

Экситоны в двойных квантовых точках Ge/Si

А. И. Якимов¹⁾, А. А. Блошкин, А. В. Двуреченский

Институт физики полупроводников им. А.В.Ржанова Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 1 сентября 2009 г.

Теоретически исследованы пространственная конфигурация экситонов и сила осциллятора, характеризующая интенсивность межзонных оптических переходов в двойных вертикально связанных квантовых точках Ge/Si. Обнаружено, что существуют условия (размеры квантовых точек, расстояние между точками), при которых происходит многократное (до 5 раз) увеличение вероятности экситонного перехода по сравнению со случаем одиночных квантовых точек. Ожидается, что полученные результаты позволят приблизиться к решению проблемы создания эффективных светоизлучающих и фотоприемных устройств на базе непрямозонных полупроводников Si и Ge.

PACS: 73.20.Mf, 73.50.Pz

Поиск физических механизмов, позволяющих повысить эффективность излучательной рекомбинации и процессов межзонного поглощения света в непрямозонных полупроводниках, таких как кремний и германий, уже долгое время является одной из наиболее актуальных проблем физики полупроводников. Если бы удалось значительно увеличить силу осциллятора для межзонных переходов, это сделало бы возможным интеграцию на одной кремниевой подложке приборов опто-и микроэлектроники. Определенные надежды на решение этой проблемы возлагали на гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками (КТ), в которых ожидалось ослабление правил отбора по квазиимпульсу как следствие размерного ограничения движения носителей заряда во всех трех измерениях. Однако оказалось, что КТ Ge/Si(001) представляют собой гетероструктуры 2-го типа, в которых носители заряда разного знака разделены гетерограницей: дырки локализованы в областях, занятых Ge, а электроны находятся в делокализованных состояниях зоны проводимости слоев Si. Таким образом, межзонные переходы в такой системе оказываются непрямыми не только в пространстве волновых векторов, но и в реальном пространстве.

Для того чтобы получить высокую эффективность оптических межзонных переходов (большое значение силы осциллятора) в структурах Ge/Si с КТ, необходимо решить следующие задачи: 1) сформировать локализованные состояния электронов вблизи КТ. Для локализованного состояния волновой вектор \mathbf{k} не является “хорошим” квантовым числом: состояние, локализованное в пространстве, можно представить как суперпозицию делокализованных

состояний с различными волновыми векторами \mathbf{k} . В результате, межзонные переходы в такой системе станут прямыми в пространстве волновых векторов, поскольку средний импульс и электрона в связанном состоянии в зоне проводимости Si, и оставшейся в Ge дырки равны нулю; 2) обеспечить максимальное перекрытие волновых функций локализованных электронов и дырок, и, следовательно, возможность прямых оптических переходов уже в реальном (геометрическом) пространстве. Фактически это условие означает, что дырка должна проникать из Ge в Si, а электрон – из Si в Ge. В работе [1] нами были найдены условия формирования локализованных электронных состояний в напряженных слоях Si вблизи гетерограницы с Ge. Деформация кристалла, возникающая из-за рассогласования параметров решетки Ge и Si, приводит к расщеплению Δ -минимумов зоны проводимости Si, в результате которого низшими минимумами в деформированном Si оказываются две из шести Δ -долин, расположенные вдоль направлений [001] в зоне Бриллюэна. Поскольку напряжения в Si спадают по мере удаления от слоя Ge, то в Si вблизи вершины и дна германиевых нанокластеров возникают трехмерные треугольные потенциальные ямы для электронов (рис.1). Было показано, что контроль за упругими деформациями в многослойных гетероструктурах Ge/Si с вертикально совмещенными нанокластерами Ge позволяет сформировать связанные электронные состояния с энергией связи электрона, достигающей величины 100 мэВ [1]. В данной работе приводятся результаты теоретических исследований экситонных состояний в спаренных КТ, образованных вертикально сопряженными нанокластерами Ge в Si.

