

Продольная фотопроводимость многослойных Ge/Si-структур с квантовыми точками Ge

© А.Б. Талочкин[¶], И.Б. Чистохин, В.А. Марков

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук,
630090 Новосибирск, Россия

(Получена 26 декабря 2008 г. Принята к печати 14 января 2009 г.)

Исследованы спектры продольной фотопроводимости многослойных Ge/Si-структур с квантовыми точками Ge, полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Наблюдался фотоотклик в диапазоне энергий 1.1–0.3 эВ при $T = 78$ К, связанный с оптическими переходами между дырочными уровнями квантовых точек и электронными состояниями Si. Показано, что основной вклад в латеральную фотопроводимость дают электронные состояния, локализованные в области изгиба зон Si вблизи Ge/Si границы раздела. Применение модели квантового ящика для описания дырочных уровней квантовых точек позволило понять происхождение пиков, наблюдавшихся в спектрах фотопроводимости. Построена подробная энергетическая диаграмма дырочных уровней квантовых точек и оптических переходов в Ge/Si-структурах с напряженными квантовыми точками Ge.

PACS: 73.21.La, 73.63.Kv, 73.50.Pz, 78.67.Hc

1. Введение

Значительный интерес в последние 10 лет вызывают исследования оптических свойств квантовых точек (КТ) Ge, полученных в Si с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Дискретный спектр электронно-дырочных состояний такой системы и совместимость с современной Si технологией определяют перспективность использования таких структур для приборного применения [1–3]. В частности, в результате сильной локализации дырочных состояний в Ge КТ оптические переходы, запрещенные обычно, становятся разрешенными. В результате появляется значительное поглощение в области ниже края поглощения Ge. Это явление может быть использовано для создания нового поколения ИК фотоприемников, чувствительных от ближнего до дальнего ИК диапазона [1,2].

В работах [4,5] были исследованы оптические переходы между дырочными уровнями КТ Ge в диапазоне 100–400 мэВ. Они проявляются в легированных структурах *p*-типа с опустошенными дырочными уровнями. В специально нелегированных структурах, как правило, *n*-типа, дырочные состояния КТ Ge заполнены, и возможны лишь межзонные оптические переходы. Такого типа излучательные переходы, расположенные вблизи края поглощения Ge, широко исследовались с использованием фотолюминесценции [6–8]. Однако, в силу особенностей данного метода, он не дает информации о полном спектре электронно-дырочных состояний системы. В работах [9–12] сделана попытка преодолеть это ограничение с помощью использования метода фотопроводимости (ФП). В поперечных диодных структурах с КТ наблюдались некоторые из возможных межзонных оптических переходов в диапазоне 0.9–0.4 эВ [9,10].

[¶] E-mail: tal@thermo.isp.nsc.ru

В спектрах продольной ФП многослойных структур с КТ Ge:Si проявлялась широкая полоса фотоотклика в той же области спектра [11,12]. В результате полного понимания спектра электронно-дырочных состояний Si/Ge-структур с КТ Ge и межзонных оптических переходов, которые могут индуцировать фотоотклик, не достигнуто.

В настоящей работе исследованы спектры продольной ФП многослойных Ge/Si-структур с КТ Ge, полученными с помощью МЛЭ. В отличие от предыдущих работ [11,12] слои Ge с КТ выращивались при низкой температуре ($T_s = 250^\circ\text{C}$) для обеспечения однородного (псевдоморфного) состояния массива КТ Ge. В спектрах ФП наблюдалась серия пиков в диапазоне 1.1–0.3 эВ, связанных с оптическими переходами между дырочными уровнями КТ и электронными состояниями спектра Si. Применение модели „квантового ящика“ позволило построить подробную схему электронно-дырочных уровней и оптических переходов Ge/Si-структуры с напряженными КТ Ge.

