E_i^{\text{max}}\}_{i=1}^m$ или $\{E_i^{\text{min}}\}_{i=1}^m$. Таким образом, мы получили уширение уровней энергии, связанное с флуктуациями толщины в колонках КТ.

Тепловое уширение уровней происходит вследствие экситон-фононного взаимодействия [7] и задается формулой

$$\Gamma_T = \Gamma_{\text{ph}} \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_{\text{LO}}}{kT}\right) - 1 \right]^{-1}. \quad (7)$$

Здесь $\hbar\omega_{\text{LO}}$ — энергия ЛО-фона, Γ_{ph} — постоянная экситон-фононного взаимодействия.

Учитывая перечисленные факторы — перенос носителя в яме и туннелирование его через барьер, взаимодействие с фононами и флуктуацию толщины слоев $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ и $\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ в колонках, мы получаем уширение энергетического уровня в виде

$$\Gamma = \Gamma_{\text{ph}} \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_{\text{LO}}}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1} + |E_i^{\text{max}} - E_i^{\text{min}}|. \quad (8)$$

Таким образом, любое собственное значение энергии расплывается в полосу, плотность состояний внутри которой задана по Гауссу. В результате перекрытия соседних по энергии полос образуется минizona. Ширина

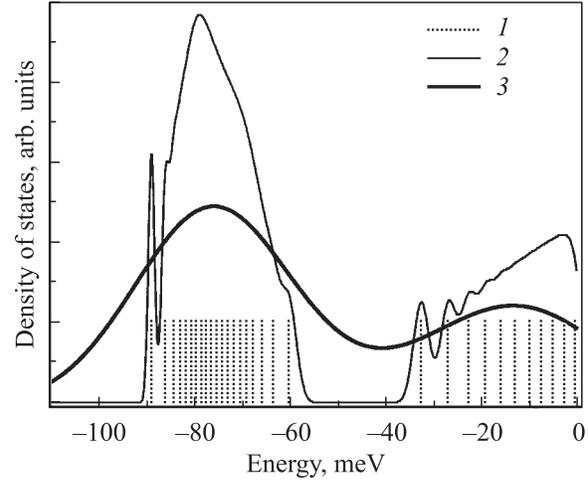


Рис. 2. Рассчитанные спектры оператора Шредингера для электронов: 1 — при отсутствии флуктуаций толщины слоев, 2 — с учетом флуктуаций толщины слоев, 3 — с учетом флуктуаций толщины слоев и экситон-фононного взаимодействия. Параметры расчета указаны в тексте.

минизоны на данном этапе расчетов определялась без учета длины когерентности экситонов в сверхрешетке. После построения спектров операторов рассчитывался спектр ФЛ, считая, что заполнение уровней описывается распределением Ферми.

Проведенный численный анализ спектр оператора Шредингера для электронов и дырок в квазипериодической структуре $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Ge}_y\text{Si}_{1-y}$ ($x = 0.8$, $y = 0.1$) с числом периодов $N = 20$ показал, что в структуре образуется система близко лежащих уровней для электронов в зоне проводимости (спектр 1 на рис. 2). Приведенный энергетический спектр рассчитан для эффективной массы плотности состояний в зоне проводимости и нулевых внешних барьеров. Соответствие экспериментального и теоретического значений $E_a = (U_{\text{el}} - E_i)$ для исследованных структур достигалось при глубине квантовой ямы для электронов $U_{\text{el}} = 113$ мэВ. Вычисление глубины квантовой ямы для дырок приводило к результату $U_h = 450$ мэВ. Учет флуктуаций толщины слоев в колонках КТ проводился исходя из экспериментальных данных ПЭМ высокого разрешения, а именно: толщины слоев $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}$ растет в направлении z от 1.7 нм ($N = 1$) до 2.9 нм ($N = 20$) при $\bar{B} = 2.3$ нм. При этом толщина W слоев $\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ монотонно убывает от первого слоя к двадцатому от 65 до 3.9 нм при $\bar{W} = 5.2$ нм. Спектр оператора Шредингера для электронов, уширенный за счет флуктуаций толщин слоев в структуре, изображен на рис. 2 кривой 2. Заметим, что при учете указанных флуктуаций толщин волновые функции дырок остаются локализованными в слоях КТ, и в спектре плотности состояний дырочная минizona не формируется. Экситон-фононное взаимодействие, активированное температурой, приводит к дополнительному уширению спектра плотности состояний. Результирующий спектр

изображен на рис. 2 кривой 3. Из рисунка видно, что в структуре образуется как минимум одна минизона для электронов с характерной шириной при комнатной температуре в несколько десятков мэВ (от 15 до 65 мэВ в зависимости от параметров сверхрешетки).