¹⁾ e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

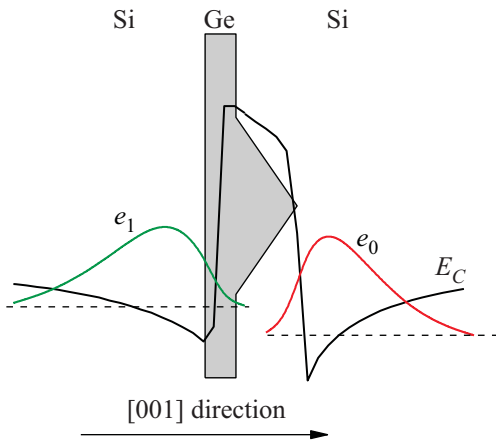


Рис.1. Схематическое изображение профиля дна зоны проводимости в Δ -минимуме напряженной гетероструктуры Ge/Si(001) вдоль оси z (направление [001]), проходящей через вершину пирамиды Ge. Окрашенной в серый цвет областью показано расположение слоя Ge, содержащего пирамиду Ge на сплошном слое Ge. e_0 и e_1 – электронные состояния, локализованные вблизи вершины и дна нанокластера Ge

Двойная КТ моделировалась двумя одинаковыми нанокластерами Ge, расположенными один над другим в направлении роста структуры [001] (ось z) в матрице Si и разделенных слоем Si толщиной d (рис.2). Величина d варьировалась в вычислительном

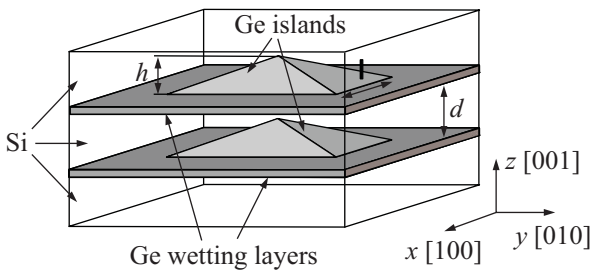


Рис.2. Схематическое изображение двойной КТ, состоящей из двух пирамидальных нанокластеров Ge, расположенных один над другим в направлении роста структуры z и разделенных слоем Si толщиной d

эксперименте от 2 до 9 нм. Нанокластеры Ge имели форму пирамид с ориентацией основания вдоль направлений [100] (ось x) и [010] (ось y) и боковыми гранями, ограниченными плоскостями $\{105\}$. Последнее обстоятельство означает, что отношение высоты h к латеральному размеру l в нанокластерах не зависит от размера и составляет ≈ 0.1 . Расчеты проводились для КТ с латеральными размерами $l = 10, 15$ и 20 нм. Каждая пирамида располагалась на тонком

сплошном (смачивающем) слое Ge толщиной 4 монослоя (один монослой равен 1.41 \AA). Выбранные форма островков Ge и их размеры соответствуют реальной экспериментальной ситуации [2]. Область кристалла, вовлеченная в вычислительный процесс, имела форму прямоугольного параллелепипеда и типичные размеры $17.5 \times 17.5 \times 25 \text{ нм}$ вдоль направлений x, y и z , соответственно. Для того чтобы убедиться в правильном выборе размеров этой области, были проведены контрольные вычисления для нескольких размеров. Установлено, что при изменении вертикального размера “ящика” от 17.5 до 25 нм энергия связи дырки остается неизменной с точностью лучше 1 мэВ.

На первом этапе находилось трехмерное пространственное распределение упругих деформаций в среде с помощью метода конечных элементов, описанном в работе [3]. При этом все пространство разбивалось на конечные объемы в форме тетраэдров. Распределение механических напряжений получается путем минимизации упругой энергии системы как функции смещений всех вершин тетраэдров. В дальнейшем полученные таким образом компоненты тензора деформаций $\varepsilon_{\alpha\beta}$ использовались в качестве входных параметров при расчетах зонной структуры.