2. Методика эксперимента

Исследуемые многослойные Ge/Si-структуры были получены с помощью МЛЭ на подложках Si(100) *n*-типа, легированного Sb, с сопротивлением 7.5 Ом·см. На подложке сначала выращивался буферный слой Si толщиной 100 нм при температуре 700°C. Далее, КТ Ge эффективной толщины 1.2 нм выращивались при температуре $T_s = 250^\circ\text{C}$ со скоростью осаждения 0.5 нм/мин. Этот слой закрывался Si толщиной 2 нм при той же температуре подложки. После этого выращивался слой Si спейсера толщиной 16 нм при $T_s = 450^\circ\text{C}$. Период структуры, состоящий из слоя КТ Ge и Si спейсера толщиной 18 нм, повторялся 17 раз. Другие особенности получения КТ Ge в процессе низкотемпературной МЛЭ опубликованы в работах [13,14]. Схема

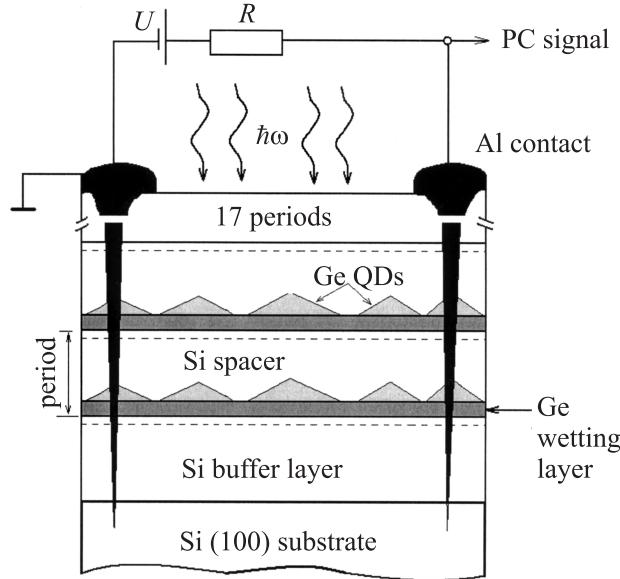


Рис. 1. Схема многослойной Si/Ge-структуры с КТ Ge для измерения спектров продольной ФП.

многослойной структуры с КТ Ge показана на рис. 1. Омические контакты получались с помощью напыления Al толщиной 1 мкм с последующим отжигом в атмосфере Ar при $T = 450^\circ\text{C}$ в течение 20 мин. Расстояние между ними на поверхности образца составляло 3 мм.

Исследование спектральных зависимостей фотопроводимости структур проводилось в диапазоне 1.2–0.3 эВ при $T = 78\text{ K}$ с использованием решеточного монохроматора и глобара в качестве источника излучения света. Модулированное излучение света частотой 12.5 Гц после прохождения через монохроматор фокусировалось на исследуемую структуру. Спектральное разрешение составляло около 5 мэВ. Для измерения фотосигнала использовался селективный усилитель с синхронным детектированием. Измеренные спектры ФП нормировались на спектр глобара, записанный с помощью калиброванного радиометра.

Механические напряжения в КТ после роста МЛЭ и после формирования контактов контролировались с помощью комбинационного рассеяния света (КРС) на оптических фононах [15]. Анализ спектров КРС показал, что в выращенных структурах большинство островков Ge псевдоморфны к Si-матрице, и лишь небольшая их часть (не более 15–20%) подвержены неоднородной релаксации механических напряжений согласно оценкам, полученным из интенсивностей наблюдаемых фононных линий [15,16]. Отжиг структур для формирования электрических контактов приводил к частично му (на 20%) уменьшению напряжений из-за образования тонкого слоя твердого раствора (0.4–0.6 нм) на границах Si/Ge. Однако степень их однородности в массиве островков Ge существенно не изменялась.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Продольная фотопроводимость многослойных Ge/Si структур с квантовыми точками Ge

