

Фотопроводимость многослойных структур Si/Ge с квантовыми точками Ge, псевдоморфными к Si-матрице

© А.Б. Талочкин[¶], И.Б. Чистохин

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

(Получена 30 ноября 2010 г. Принята к печати 13 декабря 2010 г.)

Исследованы спектры продольной фотопроводимости многослойных структур Si/Ge с квантовыми точками Ge, полученными псевдоморфно к Si-матрице. Наблюдались линии оптических переходов между дырочными уровнями квантовых точек и электронными состояниями Si. Это позволило построить подробную энергетическую диаграмму электронно-дырочных уровней структуры. Показано, что дырочные уровни псевдоморфных квантовых точек Ge хорошо описываются с помощью простейшей модели „квантового ящика“ с использованием реальных размеров островков Ge. Установлена возможность управления положением длинноволновой границы fotocувствительности с помощью изменения параметров роста структур Si/Ge с квантовыми точками Ge.

1. Введение

Спектр электронно-дырочных состояний квантовых точек (КТ) Ge, полученных в Si с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), исследовался в многочисленных работах за последнее десятилетие (см., например, [1–5]). Дырочный спектр КТ Ge, представляющий собой набор дискретных уровней квантования в потенциальной яме, образованной разрывом валентных зон Ge и Si, наблюдался в ряде экспериментов [6–9]. Число этих уровней и их энергетическое положение зависят от размера КТ Ge, от их напряженного состояния, а также от глубины ямы, которая определяется величиной разрыва зон [9]. Перечисленные параметры определяются условиями получения структур Si/Ge с КТ Ge в процессе МЛЭ. Так, эффективный размер КТ зависит от степени перемешивания компонентов, которое может приводить к образованию твердого раствора Ge:Si, что оказывается существенным для высоких температур роста КТ ($T_s > 400^\circ\text{C}$) [10,11]. В свою очередь, величина разрыва валентных зон зависит от напряжений в КТ [12], от состава твердого раствора [3] и может изменяться в широком диапазоне (0.84–0.3 эВ) [3]. В результате наблюдавшиеся экспериментально дырочные уровни КТ (Ge:Si) имеют различные энергии [6–9], а в большинстве экспериментов они сливаются в непрерывный спектр [1–5,7,11,13], и в этих случаях дырочные уровни, присущие отдельной КТ Ge, не проявляются. Такое поведение вызвано влиянием различных неоднородностей, главная из которых связана с релаксацией механических напряжений в массиве КТ Ge [11]. Релаксация напряжений может быть индуцирована перемешиванием Si и Ge в процессе роста [11], а также образованием дефектов [14]. Этот негативный фактор неоднородности удастся устранить в массиве КТ Ge, полученных псевдоморфно к Si-матрице при низких температурах роста КТ ($T_s \approx 250^\circ\text{C}$). В результате взаимная диффузия компонентов отсутствует, КТ Ge имеют идеально резкую

границу с Si-матрицей и большинство из них находится в одинаковом напряженном состоянии (псевдоморфном к Si-матрице) [14]. В этом случае величины напряжений КТ Ge и разрыв уровней валентных зон, известные из теоретических расчетов [12], достигают максимальных значений; в свою очередь, размеры островков Ge, так называемых *hut*-кластеров, имеют минимально возможные величины, которые измерялись с помощью сканирующей туннельной микроскопии в многочисленных экспериментах (см., например, [11,15–17]). Данные свойства массива КТ Ge, псевдоморфного к Si-матрице, обеспечивают определенность и предсказуемость его различных параметров, которые важны как для приборного использования этой структуры, так и для задач, связанных с изучением нульмерных систем. Однако спектр электронно-дырочных состояний такого массива КТ до сих пор не исследован, по-видимому, из-за сложности получения такого типа структур Si/Ge [14].

В данной работе исследованы спектры фотопроводимости (ФП) многослойных структур Si/Ge с КТ Ge, псевдоморфными к Si-матрице. Наблюдался фотоотклик, связанный с оптическими переходами между дырочными уровнями КТ и электронными состояниями зоны проводимости Si, что позволило определить энергии дырочных уровней КТ. Построена подробная схема электронно-дырочных уровней и оптических переходов структуры Si/Ge с псевдоморфными КТ Ge. Показано, что простейшая модель „квантового ящика“ хорошо описывает энергии наблюдаемых дырочных уровней, их число и форму спектра ФП.

