

Фононы в сверхрешетках Ge/Si с квантовыми точками Ge

А. Г. Милехин¹⁾, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков, С. Шульце⁺²⁾, Д. Р. Т. Цан^{+ 2)}

Институт физики полупроводников СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

⁺ Institut für Physik, Technische Universität Chemnitz, D–09107 Chemnitz, Germany

Поступила в редакцию 7 марта 2001 г.

После переработки 20 марта 2001 г.

Сверхрешетки Ge/Si с квантовыми точками Ge, полученные с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии, были исследованы методом комбинационного рассеяния света в резонансных условиях. Показано, что такие структуры обладают колебательными свойствами как двумерных, так и нуль-мерных объектов. В низкочастотной области спектра наблюдаются свернутые акустические фононы (вплоть до 15^{20} порядка), характерные для планарных сверхрешеток. Линии акустических фононов перекрываются с широкой полосой непрерывной эмиссии, обусловленной нарушением закона сохранения волновых векторов вследствие формирования квантовых точек. Анализ частот оптических фононов Ge и Ge-Si свидетельствует, что квантовые точки Ge являются псевдоморфными и перемешивание атомов Ge и Si мало. Обнаружен низкочастотный сдвиг продольных оптических фононов при увеличении энергии возбуждения лазера (2.54–2.71 эВ) вследствие эффекта локализации оптических фононов в квантовых точках малого размера, доминирующих в процессе рассеяния при резонансных условиях.

PACS: 63.22.+m, 78.30.Fs, 81.07.Ta

В последние несколько лет интенсивно исследовались полупроводниковые структуры Ge/Si вследствие их потенциального применения в оптоэлектронных устройствах, совместимых с кремниевой технологией. Их колебательные свойства хорошо изучены и объяснены [1–3]. Недавно было показано, что при определенных ростовых условиях молекулярно-лучевая эпитаксия позволяет создавать квантовые точки (КТ) Ge различного размера (основание 8–95 нм, высота 1–7 нм), не имеющие дислокаций [4–6]. Ожидается, что сверхрешетки (СР) Ge/Si с КТ Ge должны сочетать в себе преимущества КТ в сравнении со СР Ge/Si, сохраняя при этом совместимость с кремниевой технологией. В то время как значительный прогресс был достигнут в технологии роста КТ Ge, изучение оптических свойств структур в настоящее время является темой ряда теоретических и экспериментальных исследований.

Недавно спектроскопия комбинационного рассеяния (КР) света была успешно применена для изучения встроенных механических напряжений и эффекта перемешивания в КТ Ge с использованием значения частот продольных оптических (LO) фононов Ge и Ge-Si [4, 7, 8]. Поперечные оптические (TO) фононы не наблюдаются в данных экспериментах, поскольку, согласно

правилам отбора для КР, они неактивны в применяемой геометрии рассеяния. В низкочастотном диапазоне в спектрах КР сверхрешеток Ge/Si с КТ, подобно планарным СР Ge/Si, проявляются свернутые продольные акустические (LA) фононы [8]. Вместе с тем ожидается, что формирование КТ должно вызывать смягчение или снятие правил отбора вследствие несохранения закона волновых векторов в подобных структурах, что должно приводить к КР фононами в “запрещенной” геометрии. Тем не менее, детальных исследований по данной проблеме проведено не было.

В настоящей работе представлены результаты исследования колебательного спектра периодических структур с КТ Ge методом КР в условиях резонанса. Показано, что данные структуры обладают колебательными свойствами, присущими как для двумерных, так и нуль-мерных объектов. Обнаружено селективное по размеру КТ резонансное комбинационное рассеяние LO фононами, локализованными в КТ Ge.