На рис. 2 приведена спектральная зависимость продольной ФП многослойной Ge/Si-структуры с КТ Ge, измеренная при $T = 78\text{ K}$ и внешнем электрическом смещении $U = 5\text{ V}$. Отношение сигнал/шум было не менее 30 в диапазоне энергий света 1.0–0.5 эВ. Уровень шума показан на рис. 2 вертикальными отрезками. Для сравнения также приведены штриховыми линиями энергии, соответствующие краю поглощения объемных Ge и Si. Как видно из рис. 2, наблюдаемая зависимость спектра ФП содержит компоненту, плавно изменяющуюся с энергией света, и отдельные пики, отмеченные стрелками. Фотоотклик в диапазоне 0.7–0.4 эВ ниже края поглощения Ge (0.73 эВ) является специфической особенностью структур с КТ. Это открывает возможности для приборного применения рассматриваемых структур и позволяет исследовать спектр электронно-дырочных состояний системы.

Рассмотрим наблюдаемую спектральную зависимость ФП, используя известную энергетическую схему Ge/Si-структуры с КТ Ge [6–8], показанную на рис. 3. Разрыв валентных зон между псевдоморфным Ge и Si, согласно теоретическим расчетам [17], составляет $\Delta E_V = 0.84\text{ eV}$. При полной релаксации напряжений это значение уменьшается на 0.3 эВ. В нашем случае частично срелаксированных напряжений в КТ $\Delta E_V = 0.78\text{ eV}$. Дырочные уровни пространственного квантования КТ Ge показаны на рис. 3 штриховыми и точечными линиями. В области изгиба зоны проводимости Si вблизи границы с Ge возникает электронный уро-

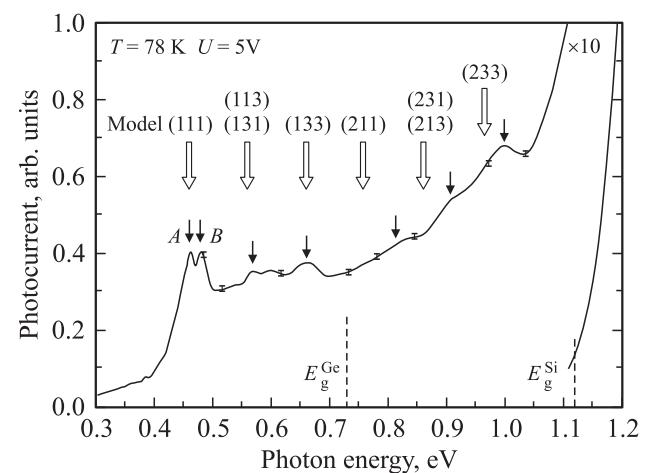


Рис. 2. Спектральная зависимость продольной фотопроводимости Si/Ge-структуры с КТ Ge. Малыми стрелками обозначены наблюдавшиеся положения пиков. Большими стрелками показаны энергии оптических переходов, вычисленные в модели „квантового ящика“.

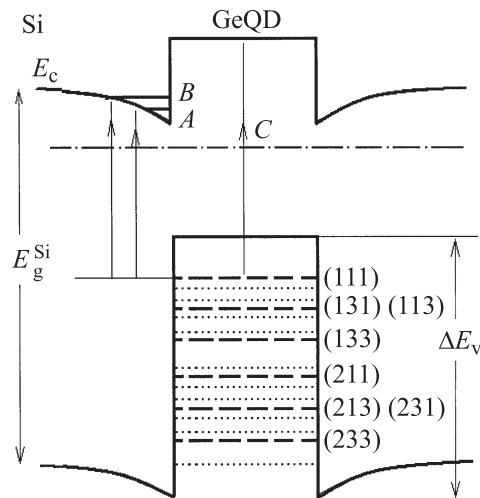


Рис. 3. Энергетическая диаграмма Si/Ge-структуры с КТ Ge. Штриховыми и точечными линиями показаны положения дырочных уровней КТ. Примерное положение уровня Ферми показано пунктирной линией.