2. Методика эксперимента

Исследуемые многослойные структуры Ge/Si были получены с помощью МЛЭ на подложках Si(100) *n*-типа проводимости, легированного Sb, с сопротивлением $7.5 \text{ Ом} \cdot \text{см}$. На подложке сначала выращивался буферный слой Si толщиной 100 нм при температуре 700°C . Далее слой КТ Ge эффективной толщиной 1.2 нм выращивался при температуре $T_s = 250^\circ\text{C}$

[¶] E-mail: tal@thermo.isp.nsc.ru

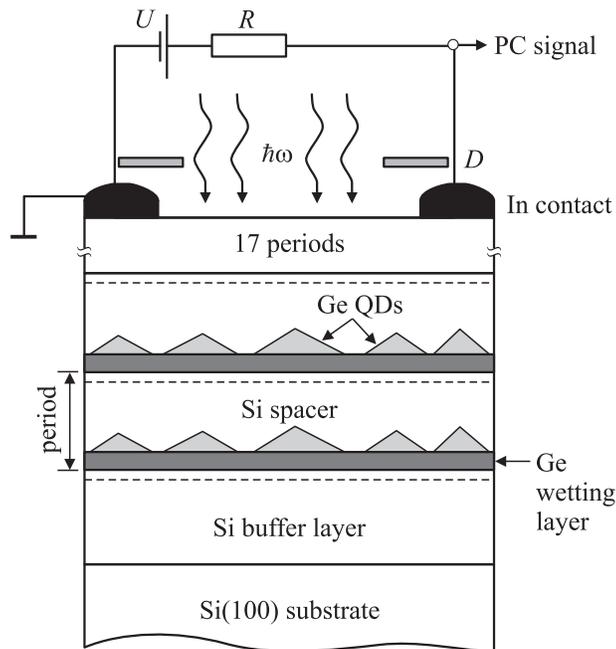


Рис. 1. Схема многослойной структуры Si/Ge с квантовыми точками (QDs) Ge для измерения спектров продольной фотопроводимости (PC).

со скоростью осаждения 0.5 нм/мин. Затем он закрывался слоем Si толщиной 2 нм при той же температуре подложки. После этого выращивался разделительный слой Si толщиной 16 нм при температуре, которая для разных образцов варьировалась в диапазоне $450 < T_s < 600^\circ\text{C}$. Период структуры, состоящий из слоев КТ Ge и Si, толщиной 18 нм, повторялся 17 раз. Другие особенности получения КТ Ge в процессе низкотемпературной МЛЭ опубликованы в работе [18]. Схема многослойной структуры с КТ Ge показана на рис. 1. Омические контакты получались с помощью нанесения In толщиной 0.1 мкм. Расстояние между ними на поверхности образца составляло ~ 3 мкм. Линейность вольт-амперных характеристик контролировалась при комнатной температуре и температуре жидкого азота. Приконтактные области образцов закрывались непрозрачной диафрагмой D, показанной на рис. 1.

Исследование спектральных зависимостей фотопроводимости структур проводилось в диапазоне энергий фотонов 0.3–1.2 эВ при температуре $T = 78$ К с использованием решетчатого монохроматора и глобара в качестве источника излучения света. Модулированное излучение света с частотой 25 Гц после прохождения через монохроматор фокусировалось на исследуемую структуру, помещенную на хладопровод в азотном оптическом криостате. Спектральное разрешение составляло ~ 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 в полученных структурах Si/Ge контролировались с помощью комбинационного рассеяния света (КРС) на оптических фоновых [11,14]. Анализ спектров КРС показал, что в образцах, для которых температура осаждения разделительных слоев Si при росте составляла $T_s \approx 450^\circ\text{C}$, большинство островков Ge псевдоморфно к Si-матрице. При этом лишь небольшая их часть (не более 10–15%) подвержена неоднородной релаксации механических напряжений, согласно оценкам, полученным из интенсивностей наблюдаемых фоновых линий [14]. Повышение температуры роста слоев Si приводит к перемешиванию компонентов, что вызывает образование твердого раствора Ge : Si. В результате увеличивается эффективный размер островков и величина напряжения в КТ уменьшается. Кроме того, локальные флуктуации состава образованного твердого раствора могут приводить к неоднородной релаксации напряжений в массиве КТ [11]. В этом случае большая часть КТ может быть отрелаксированной, а их электронно-дырочные состояния сливаются в непрерывный спектр [11]. Оказалось, что для не слишком высоких температур роста слоев Si ($T_s < 520^\circ\text{C}$) степень однородности массива КТ существенно не нарушается и интегральный спектр дырочных состояний массива идентичен спектру отдельной КТ. Здесь для сравнения мы приводим спектры ФП двух образцов — 1 и 2. Для образца 1 $T_s \approx 450^\circ\text{C}$ и массивы КТ псевдоморфны к Si-матрице. Слои Si образца 2 получены при $T_s \approx 500^\circ\text{C}$, что приводит к уменьшению напряжений в КТ на 20% и увеличению их размеров.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Фотопроводимость многослойных структур Si/Ge с квантовыми точками Ge