Исследуемые образцы были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии в ростовом режиме Странского–Крастанова на подложке Si, ориентированной в направлении (001), покрытой буферным слоем Si толщиной 20 нм. Температура роста слоев Si была 800 и 500 °C до и после нанесения слоя Ge, соответственно. Слои Ge с КТ выращивались при тем-

¹⁾ e-mail: milekhin@thermo.isp.nsc.ru

²⁾ S. Schulze, D. R. T. Zahn

Рис.1. Изображение исследуемого образца, полученное с помощью электронной микроскопии высокого разрешения. Темная область соответствует слою Ge с квантовыми точками

пературе 300°C . Номинальные толщины слоев Ge и Si составляли 1.4 и 37 нм, соответственно. Число повторений пары слоев Ge и Si равно 10. Структурный контроль параметров КТ осуществлялся с помощью высокоразрешающей электронной микроскопии поперечного среза структуры на пропускание.

Эксперименты по КР были выполнены на спектрометре Dilor XY800 в геометрии обратного рассеяния $z(xx) - z$ и $z(xy) - z$ с использованием линии возбуждения Ar^+ , Kr^+ и HeNe -лазеров в диапазоне длин волн 676.4–457.9 нм (1.83–2.71 эВ). Спектры КР в геометрии $y'(zz) - y'$ и $y'(zx') - y'$ были записаны при длине волны 514.5 нм Ar^+ -лазера с использованием микроскопа, позволяющего сфокусировать свет до размеров пятна диаметром 1 мкм на поперечном срезе образца. Индексы x, y, z, x', y' соответствуют направлениям, параллельным [100], [010], [001], [1-10], [110] осям.

На рис.1 представлено изображение исследуемого образца, полученное с помощью электронной микроскопии высокого разрешения. Темная область соответствует слою с квантовыми точками Ge, светлая – слою Si. Из рисунка видно, что КТ Ge имеет пирамидальную форму с основанием порядка 15 нм и высотой 2 нм. Эти параметры хорошо согласуются с данными экспериментов по туннельной микроскопии для образцов, полученных в подобных ростовых условиях [9].

Экспериментальные спектры КР, измеренные в различной геометрии, представлены на рис.2. В низкочастотной области в спектрах КР, записанных в геометрии $z(xx) - z$, наблюдается серия линий (до

15-го порядка), обусловленная свернутыми LA фононами (САФ) в СР с КТ Ge. Этот факт согласуется с правилами отбора для КР света в планарных СР Ge/Si [1]. Дублеты свернутых фононов не разрешены вследствие малой величины расщепления (около 1 см^{-1}) при значении волнового вектора, используемого в эксперименте. Линии САФ перекрываются с широкой полосой непрерывной эмиссии с максимумом вблизи 40 см^{-1} . Частотное положение САФ может быть описано моделью диэлектрического континуума [10], согласно которой дисперсия САФ в периодической структуре (например, Ge/Si) может быть представлена как

$$\cos(qd) = \cos\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \cos\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right) - \frac{k^2 + 1}{2k} \sin\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \sin\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right), \quad (1)$$

где $k = v_1 \rho_1 / v_2 \rho_2$; $d = d_1 + d_2$, d_1 и d_2 , ρ_1 и ρ_2 , v_1 и v_2 – толщины, плотности и скорости звука в слоях Ge и Si, соответственно. Дисперсия САФ, рассчитанная с использованием параметров, взятых из [3], представлена на рис.2 на вставке. Горизонтальная линия на вставке соответствует волновому вектору, применяемому в эксперименте. Как видно из рис.2, наблюдается хорошее согласие с моделью и не требуются дополнительных подгоночных параметров. Период структуры, определенный из расчетов, равен 37.9 нм, что согласуется со значением, полученным из экспериментов по высокоразрешающей микроскопии.