Процедура расчета энергий и волновых функций дырок была выполнена с помощью 6-зонного $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -метода, в который были включены три ветви валентной зоны: подзоны тяжелых и легких дырок, а также подзона, отщепленная спин-орбитальным взаимодействием. Тяжелые дырки характеризуются проекцией полного магнитного момента $J_z = \pm 3/2$ на вертикальную ось симметрии, а легкие дырки и дырки в спин-отщепленной подзонах – значениями $J_z = \pm 1/2$. Использовался гамильтониан Бира-Пикуса [4], состоящий из четырех слагаемых и имеющий вид матрицы 6×6 :

$$H = H_{vv} + H_{so} + H_{\text{strain}} + \Delta E_v, \quad (1)$$

где H_{vv} содержит члены, зависящие от волнового вектора, H_{so} описывает спин-орбитальное взаимодействие, H_{strain} – деформационные поправки, $\Delta E_v = 0.54 \text{ эВ}$ отражает наличие разрыва валентной зоны на гетерогранице Ge/Si в отсутствие механических напряжений. Детальный вид всех составляющих гамильтониана для дырок приведен в работе [5], и здесь мы не будем повторяться. Поскольку для КТ Ge/Si с размером $l \sim 10 \text{ нм}$ энергия связи дырок много больше энергии кулоновского взаимодействия с электроном [6], можно пренебречь влиянием кулоновского взаимодействия с электроном на дырочный спектр.

Потенциал для электрона определяется: 1) разрывом зон проводимости на гетерогранице Ge/Si,

2) неоднородным распределением упругих деформаций, которое приводит к появлению потенциальной ямы в Si вблизи вершины и дна нанокластера Ge [1], и 3) кулоновским притяжением к дырке. Последний вклад может доминировать [6], поэтому при расчетах электронных состояний кулоновское взаимодействие с дыркой учитывать необходимо. В присутствии деформаций потенциальная энергия электрона в Δ_1 -точке зоны проводимости напряженной гетероструктуры может быть записана в виде [7]

$$V_{\text{strain}}(\mathbf{r}_e) = \Delta E_c x(\mathbf{r}_e) + \Xi_d \text{Tr}[\varepsilon(\mathbf{r}_e)] + \Xi_u \varepsilon_{zz}(\mathbf{r}_e), \quad (2)$$

где $\Delta E_c = 0.34$ эВ – разрыв зоны проводимости между ненапряженными слоями Si и Ge [7]; функция $x(\mathbf{r}_e) = 1$, если радиус-вектор электрона \mathbf{r}_e указывает на точку внутри области Ge, и $x(\mathbf{r}_e) = 0$ в противном случае. Константы Ξ_d и Ξ_u являются деформационными потенциалами. Огибающие волновые функции электрона $\psi_e(\mathbf{r}_e)$ находились на основе численного решения трехмерного уравнения Шредингера в однозонном приближении эффективной массы со связывающим потенциалом $U(\mathbf{r}_e) = V_{\text{strain}}(\mathbf{r}_e) + V_{eh}(\mathbf{r}_e)$, где

$$V_{eh}(\mathbf{r}_e) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{|\psi_h(\mathbf{r}_h)|^2 d\mathbf{r}_h}{\epsilon(\mathbf{r})|\mathbf{r}_h - \mathbf{r}_e|} \quad (3)$$

описывает электрон-дырочное взаимодействие, $\psi_h(\mathbf{r}_h)$ – волновая функция дырки в $\Gamma_{25'}$ -точке зоны Бриллюэна, $\epsilon_0 = 8.87 \cdot 10^{-12}$ Ф/м – диэлектрическая проницаемость вакуума, $\epsilon(\mathbf{r})$ – диэлектрическая проницаемость материала, равная 11.7 в Si и 16 в Ge, $\mathbf{r}_{e(h)}$ указывает положение электрона (дырки). Значения продольной и поперечной масс электрона в Δ -долинах Si выбирались как $m_{xy} = 0.19m_0$ и $m_z = 0.92m_0$, где m_0 – масса свободного электрона.