На рис. 2 показаны спектры ФП образцов 1 и 2, измеренные при температуре $T_s = 78$ К в диапазоне 0.3–1.2 эВ. Значение ширины запрещенной зоны Si ($E_g^{\text{Si}} = 1.12$ эВ) показано на рис. 2 вертикальной штриховой линией. Образец 1, содержащий массивы КТ Ge, псевдоморфные к Si-матрице, обнаруживает широкий пик фотоотклика в диапазоне 0.6–0.9 эВ. Видно, что его форма является результатом наложения линий трех дублетов, которые проявляются в виде слабых особенностей, отмеченных на кривой 1 (рис. 2) малыми стрелками. Низкочастотные линии каждого дублета, полученные разложением наблюдаемого спектра на 6 лоренцевских линий, показаны на рис. 2 штриховыми кривыми. Дублетное расщепление составляет $\delta \approx 30$ мэВ, а расстояние между дублетами равно $\Delta E \approx 80$ мэВ. Отметим, что наблюдаемая структура спектра ФП хорошо воспроизводится для образцов с меньшим содержанием псевдоморфных КТ Ge в массивах ($\sim 50\%$). В этих случаях основной широкий пик уже размыт в непрерывно спадающее крыло из-за неоднородной релаксации напряжений [11]. Таким образом, наличие малых пиков

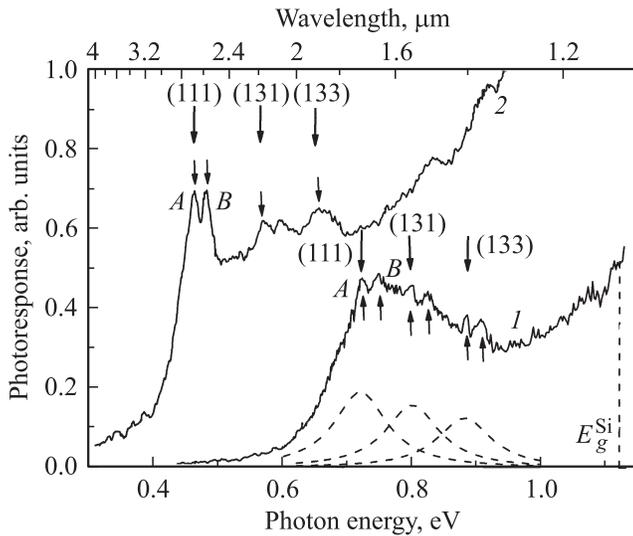


Рис. 2. Спектры фотопроводимости двух образцов многослойных структур Si/Ge с КТ Ge при 78 К. 1, 2 — образцы 1 и 2 полученные при разных условиях роста. Малыми стрелками показаны наблюдаемые положения пиков, большими — энергии оптических переходов, вычисленные из модели „квантового ящика“.

(рис. 2, кривая 1, малые стрелки) показывает, что достаточно большое количество псевдоморфных КТ Ge содержится в исследуемом массиве.