3. Сравнение с экспериментом

Итогом теоретических расчетов являлось построение спектра оптических переходов, т.е. спектра ФЛ. В нашей модели это отождествлялось с нахождением вероятности рекомбинации электронов из минизоны с локализованными состояниями дырок. При этом учитывалось, что вклад в излучательную рекомбинацию дает не одна колонка $Ge_xSi_{1-x}/Ge_ySi_{1-y}$, а ансамбль колонок с разным набором толщин в пределах 20%. На рис. 3 изображены теоретический (кривая 1) и экспериментальный (кривая 2) спектры ФЛ. Заметим, что в экспериментальном спектре ФЛ помимо полосы излучения экситонов в колонках КТ (QDSL) присутствует коротковолновая полоса при 1.15 мкм (Si^{TO}), связанная с рекомбинацией в объемном кремнии с участием ТО-фонона. Для полосы QDSL, максимум которой в данном случае расположен при 1.45 мкм, следует отметить хорошее согласие теории и эксперимента.

В ходе численных экспериментов была построена зависимость интеграла перекрытия волновых функций электронов минизоны и волновых функций основного дырочного состояния от числа периодов сверхрешетки. Интеграл перекрытия $I_{el-h}(N)$ задавался выражением

$$I_{el-h}(N) = \sum_{i,j=1}^N \left| \int_0^L \psi_i^{el}(z) \bar{\psi}_j^h(z) dz \right|. \quad (9)$$

Здесь ψ_i^{el} , ψ_j^h — электронная и дырочная волновые функции соответственно. По индексам i и j ведется

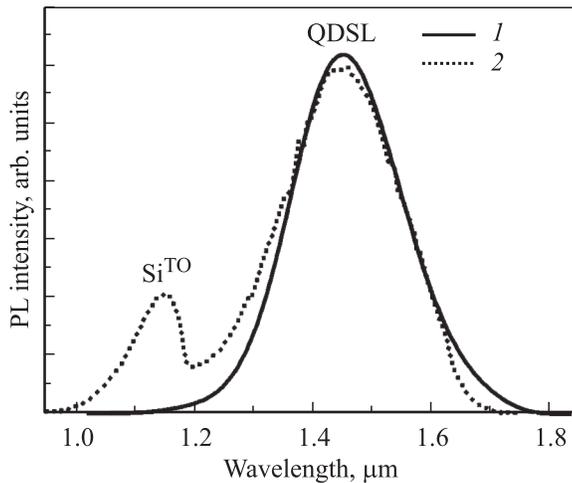


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции 20-слойной сверхрешетки с квантовыми точками при комнатной температуре: 1 — расчетный, 2 — экспериментальный.

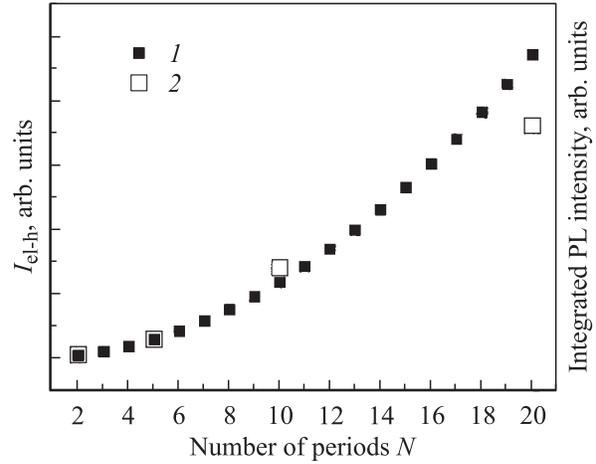


Рис. 4. Теоретическая зависимость интеграла перекрытия электронных и дырочных волновых функций I_{el-h} от количества периодов N (1) и сравнение с экспериментальными данными для интегральной интенсивности полосы фотолюминесценции QDSL, измеренными при комнатной температуре (2).