вень пространственного квантования, который наблюдался ранее в экспериментах [6–8]. В нашем случае это состояние имеет дублетную структуру, которая показана на рис. 3 двумя сплошными линиями *A* и *B*. Возможная причина этой особенности будет рассмотрена далее.

Для Ge/Si-структур специально нелегированных в процессе МЛЭ роста, как правило, *n*-типа дырочные состояния КТ заполнены носителями, а электронные уровни Si являются пустыми. Примерное положение уровня Ферми показано на рис. 3 пунктирной линией. В результате возможны оптические переходы между дырочными уровнями КТ и электронными состояниями Si: как локализованными (*A* и *B*), так и в непрерывном спектре зоны проводимости Si (выше E_c , рис. 3).

Рассмотрим происхождение наблюдаемой дублетной структуры электронного уровня в Si. Нижнее состояние зоны проводимости Si (Δ -состояние) является шестикратно вырожденным (междолинное вырождение). Под действием одноосного напряжения это вырождение частично снимается с образованием двух уровней [17]. Расщепление их энергий определяется выражением $\Delta E = (2/3)\Xi(\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{xx})$, где Ξ — деформационный потенциал Δ -состояния, ε_{zz} и ε_{xx} — компоненты тензора деформации [17]. Из наблюдаемой величины расщепления $\Delta E = 20$ мэВ (рис. 2, *A* и *B*), учитывая, что $\Xi = 8.6$ эВ [17] и ε_{zz} и ε_{xx} имеют близкие значения и противоположные знаки, можно найти среднее значение деформации в области изгиба зон Si $\varepsilon_{zz} = 0.002$. Это значение хорошо согласуется с результатами численных расчетов [18,19].

Два интенсивных низкоэнергетичных пика, наблюдавшиеся в спектре ФП (рис. 2, *A* и *B*), связаны с переходами между основным дырочным состоянием, обозначенным на рис. 3 как (111), и электронными уровнями, локализо-

ванными в области изгиба зон Si. Эти переходы показаны на рис. 3 вертикальными стрелками. Их вклад в продольную проводимость может возникнуть при условии образования двумерного проводящего состояния вдоль всего слоя КТ (от одного контакта до другого). Наиболее вероятно, что такого типа состояние расположено в разделительном слое Si, как показано на рис. 1 штриховыми линиями. Поскольку положение уровней *A* и *B* зависит от различных структурных параметров, для образования такого проводящего состояния необходима достаточно высокая однородность массива КТ. Для исследуемых структур это требование, по всей вероятности, выполняется.

Кроме ФП через уровни *A* и *B*, возникает компонента, связанная с переходами в непрерывный электронный спектр Si (выше уровня E_v рис. 3). Она имеет плавную зависимость от энергии света типа $\sqrt{E - E_c}$, определяемую плотностью состояний в Δ -минимуме Si. Из спектра, приведенного на рис. 2, можно определить, что это вклад в ФП начинается с энергии ~ 0.5 эВ и характеризуется изломом, означающим наложение двух разных механизмов ФП. На фоне этой плавно изменяющейся компоненты проявляются пики (стрелки на рис. 2), связанные с переходами между более глубокими дырочными уровнями КТ и состояниями *A* и *B* Si. При этом дублетная структура проявляется только для перехода 0.57 эВ, ближайшего к основному ((111) \rightarrow *A*), а для остальных она маскируется из-за уширения дырочных уровней в массиве КТ.

Таким образом, в наблюдаемой спектральной зависимости фотопроводимости проявляются оптические переходы, связанные с дырочными состояниями, присущими отдельной квантовой точке Ge. Это обусловлено, по нашему мнению, достаточно высокой однородностью массивов КТ в наших структурах. В случае высокой неоднородности, основная причина которой упоминалась выше, электронные состояния Si *A* и *B* не могут образовывать рассмотренный канал проводимости, а остальные линии оптических переходов (выше уровня E_v , рис. 3) будут уширены в почти непрерывный спектр. Такого типа спектры латеральной ФП, вероятно, наблюдались в Ge/Si-структурах, полученных методом МЛЭ при более высокой температуре роста КТ ($T_s = 350$ – 500°C) [11,12], при которой происходит неоднородная релаксация напряжений в массиве КТ [14,15].