В дипольном приближении сила осциллятора для перехода электрона из валентной зоны в зону проводимости пропорциональна величине $R = |\langle f | \mathbf{e} \cdot \mathbf{p} | i \rangle|^2$ [8], где $|f\rangle$ и $|i\rangle$ представляют конечное и начальное состояния, \mathbf{e} – вектор поляризации света, \mathbf{p} – оператор импульса. Волновая функция электрона в точке Δ_1 зоны проводимости имеет вид $|f\rangle = \psi_e(\mathbf{r}_e)u_c(\mathbf{r}_e)$, где $\psi_e(\mathbf{r}_e)$ – огибающая волновая функция, $u_c(\mathbf{r}_e)$ – блоховская функция. Соответственно, в валентной зоне $|i\rangle = \psi_h(\mathbf{r}_h)u_v(\mathbf{r}_h)$, где $u_v(\mathbf{r}_h)$ – блоховская функция вблизи потолка зоны $\Gamma_{25'}$. Так как периодические функции u_c и u_v очень быстро осциллируют на характерной длине изменения огибающих ψ_e и ψ_h , то сила осциллятора определяется, главным образом, величиной интеграла перекрытия в квадрате $M^2 = \langle \psi_e | \psi_h \rangle^2$ [9] и $R \sim \|p\|^2 \langle \psi_e | \psi_h \rangle^2$, где

$\|p\|$ – численное значение модуля матричного элемента дипольного момента, взятого на блоховских амплитудах зоны проводимости и валентной зоны Ge и Si. С учетом того, что огибающая волновая функция дырки является многокомпонентной, окончательное выражение для силы осциллятора имеет следующий вид:

$$R = A \sum_{J_z} \langle \psi_e | \phi_{J_z} \rangle^2, \quad (4)$$

где A – некое число, определяемое микроскопической структурой Ge и Si. Сумма в выражении (4) включает 6 компонент волновой функции дырки ϕ_{J_z} , отвечающих подзонам тяжелых дырок, легких и спин-отщепленной подзоне с разными полным магнитным моментом J и его проекциями J_z на вертикальную ось симметрии. Здесь $J_z = \pm 3/2, \pm 1/2$ для мультиплета $J = 3/2$ (тяжелые и легкие дырки) и $J_z \pm 1/2$ для спин-отщепленной подзоны ($J = 1/2$).

Расчеты проводились для первых двух состояний дырок (обозначим их как σ_S и σ_{AS}) и электронов (e_0 и e_1). Анализировались четыре экситонных перехода с наименьшей энергией: $e_0 - \sigma_S$, $e_1 - \sigma_S$, $e_0 - \sigma_{AS}$ и $e_1 - \sigma_{AS}$. Здесь e_0 и e_1 – основное и возбужденное состояния электрона, соответственно; σ_S и σ_{AS} отвечают симметричной (связывающей) и антисимметричной (антисвязывающей) молекулярным орбиталам дырок. На рис.3 показаны энергии экситонных переходов и относительная величина интенсивности этих переходов для одиночных и двойных КТ различного размера l и при различных расстояниях d между спаренными КТ. Интенсивность переходов находилась с помощью соотношения

$$I(E) = \sum_i R_i S(E - E_i) / R_0, \quad (5)$$

где R_i – сила осциллятора для i -го экситонного перехода в двойной КТ, R_0 – сила осциллятора для основного состояния экситона в одиночной КТ, $S(E - E_i)$ – функция Лоренца с параметром уширения $\Gamma = 1$ мэВ. Величины R_i и R_0 находятся по формуле (4).