двойное суммирование для основных состояний носителей в сверхрешетке. Оказалось, что функция $I_{el-h}(N)$, изображенная на рис. 4, с большой степенью точности описывается квадратической зависимостью.

Экспериментально измеренная зависимость интегральной интенсивности полосы ФЛ QDSL от числа периодов сверхрешетки также не следует аддитивному правилу и близка к рассчитанному квадратичному закону (символы 2 на рис. 4). Сверхлинейное поведение ФЛ исследованных сверхрешеток указывает на изменение типа гетероперехода в вертикально совмещенных Ge–КТ со второго (II) типа, характерного для одиночных слоев Ge–КТ, на квазипервый тип гетероперехода вследствие формирования электронной минизоны.

4. Заключение

Проведен расчет зонной структуры сверхрешеток $Ge_{0.8}Si_{0.2}/Ge_{0.1}Si_{0.9}$ с вертикально совмещенными квантовыми точками и их спектров фотолюминесценции с учетом туннелирования, экситон-фононного взаимодействия и флуктуаций высоты квантовых точек $Ge_{0.8}Si_{0.2}$ и толщины слоев $Ge_{0.1}Si_{0.9}$. Сравнение результатов расчета с экспериментальными данными по фотолюминесценции таких же структур показало хорошее соответствие. В основе зависимостей, полученных экспериментально и теоретически, лежит модель электронной минизоны, приводящей энергетическую схему структуры $Ge_xSi_{1-x}/Ge_ySi_{1-y}$ к квазипервому типу гетеропереходов. В этом случае электроны и дырки находятся в разных областях, но из-за высокой вероятности туннелирования электронов перекрытие их волновых функций может быть весьма значительно.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 05-0217780), SANDiE Network of Excellence и программы „Низкоразмерные квантовые структуры“.

Список литературы

- [1] N.D. Zakharov, V.G. Talalaev, P. Werner, A.A. Tonkikh, G.E. Cirlin. *Appl. Phys. Lett.*, **83** (15), 3084 (2003).
- [2] V.G. Talalaev, G.E. Cirlin, A.A. Tonkikh, N.D. Zakharov, P. Werner. *Phys. Status Solidi (a)*, **198** (1), R4 (2003).
- [3] А.В. Двуреченский, А.И. Якимов. *ФТП*, **35** (9), 1143 (2001).
- [4] V.G. Talalaev, J.W. Tomm, N.D. Zakharov, P. Werner, B.V. Novikov, A.A. Tonkikh. *Appl. Phys. Lett.*, **85** (2), 284 (2004).
- [5] M.M. Reiger, P. Vogl. *Phys. Rev. B*, **48** (19), 14276, (1993).
- [6] O.L. Lasarenkova, A.A. Balandin. *J. Appl. Phys.*, **89** (10), 5509 (2001).
- [7] M. Sugawara, T. Fujii, S. Yamazaki, K. Nakajima. *Phys. Rev. B*, **42**, 9587 (1990).

Редактор Т.А. Полянская

Band structure and photoluminescence spectrum of $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}/\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ quantum dots superlattice

N.V. Sibirev^{*}, *V.G. Talalaev*^{+^}, *A.A. Tonkikh*^{*,^,°},
G.E. Cirlin^{*,^,°}, *V.G. Dubrovskii*[°], *N.D. Zakharov*[^],
P. Werner[^]

^{*} Institute of Analytical Industry,
Russian Academy of Sciences,
190103 St. Petersburg, Russia

⁺ V.A. Fok Institute, St. Petersburg State University,
198504 Petrodvorets, Russia

[^] Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik,
06120 Halle (Saale), Deutschland

[°] Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Theoretical analysis of the band diagram of multilayer $\text{Ge}_{0.8}\text{Si}_{0.2}/\text{Ge}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ heterostructures with quantum dots is carried out. It is shown that due to the layer thickness fluctuations and the excitation-phonon interaction, electron states form miniband. Holes wave functions are localized in the quantum dots. Optical transition spectrum of 20-layer structure, calculated for a case of the room temperature, is in a good agreement with the experimentally observed photoluminescence spectrum. A miniband existence in the superlattice is confirmed by an observation of the square law dependence of photoluminescence intensity versus the number of the structure periods, which is demonstrated both theoretically and experimentally.