3.2. Электронно-дырочный спектр и оптические переходы Ge/Si-структуры с квантовыми точками Ge

Островки Ge, получаемые с помощью самосогласованного МЛЭ роста при низкой температуре, так называемые *hut*-кластеры, имеют пирамидальную форму [3]. Высота этих пирамид ($h \approx 1$ нм), расположенных на смачивающем слое толщиной примерно 4ML ≈ 0.7 нм,

на порядок меньше размера основания (~ 10 нм). Поэтому данная форма КТ нередко аппроксимируется эффективным прямоугольным параллелепипедом. Это так называемая модель „квантового ящика“, которая использовалась ранее для оценки энергии квантования основного дырочного уровня [6], энергии между некоторыми дырочными состояниями [5]. Несмотря на простоту этой модели, она дает неплохое согласие с экспериментом. Далее мы применим эту модель для описания всего спектра дырочных состояний КТ, наблюдавшихся в спектре ФП.

Рассмотрим прямоугольный квантовый ящик с бесконечными стенками и размерами: h — высота в направлении роста (z) и a — размер в плоскости (xy). В этой модели сдвиг энергии частицы с эффективной массой m^* , появляющийся из-за квантования ее спектра, определяется выражением [6]

$$\Delta E_{(n,m,k)} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m} \left(\frac{n^2}{h^2} + \frac{m^2}{a^2} + \frac{k^2}{a^2} \right), \quad (1)$$

где $n, m, k = 1, 2, 3 \dots$ квантовые числа для z, x и y координат соответственно. Из наблюдаемой энергии перехода (111) — A (0.46 эВ, рис. 2, 3), зная $E_g^{\text{Si}} = 1.12$ эВ и $\Delta E_v = 0.73$ эВ и пренебрегая расстоянием от уровня A до дна потенциальной ямы, можно найти энергию квантования основного дырочного состояния $\Delta E_{(111)} \approx 120$ мэВ (рис. 3).

Используя значение эффективной массы тяжелых дырок Ge $m^* = 0.3m_0$ (m_0 — масса свободного электрона), из уравнения (1) можно определить, что наблюдаемый сдвиг соответствует $h = 3.5$ нм и $a = 10$ нм. Полученные таким образом параметры h и a неплохо соответствуют реальным размерам КТ Ge. Так, высота КТ Ge, так называемых hut-кластеров, полученных при низкой температуре роста ($T = 250^\circ\text{C}$), с учетом толщины смачивающего слоя (0.7 нм) составляет примерно 1.7 нм, а размер островков в плоскости роста равен 10 нм [15]. Заметим, что перемешивание границ раздела, наблюдавшееся в нашем случае, может значительно (на 0.8–1.2 нм) увеличивать эффективную высоту островков, что объясняет расхождение в реальной и определенной высоте КТ.

С помощью уравнения (1), используя определенные значения размеров КТ, мы нашли энергии дырочных состояний, соответствующих различным наборам квантовых чисел (n, m, k). Положения этих уровней показаны на рис. 3 штриховыми и точечными линиями. Исходя из симметрии модели КТ можно видеть, что огибающие волновых функций дырочных состояний являются симметричными по отношению к повороту вокруг оси z на 180° на нечетных m и k , а для четных они антисимметричны (т. е. меняют знак при повороте). Вероятность оптического перехода пропорциональна интегралу перекрытия огибающих волновых функций состояний [20] соответствующих состояний. В нашем случае это электронное состояние Si A и один из дырочных уровней. Из пространственного положения