Образец 2, спектр ФП которого также приведен на рис. 2 (кривая 2), получен при более высокой температуре роста слоев Si ($T_s \approx 500^\circ\text{C}$), чем образец 1 ($T_s \approx 450^\circ\text{C}$). В этом случае значение напряжения в КТ уменьшается на 20%, а размеры КТ увеличиваются в результате взаимного перемешивания компонентов в процессе роста. Механизмы ФП и спектр этого образца подробно проанализированы нами в работах [9,19]. Показано, что дублетная структура (рис. 2, кривая 2, линии A и B) связана с электронными уровнями Si, образующимися в деформационной потенциальной яме вблизи гетерограниц Si/Ge. Их пространственное положение показано на рис. 1 штриховыми линиями. Пики спектра ФП, отмеченные на кривой 2 стрелками, обусловлены оптическими переходами между дырочными уровнями КТ и этими состояниями зоны проводимости Si. Зная разрыв валентных зон Si и КТ Ge, рассчитанный в работе [12], по наблюдаемым энергиям оптических переходов можно найти положение дырочных уровней КТ. Показано, что энергии уровней и их количество, проявляющиеся в оптических переходах, хорошо описываются с помощью простейшей модели „квантового ящика“ с использованием высоты КТ Ge в качестве подгоночного параметра. Эффективная высота островков Ge составляет $h_1 \approx 3.5$ нм [9]. Это значение примерно вдвое превышает высоту низкотемпературных *hut*-кластеров Ge с учетом толщины смачивающего слоя ($h_0 \approx 1.7$ нм). Энергии оптических переходов, рассчитанные для трех низкоэнергетических дырочных уровней КТ, показаны на

рис. 2 большими стрелками с указанием набора квантовых чисел соответствующего дырочного состояния. Видно хорошее согласие между экспериментом и расчетами, проведенными в использованной модели [9].

Из рис. 2 видно, что длинноволновая граница фоточувствительности образца 1 смещена значительно (на 0.25 эВ) в область высоких энергий относительно границы спектра образца 2, в то же время структура обоих спектров, проявляющаяся в наличии малых пиков, практически идентична.

Рассмотрим подробно параметры массива псевдоморфных КТ Ge, определяющие наблюдаемый спектр ФП (рис. 2, кривая 1). Разрыв валентных зон Si и псевдоморфного Ge составляет $\Delta E_v = 0.84$ эВ [12]. Сдвиг энергии дырочных уровней КТ из-за квантования определяется в модели „квантового ящика“ хорошо известным выражением

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

где $n, m, k = 1, 2, 3$ — квантовые числа для координат z, x и y соответственно, h и a — размеры параллелепипеда, аппроксимирующего форму островков Ge, вдоль оси роста z и в плоскости роста (x, y) соответственно, $m^* = 0.3m_0$ — эффективная масса тяжелых дырок в Ge (m_0 — масса свободного электрона). Из наблюдаемого положения низкочастотного пика спектра ФП (рис. 2, кривая 1, 0.72 эВ) можно найти энергию квантования основного дырочного уровня $\Delta E_{(111)} \approx 0.47$ эВ; для КТ образца 2 аналогичная величина составляет $\Delta E_{(111)}^b \approx 0.12$ эВ [9]. Ясно, что большое значение энергии квантования псевдоморфных КТ Ge вызывает значительный коротковолновый сдвиг спектра фотопроводимости. Найденное значение $\Delta E_{(111)}$, согласно выражению (1), соответствует высоте КТ $h \approx 1.6$ нм, а расстояние между линиями дублетов $\Delta E \approx 80$ мэВ определяет размер КТ в плоскости роста $a \approx 10$ нм. Положения уровней основного дырочного состояния ($n = 1$), вычисленные с помощью уравнения (1) при $h \approx 1.6$ нм и $a \approx 10$ нм, показаны на рис. 2 (кривая 1) большими стрелками, над которыми приведены соответствующие наборы квантовых чисел. Видно, что наблюдается хорошее согласие эксперимента с результатами вычислений в использованной модели. Кроме того, подгоночные параметры размеров КТ хорошо согласуются с реальными размерами *hut*-кластеров Ge [11,15–17]. Таким образом, модель „квантового ящика“ достаточно точно описывает спектр дырочных состояний псевдоморфных КТ Ge фактически без использования подгоночных параметров.