Для одиночных КТ основное состояние экситона соответствует конфигурации, когда дырка находится в основном состоянии h_0 в Ge, а электрон связан в Si вблизи вершины пирамиды Ge (состояние e_0 на рис.4). Величины перекрытия волновых функций электрона и дырки и энергия кулоновского взаимодействия электрона и дырки для такого экситона составили 25.4% и 28.8 мэВ для $l = 10$ нм, 18.2% и 27.5 мэВ для $l = 15$ нм, 14.1% и 24.4 мэВ для $l = 20$ нм. Интенсивность перехода $e_0 - h_0$ нами была принята

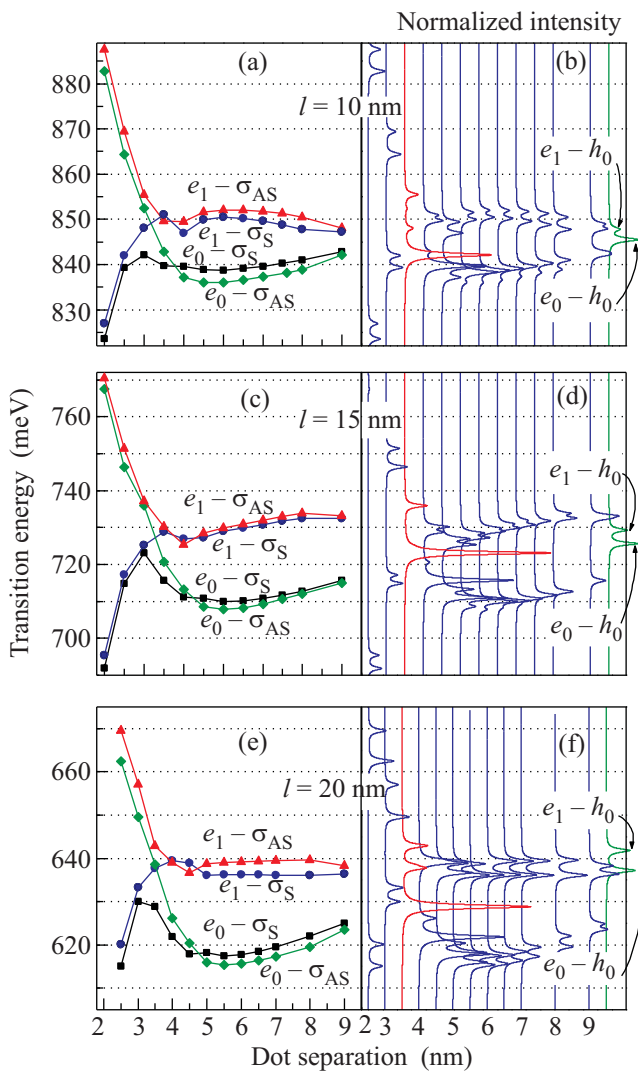


Рис.3. Энергетические уровни первых четырех экситонных состояний в двойных КТ (а), (с), (е) и соответствующие им оптические резонансы (б), (д), (ф) как функции расстояния между КТ d . Для сравнения показаны экситонные спектры, содержащие переходы $e_0 - h_0$ и $e_1 - h_0$, для одиночных КТ (крайние правые кривые на панелях (б), (д) и (ф)). Данные приведены для длины основания пирамид Ge $l = 10$ нм (а), (б); $l = 15$ нм (с), (д); $l = 20$ нм (е), (ф). Интенсивности всех резонансов нормированы на интенсивность перехода $e_0 - h_0$ в одиночной КТ аналогичного размера

за 1 на рис.3. Вероятность перехода $e_1 - h_0$ несколько меньше, чем для $e_0 - h_0$ (рис.3) из-за большего пространственного разделения электрона и дырки и разной пространственной симметрии состояний h_0 и e_1 (рис.4).