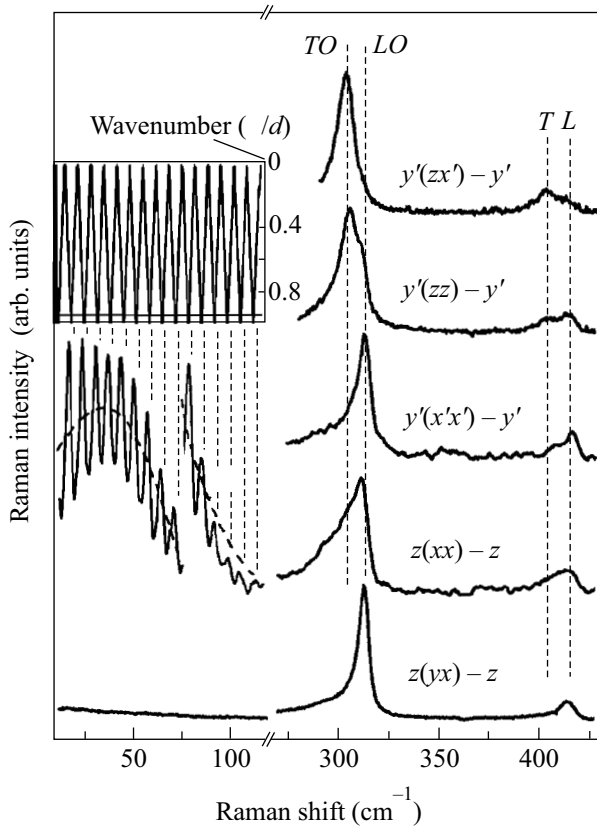


Рис.2. Спектры комбинационного рассеяния света исследуемого образца, записанные в различной геометрии. На вставке показана рассчитанная дисперсия акустических фононов в структуре. Горизонтальная линия соответствует волновому вектору, применяемому в эксперименте

Причина непрерывной эмиссии, наблюдаемой в геометрии $z(xx) - z$ в стоксовой и анти-стоксовой областях, может быть объяснена в рамках модели взаимодействия электронов (дырок), локализованных в квантовой яме, с акустическими фононами. Локализация носителей заряда в квантовой яме, ширина которой флуктуирует вследствие островкового роста, вызывает нарушение трансляционной симметрии и приводит к КР-состояниям всей ветви дисперсии акустических фононов [11, 12]. При этом интенсивность КР в резонансных условиях определяется величиной $q_z |M_{qz}|^2$, где q_z – волновой вектор фонона, распространяющегося вдоль оси z , и M_{qz} – матричный элемент электрон-фононного взаимодействия, определяемый как

$$M_{qz} = \int e^{iq_z z} |\varphi(z)|^2 dz. \quad (2)$$

Здесь $\varphi(z)$ – волновая функция локализованной дырки, выбранная как $\varphi(z) = a^{1/2} e^{-|z|/a}$, где a – усред-

ненная толщина слоя с КТ Ge. Пользуясь этой моделью, был рассчитан спектр КР для толщины слоя Ge 1.2 нм (рис.2, пунктирная линия). Взаимодействие между соседними слоями с КТ считалось пренебрежимо малым. Как видно из рис.2, предложенная модель хорошо описывает эксперимент, а толщина слоя Ge согласуется с номинальным значением, задаваемым при росте структуры (1.4 нм). Необходимо отметить, что максимум и форма полосы значительно зависят от вида волновой функции, поэтому для количественных оценок следует использовать волновые функции, наиболее полно отражающие геометрию исследуемых структур.

Рассмотрим теперь область частот оптических фононов.