3.2. Спектр электронно-дырочных состояний псевдоморфных квантовых точек Ge

Проведенный несложный анализ спектров ФП позволяет построить энергетическую диаграмму оптических переходов и спектр электронно-дырочных состояний,

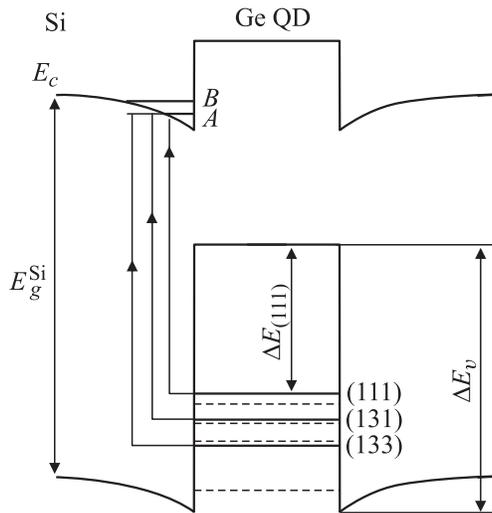


Рис. 3. Энергетическая диаграмма структуры Si/Ge с псевдоморфными квантовыми точками (QD) Ge. Сплошные и штриховые горизонтальные линии — положения дырочных уровней КТ, рассчитанные с помощью модели „квантового ящика“. Вертикальные линии — разрешенные оптические переходы. *A* и *B* — положения электронных уровней Si. E_c — зона проводимости.

определяющих фотоотклик структур Si/Ge. Эта диаграмма показана на рис. 3. Электронные уровни, возникающие в деформационной потенциальной яме Si вблизи Ge, показаны на рис. 3 линиями *A* и *B*. Они определяют дублетную структуру, наблюдаемую в спектрах ФП обоих образцов (рис. 2, кривые 1,2) [9,19]. Энергия деформационного расщепления уровней *A* и *B* составляет 30 и 20 мэВ для образцов 1 и 2 соответственно. Эта разница связана с частичной релаксацией напряжений в КТ образца 2 [9]. Разрешенные оптические переходы между дырочными уровнями псевдоморфных КТ Ge и состоянием *A* показаны на рис. 3 вертикальными стрелками. Дырочные уровни показаны на рис. 3 сплошными линиями с указанием соответствующего набора квантовых чисел, определяемых использованной моделью. Кроме них, в потенциальной яме, образованной разрывом валентных зон Si и Ge $\Delta E_v = 0.84$ эВ, расположены дырочные уровни (121), (122), (141), (144), показанные на рис. 3 штриховыми линиями. Оптические переходы между этими состояниями и электронными уровнями Si запрещены из-за симметрии огибающих волновых функций [9,19]. В результате их вклад в наблюдаемый спектр ФП значительно меньше рассмотренного выше. Дырочные состояния с большими значениями квантовых чисел ($n = 2, m, k > 4$) оказываются в непрерывном дырочном спектре Si и не образуют дискретных уровней квантования. Таким образом, построенная энергетическая диаграмма хорошо объясняет наблюдаемый спектр ФП массива КТ Ge, псевдоморфных к Si-матрице.

В заключение отметим, что отдельные линии спектра ФП, показанные на рис. 2 штриховыми кривыми, имеют достаточно большую ширину на половине высоты мак-

симула, $\delta E \approx 0.1$ эВ. В результате они, перекрываясь, образуют сплошной широкий контур и проявляются на его фоне в виде маленьких пиков. Ширина линии определяется в нашем случае разбросом КТ по высоте из-за резкой зависимости энергии уровня от высоты КТ (уравнение (1)), поскольку КТ Ge имеют одинаковое напряженное состояние и разброс напряжений отсутствует. Из формулы (1) можно найти, что определенная ширина линии на половине высоты максимума соответствует относительному разбросу КТ по высоте $(\delta h/h) \cdot 100\% \approx 10\%$. Это значение вполне согласуется с результатами статистического анализа массивов КТ Ge [20–22] и показывает достаточно высокую однородность размеров КТ в наших структурах. Кроме того, как видно из рис. 2, положение длинноволнового края фоточувствительности и форма спектра ФП определяются спектром электронно-дырочных уровней структуры, который резко зависит от размеров КТ Ge. В свою очередь, размеры КТ определяются условиями роста, в частности температурой роста слоев Si. Отсюда, варьирование параметрами роста структур Si/Ge с КТ Ge позволяет управлять электронно-дырочным спектром структуры и, следовательно, спектром ее фотоотклика.