Известно, что в двойных квантовых точках 1-го типа (например, InAs/GaAs) лишь два экситона, для которых состояния электрона и дырки имеют оди-

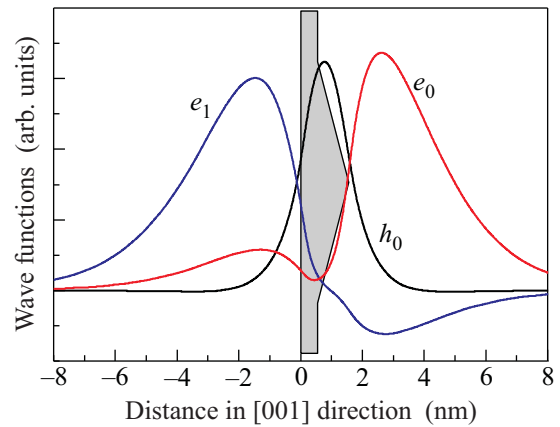


Рис.4. Профили волновых функций электрона (e_0 , e_1) и дырки (h_0) в составе экситонов $e_0 - h_0$ и $e_1 - h_0$ в одиночной КТ с $l = 10$ нм. В качестве h_0 приведена компонента $J_z = -3/2$. Как и на рис.1, окрашенной в серый цвет областью показано расположение слоя Ge, содержащего пирамиду Ge на сплошном слое Ge

наковую пространственную симметрию, из четырех возможных конфигураций являются оптически активными [10]. На рис.3 видно, что в нашем случае все четыре экситонных состояния, за редким исключением, имеют отличную от нуля силу осциллятора. Это связано с тем, что в КТ Ge/Si электронные состояния локализованы в слоях Si и не образуют, в отличие от дырок, симметричных и антисимметричных орбиталей молекулярного типа (рис.5).

На рис.3 видно, что при $d < 4-5$ нм основное состояние экситона соответствует конфигурации $e_0 - \sigma_S$, и при удалении КТ друг от друга сменяется конфигурацией $e_0 - \sigma_{AS}$. Это объясняется изменением пространственной симметрии основного состояния дырок при увеличении расстояния между КТ в результате индуцированного деформацией сдвигов подзон тяжелых, легких и спин-отщепленных дырок [5].

Наиболее интересным результатом, отображенным на рис.3, является увеличение интенсивности перехода $e_0 - \sigma_S$ в случае, когда расстояние между КТ составляет $d = 3.0-3.5$ нм. Так, для $l = 15$ нм и $d = 3.0$ нм вероятность экситонного перехода в двойной КТ в 5 раз превышает вероятность такого перехода в одиночной. Наблюдаемую на рис.3 эволюцию силы осциллятора при изменении расстояния между КТ d можно объяснить, рассмотрев характерные примеры пространственной конфигурации волновых функций (рис.5). При малых d ($d < 3$ нм) электронная конфигурация аналогична случаю одиночной КТ: электрон локализован либо вблизи вершины верхней КТ, либо под нижней КТ. Это означает, что пара КТ