структур (рис. 1) следует, что огибающая волновой функции состояния A не зависит от координат в плоскости роста (x, y). Отсюда интеграл перекрытия этого состояния с антисимметричными огибающими дырочной волновой функцией обращается в нуль, и соответствующие оптические переходы запрещены. Следовательно, дырочные состояния с четными n_2 и n_3 , показанные на рис. 3 точечными линиями, не могут наблюдаться в спектрах ФП. Для уровней с нечетными m и k , которые показаны на рис. 3 штриховыми линиями, межзонные переходы разрешены. Вычисленные энергии переходов между ними и уровнем A обозначены на рис. 2 большими стрелками с указанием набора квантовых чисел соответствующего состояния. Видно, что значения по энергии для трех нижних переходов хорошо согласуются с экспериментом ($n = 1$). Для возбужденных дырочных состояний ($n = 2$) наблюдаются некоторые расхождения (рис. 2). Это может быть связано с тем, что использованная модель является слишком грубой аппроксимацией реальной формы КТ для описания таких возбужденных дырочных состояний. По сравнению с волновыми функциями основного состояния ($n = 1$), поверхности постоянной амплитуды которых могут быть вписаны в эффективный параллелепипед („квантовый ящик“), волновые функции возбужденных дырочных состояний ($n = 2$) имеют более сложный вид и значительно сильнее зависят от реальной формы КТ [20]. Для них этот параллелепипед не является поверхностью постоянной амплитуды волновой функции. В результате появляется разница в энергиях, вычисленных и наблюдавшихся в эксперименте (рис. 2). Тем не менее, природа и полное число пиков, наблюдавшихся в спектре ФП, правильно определяется использованной моделью.

Таким образом, использованная простейшая модель обеспечивает качественное согласие с экспериментом, что позволяет понять природу особенностей, наблюдавшихся в спектре ФП, а также построить подробную схему дырочных уровней Ge/Si-структуры с КТ Ge и оптических переходов, определяющих ее фотоотклик.

В заключение отметим, что пик ФП 0.64 эВ (рис. 2), соответствующий переходу (133) — A , может перекрываться с пиком, вызванным переходом из (111) уровня КТ в L -состояние зоны проводимости Ge (переход C , рис. 3). Тогда можно определить разрыв уровней зон проводимости Si и напряженного Ge $\Delta E_c = 0.2$ эВ. Это значение хорошо согласуется с теорией [17]. Кроме того, интенсивный пик ФП вблизи 1 эВ (рис. 2) может определяться не только переходом (233) — A , а также переходом между основным дырочным состоянием смачивающего слоя Ge и уровнем A . Этот слой между КТ Ge занимает примерно половину площади при плотности КТ $(2-3) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, как в нашем случае [14]. Согласно использованной модели, сдвиг энергии состояния тяжелых дырок смачивающего слоя при его толщине 1.5 нм составляет 0.55 эВ. Это значение вполне согласуется с наблюдаемым положением пика.

4. Заключение

В работе исследована спектральная зависимость латеральной фотопроводимости многослойной Ge/Si-структур с квантовыми точками Ge, полученной методом низкотемпературной МЛЭ. Показано, что наблюдаемый фотоотклик Si/Ge-структур с КТ связан с оптическими переходами между дырочными уровнями КТ и электронными состояниями Si. Основной вклад с продольную ФП дают электронные уровни, локализованные в области изгиба зон Si. Определено значение энергии деформационного расщепления. Применение модели „квантового ящика“ позволило объяснить происхождение пиков, наблюдавшихся в спектре ФП. Построена детальная энергетическая схема дырочных уровней и оптических переходов Ge/Si-структуры с КТ.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 07-02-00299).