4. Заключение

Исследованы спектры продольной фотопроводимости многослойных структур Si/Ge с КТ Ge, полученными псевдоморфно к Si-матрице. Наблюдались линии оптических переходов между дырочными уровнями КТ Ge и электронными состояниями Si. Построена подробная энергетическая диаграмма электронно-дырочных состояний структуры Si/Ge с псевдоморфными КТ Ge. Показано, что простейшая модель „квантового ящика“ хорошо описывает дырочный спектр КТ Ge с использованием реальных размеров островков Ge. Она правильно предсказывает количество дырочных уровней, которые проявляются в спектре ФП, а также объясняет форму наблюдаемого спектра ФП. Установлена возможность управления спектром электронно-дырочных состояний массива КТ Ge с помощью изменения параметров роста структуры Si/Ge.

Авторы выражают благодарность В.А. Маркову за предоставление многослойных структур Si/Ge с КТ Ge. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 09-02-00087).

Список литературы

- [1] O.G. Schmidt, K. Eberl. Phys. Rev. B, **61**, 1372 (2000).
- [2] J. Wan, G.L. Jin, Z.M. Luo, J.L. Lio, K.L. Wang. Appl. Phys. Lett., **78**, 1763 (2001).
- [3] K. Brunner. Rep. Progr. Phys., **65**, 27 (2002).
- [4] U. Denker, M. Stoffel, O.G. Schmidt. Appl. Phys. Lett., **82**, 454 (2003).
- [5] S. Tong, J.L. Liu, J. Wan, Kang L. Wang. Appl. Phys. Lett., **80**, 1189 (2002).

- [6] S.K. Zhang, H.J. Zhu, F. Lu, Z.M. Jiang, Xun Wang. *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 3340 (1998).
- [7] C. Miesner, T. Asperger, K. Brunner, G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 2704 (2000).
- [8] H. Zou, S. Huang, Y. Rao, Z. Jiang, F. Lu. *Sol. St. Commun.*, **125**, 161 (2003).
- [9] A.B. Talochkin, I.B. Chistokhin, V.A. Markov. *Nanotechnology*, **20**, 175 401 (2009).
- [10] A.V. Baranov, A.V. Fedorov, T.S. Perova, R.A. Moore, V. Yam, D. Bouchier, V. Le Thanh, K. Berwick. *Phys. Rev. B*, **73**, 075 322 (2006).
- [11] A.B. Talochkin, V.A. Markov, V.I. Mashanov. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 093 127 (2007).
- [12] C.G. Van de Walle, M.R. Martin. *Phys. Rev. B*, **34**, 5621 (1986).
- [13] 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).
- [14] A.B. Talochkin, A.G. Cherkov. *Nanotechnology*, **20**, 345 702 (2009).
- [15] B. Voigländer. *Surf. Sci. Rep.*, **43**, 127 (2001).
- [16] M.W. Dashiell, U. Denker, C. Muller, G. Costantini, C. Manzano, K. Kern, O.G. Schmidt. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 1279 (2002).
- [17] G. Costantini, A. Rastelli, C. Manzano, R. Songmuang, O.G. Schmidt, K. Kern, Y. Von Kanel. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 5673 (2004).
- [18] V.A. Markov, H.H. Cheng, Chih-ta 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).
- [19] А.Б. Талочкин, И.Б. Чистохин, В.А. Марков. *ФТП*. **43** (8), 1034 (2009).
- [20] M. Kastner, B. Voigtlander. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 2745 (1999).
- [21] Z. Jian, H. Zhu, F. Lu, J. Qin, D. Huang, X. Wang, C. Hu, Y. Chen, Z. Zhu, T. Yao. *Thin Sol. Films*, **321**, 60 (1998).
- [22] T.I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D.A.A. Ohlberg, R. Stanley Williams. *J. Appl. Phys.*, **85**, 1159 (1999).

Редактор Л.В. Шаронова

Photoconductivity of multilayer Ge/Si structures with Ge quantum dots in the pseudomorphic state to Si matrix

A.B. Talochkin, I.B. Chistokhin

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

Abstract Spectra of the lateral photoconductivity of Si/Ge structures with Ge quantum dots grown pseudomorphically to a Si matrix are studied. Lines of optical transitions between hole levels of quantum dots and electron states in Si are observed. This allows us to build up a detailed energy scheme of the Si/Ge structure electron–hole spectrum. It is shown that the hole levels of pseudomorphic Ge quantum dots are well described by the simplest model of „quantum box“ using real sizes of Ge islands. It is established that the long-wavelength cutoff of photoresponse can be manipulated by means of variation of the Si/Ge structures with Ge quantum dots growth parameters.