Оптический фонон Ge в сверхрешетках с КТ Ge расщепляется на две моды, волновой вектор которых направлен вдоль либо перпендикулярно направлению (001) – LO фонон и дважды вырожденный TO фонон, соответственно. Согласно правилам отбора для КР в планарных CP Ge/Si, выращенных на подложке Si (001), LO фононы наблюдаются в спектрах КР в геометрии рассеяния $z(yx) - z$, $y'(x'x') - y'$, а TO фононы активны в геометрии $y'(zx') - y'$ [1]. Для КР света в CP с КТ Ge ожидается смягчение правил отбора из-за понижения симметрии и как следствие – активация “запрещенных” ранее колебательных мод в структурах с КТ. Действительно, как и в случае планарных CP Ge/Si, в экспериментальных спектрах структур с КТ (рис.2) наблюдаются LO (315 cm^{-1}) и TO (308 cm^{-1}) фононы в геометрии $z(yx) - z$, $y'(x'x') - y'$ и $y'(zx') - y'$, соответственно. В дополнение, интенсивные линии, соответствующие LO, либо LO и TO фононам, наблюдаются в “запрещенной” геометрии $z(xx) - z$ и $y'(zz) - y'$, соответственно, что свидетельствует о смягчении правил отбора для КР в CP с КТ Ge. Слабые линии, наблюдаемые в спектрах КР при 405 и 417 cm^{-1} , обусловлены поперечными и продольными Ge – Si “интерфейсными” фононами, обозначенными на рис.2 как T и L, соответственно.

Высокочастотный сдвиг положения LO и TO фононов в КТ Ge относительно его объемного значения (300 cm^{-1}) свидетельствует о наличии сильных механических напряжений в КТ. Расчет, проведенный на основе известной зависимости частот оптических фононов в Ge от механических напряжений [13], показал, что КТ Ge подвержены двусному сжатию порядка 3.6% [8]. Такому состоянию соответствуют частоты TO и LO фононов при 310.6 и 315 cm^{-1} , соответственно. Хорошее совпадение значений частот оптических фононов с экспериментальными, а также малая ширина линий оптических фононов (око-

ло 6 см^{-1} на полувысоте) свидетельствует об отсутствии релаксации в КТ Ge и перемешивания атомов на гетерогранице Ge-Si. Большая величина $LO-TO$ расщепления, наблюдаемая в эксперименте, объясняется различным характером локализации LO и TO фононов в структурах Ge/Si. Действительно, в CP Ge/Si только TO фононы Ge являются локализованными, поскольку их дисперсия не перекрывается с дисперсией оптических и акустических фононов Si. Продольные оптические фононы в слоях Ge имеют квази-локализованный характер вследствие совпадения разрешенных интервалов энергии для LO фононов в Ge и LA фононов в Si.

Наблюдаемое значение $L-T$ расщепления соответствует данным работы [2] и объясняется различным характером атомных кластеров на границе раздела Ge/Si, вносящих вклад в L и T колебания.

В то время как акустические фононы в CP Ge/Si с КТ, описанные выше, удовлетворительно описываются моделью двумерной структуры, поведение оптических фононов в спектрах КР, записанных при различной энергии возбуждения лазера, может быть объяснено только локализацией оптических фононов в квантовых точках Ge. На рис.3 представлены экспериментальные спектры КР в области частот LO фононов, записанные при разной энергии возбуждающего излучения в геометрии рассеяния $z(yx) - z$. Зависимость интенсивности КР имеет максимум при 2.34 эВ , что близко по энергии к резонансу, соответствующему E_1 экситону в КТ Ge в [4]. Положение LO фононов, локализованных в КТ Ge, сдвигается в область низких частот (на $4-5 \text{ см}^{-1}$) при увеличении энергии возбуждения, что свидетельствует о распределении КТ Ge по размеру. Интенсивность КР для квантовых точек меньшего размера, для которых E_1 экситон наблюдается при более высокой энергии, оказывается усилена при резонансе энергии возбуждающего лазера и E_1 экситона. Именно оптические фононы, локализованные в КТ меньшего размера, и испытывают наибольший низкочастотный сдвиг. Подобное поведение является типичным для материалов, подобных Ge, обладающих отрицательной дисперсией оптических фононов [14].