Список литературы

- [1] K. Brunner. Rep. Progr. Phys., **65**, 27 (2002).
- [2] J.-M. Baribeau, X. Wu, N.L. Rowell, D.J. Lockwood. J. Phys.: Condens. Matter. **18**, R139 (2006).
- [3] B. Voiglender. Surf. Sci. Rep., **43**, 127 (2001).
- [4] C. Miesner, O. Rothig, K. Brunner, G. Absteriter. Appl. Phys. Lett., **76**, 1027 (2000).
- [5] J.L. Liu, W.G. Wu, A. Balandin, G.L. Jin, K.L. Wang. Appl. Phys. Lett., **74**, 185 (1999).
- [6] U. Denker, M. Stoffel, O.G. Schmidt. Appl. Phys. Lett., **82**, 454 (2003).
- [7] M.W. Dashiell, U. Denker, G. Muller, G. Costantini, C. Manzano, K. Kem, O.G. Schmidt. Appl. Phys. Lett., **80**, 1279 (2002).
- [8] M.V. Shaleev, A.V. Novikov, A.N. Yablonskiy, Y.N. Drozdov, D.N. Lobanov, Z.F. Krasilnik. Appl. Phys. Lett., **91**, 021 916 (2007).
- [9] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, Yu.Yu. Proskuryakov, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov, S.A. Teys, A.K. Gutakovskii. Appl. Phys. Lett., **75**, 1413 (1999).
- [10] S. Tong, J.L. Liu, J. Wan, Kang L. Wang. Appl. Phys. Lett., **80**, 1189 (2002).
- [11] M.Ya. Valakh, V.M. Dzhagan, V.O. Yukhymchuk, O.V. Vakulenko, S.V. Kondratenko, A.S. Nikolenko. Semicond. Sci. Technol., **22**, 326 (2007).
- [12] S.V. Kondratenko, A.S. Nikolenko, O.V. Vakulenko, M.Ya. Valakh, V.O. Yukhymchuk, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov. Nanotechnology, **19**, 145 703 (2008).
- [13] V.A. Markov, H.H. Cheng, C.-T. Chia, A.I. Nikiforov, V.A. Cherepanov, O.P. Pchelyakov, K.S. Zhuravlev, A.B. Talochkin, E. Mc Glynn, M.O. Henry. Thin Sol. Films, **369**, 79 (2000).
- [14] A.B. Talochkin, V.A. Markov, V.I. Mashanov. Appl. Phys. Lett., **91**, 093 127 (2007).
- [15] А.Б. Талочкин, В.А. Марков, В.И. Машанов. Письма ЖЭТФ, **86**, 397 (2007).
- [16] A.B. Talochkin, V.A. Markov. Nanotechnology, **19**, 275 402 (2008).
- [17] C.G. Van de Walle, M.R. Martin. Phys. Rev. B, **34**, 5621 (1986).
- [18] A.B. Ненашев, А.В. Двуреченский. ЖЭТФ, **48**, 570 (2000).
- [19] Y. Kikuchi, H. Sugi, K. Chintani. J. Appl. Phys., **89**, 1191 (2001).
- [20] M. Grundman, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **52**, 11 969 (1995).

Редактор Л.В. Беляков

Lateral photoconductivity of multilayer Ge/Si structures with Ge quantum dots

A.B. Talochkin, I.B. Chistokhin, V.A. Markov

Institute of Semiconductor Physics
Russian Academy of Sciences,
Siberian Branch,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract Lateral photoconductivity of multilayer Ge/Si structures with Ge quantum dots (QDs) fabricated by MBE was investigated. In the range of 1.2–0.3 eV at $T = 78$ K photoresponse related to the optical transitions between QDs hole levels and Si electron states was studied. It is shown that the main contribution into the lateral photoconductivity is made by the electron states localized in the Si band bending region. Application of a „quantum box“ model for the description of QD hole levels allows us to clear up the origin of peaks observed in the photoconductivity spectrum. The detailed energy scheme of Ge/Si structures with Ge QDs is built up. The details of proposed energy scheme of Ge/Si structures with Ge QDs are presented.