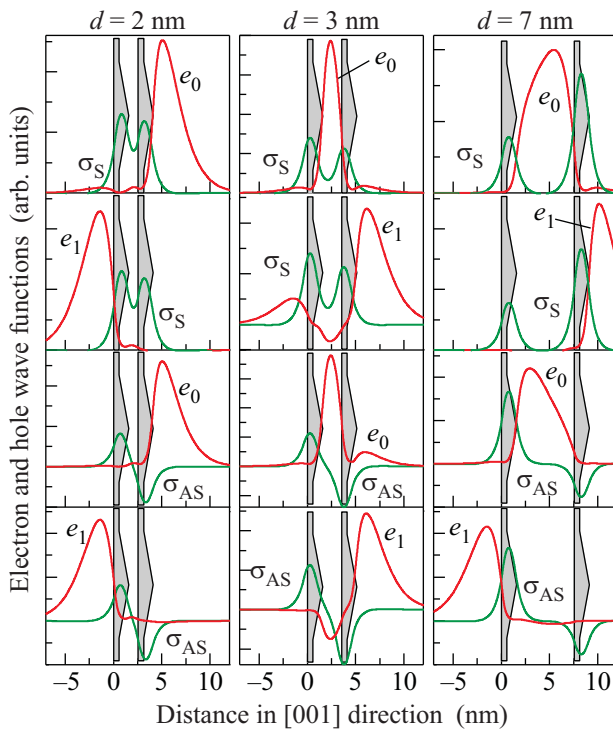


Рис.5. Пространственная конфигурация экситонных состояния в двойных КТ ($l = 10$ нм) вдоль оси z (направление [001]), проходящей через вершину пирамиды Ge. Здесь e_0, e_1 – электронные волновые функции, для дырочных орбиталей σ_S и σ_{AS} приведена компонента $J_z = -3/2$

представляется для электрона как одна, но более высокая точка. По этой причине перекрытие волновых функций электрона и дырки, а значит, и R , при малых d мало.

По мере увеличения d электронные состояния возникают уже между КТ. И если вероятность найти дырку между КТ отлична от нуля, то перекрытие волновых функций электрона и дырки может стать существенным. Оказалось, что максимальное перекрытие реализуется для симметричной конфигурации $e_0 - \sigma_S$ и $d = 3.0-3.5$ нм (для примера на рис.5 показаны волновые функции для $l = 10$ нм).

На больших расстояниях квантовые точки ведут себя практически как изолированные, за тем исключением, когда асимметрия распределения деформации приводит к асимметрии волновой функции дыр-

ки. В этом случае, поскольку расстояние между электроном и дыркой увеличивается, сила осциллятора опять начинает уменьшаться (пример $d = 7$ нм на рис.5). Наконец, в пределе $d \rightarrow \infty$ интенсивность экситонных переходов в двойной КТ должна стремиться к удвоенной силе осциллятора одиночной КТ. Однако здесь эта ситуация не рассматривается из-за ограниченности вычислительных ресурсов.

Итак, в работе теоретически проанализированы экситонные переходы в двойных вертикально сопряженных КТ Ge/Si. Латеральные размеры КТ варьировались от 10 до 20 нм, высота от 1 до 2 нм. Обнаружено что при расстоянии между КТ точками 3.0–3.5 нм сила осциллятора для межзонного перехода с формированием основного состояния экситона может многократно превышать аналогичную величину в одиночной КТ. В такой ситуации существенная часть волновых функций электрона и дырки находится в одной и той же области пространства, обеспечивая тем самым возможность прямых переходов в реальном пространстве.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 09-02-00050 и # 09-02-12393) и Интеграционного проекта СО РАН. А.А.Б. благодарит Фонд “Династия”.

1. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, А. А. Блошкин, А. В. Ненашев, Письма в ЖЭТФ **83**, 189 (2006).
2. A. I. Yakimov, A. I. Nikiforov, A. V. Dvurechenskii et al., Nanotechnology **17**, 4743 (2006).
3. S. Christiansen, M. Albrecht, and H. P. Strunk, Appl. Phys. Lett. **64**, 3617 (1994).
4. Г. Л. Бир, Г. Е. Пикус, Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках, М.: Наука, 1972.
5. A. I. Yakimov, A. A. Bloshkin, and A. V. Dvurechenskii, Semicond. Sci. Technol. **24**, 095002 (2009).
6. A. I. Yakimov, N. P. Stepina, A. V. Dvurechenskii et al., Semicond. Sci. Technol. **15**, 1125 (2000).
7. C. G. Van de Walle, Phys. Rev. B **39**, 1871 (1989).
8. U. Bockelmann and G. Bastard, Phys. Rev. B **92**, 1688 (1992).
9. J. M. Rorison, Phys. Rev. B **48**, 4643 (1993).
10. J. I. Climente, M. Korkusinski, G. Goldoni, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **78**, 115323 (2008).