Таким образом, в данной работе детально исследован колебательный спектр сверхрешеток Ge/Si с квантовыми точками Ge. Обнаружено, что такие структуры проявляют свойства, характерные для слоистых структур и квантовых точек. Спектр акустических фононов хорошо описывается моделью диэлектрического континуума. Наблюдаемая в спектрах КР низкочастотная эмиссия обусловлена вкладом фононных состояний всей ветви акустической дис-

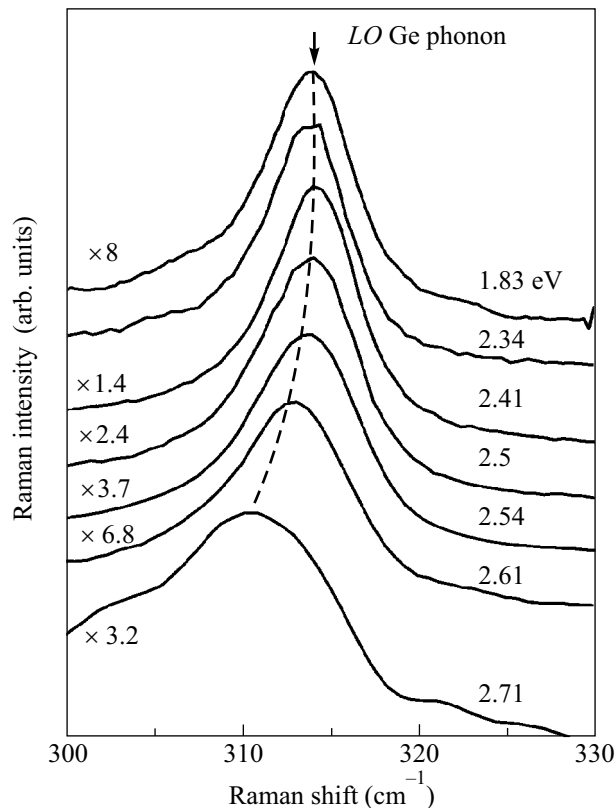


Рис.3. Зависимость частоты и интенсивности LO фононов в спектрах комбинационного рассеяния в зависимости от энергии возбуждающего излучения

персии вследствие нарушения трансляционной симметрии в структурах с КТ. С ростом энергии возбуждающего излучения резонансное комбинационное рассеяние света, селективное по размеру квантовых точек, приводит к низкочастотному сдвигу положения оптических фононов, локализованных в КТ Ge.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 00-02-18012).

1. R. Schrorer, G. Abstreiter, H. Kibbel et al., Phys. Rev. **B50**, 18211 (1994).
2. S. de Gironcoli, E. Molinari, R. Schrorer et al., Phys. Rev. **B48**, 8959 (1993).
3. D. J. Lockwood, M. W. C. Dharma-wardana, J.-M. Baribeau et al., Phys. Rev. **B35**, 2243 (1987).
4. S. H. Kwok, P. Y. Yu, C. H. Tung et al., Phys. Rev. **B59**, 4980 (1999).
5. J. L. Liu, G. Jin, Y. S. Tang et al., Appl. Phys. Lett. **76**, 586 (2000).
6. О. П. Пчеляков, Ю. Б. Болховитянов, А. В. Двуреченский и др., ФТП **34**, 1281 (2000).

7. А. Б. Талочкин, В. А. Марков, С. П. Супрун, А. И. Никифоров, Письма в ЖЭТФ, **64**, 203 (1996).
8. A. Milekhin, N. Stepina, A. Yakimov et al., Eur. Phys. J. **B16**, 355 (2000).
9. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, Yu. Yu. Proskuryakov et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 1413 (1999).
10. S. M. Rytov, Akoust. Zh. **2**, 71 (1956).
11. T. Ruf, V. I. Belitsky, J. Spitzer et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 3035 (1993).
12. A. Mlayah, A. Sayari, R. Grac et al., Phys. Rev. **B78**, 1486 (1997).
13. F. Cerdeira, C. J. Buchenauer, F. H. Pollak et al., Phys. Rev. **B5**, 580 (1972).
14. C. Trallero-Giner, A. Debernardi, M. Cardona et al., Phys. Rev. **B57**, 4664 (1998).