

Усиление фототока дырок в слоях квантовых точек Ge/Si с резкой гетерограницей

А. И. Якимов^{+*1)}, В. В. Кириенко⁺, В. А. Армбристер⁺, А. В. Двуреченский^{+×}

⁺Институт физики полупроводников им. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^{*}Томский государственный университет, 634050 Томск, Россия

[×]Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 19 августа 2016 г.

Измерены коэффициент фотоэлектрического усиления, спектры фототока дырок в среднем инфракрасном диапазоне и межзонной фотолуминесценции в массивах квантовых точек Ge/Si с различным элементным составом гетерограницы. Диффузионное перемешивание материалов матрицы и квантовых точек контролировалось выбором температуры заравнивания слоев германия кремнием. Обнаружено, что формирование резкой гетерограницы приводит к усилению фототока дырок и гашению сигнала фотолуминесценции. Результаты объяснены ростом времени жизни неравновесных дырок вследствие подавления процессов захвата на связанные состояния квантовых точек.

DOI: 10.7868/S0370274X16190073

Исследования фундаментальных механизмов возникновения фототока в слоях квантовых точек (КТ) диктуются необходимостью реализации эффективных фотоэлектрических преобразователей среднего и дальнего диапазонов инфракрасного (ИК) излучения. Смещение интересов к фотонным детекторам, содержащим в качестве активного элемента КТ, связано с рядом обнаруженных уникальных явлений и свойств гетероструктур с КТ. Основным достоинством КТ при их использовании в фоточувствительных элементах является значительное ослабление существующих ограничений на правила отбора и на поляризацию света при межуровневых оптических переходах. Массивы КТ характеризуются большим временем жизни неравновесных носителей заряда по сравнению с системами более высокой размерности как результат снижения рассеяния на оптических фононах. В ансамблях КТ уменьшается скорость термической генерации носителей заряда вследствие дискретности энергетического спектра, растет величина силы осциллятора для внутризонных и экситонных переходов по сравнению с системами большей размерности вследствие локализации волновой функции во всех трех направлениях. Особый интерес вызывают наногетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками Ge. КТ Ge/Si относятся к гетероструктурам второго типа. Разрывы валентной зоны и зоны проводимости на гетерограницах здесь имеют одинако-

вый знак. В результате в областях Ge локализованы лишь дырки, а электроны находятся в состояниях сплошного спектра Δ долин зоны проводимости Si. Возникновение фототока в среднем окне прозрачности земной атмосферы (3–5 мкм) в КТ Ge/Si обусловлено внутризонными переходами дырок между уровнями размерного квантования в квантовых точках Ge и состояниями континуума объемного Si [1–4]. Недавно в таких гетероструктурах было обнаружено увеличение токовой чувствительности и времени жизни фотовозбужденных дырок при уменьшении геометрических размеров квантовых точек [5], свидетельствующее о проявлении эффекта “узкого фононного горла” (phonon bottleneck), в основе которого лежит подавление рассеяния на LO-фононах, когда расщепление уровней размерного квантования превышает энергию фонона.

Несмотря на очевидные достоинства фотодетекторов с КТ, достигнутая в настоящее время чувствительность к ИК излучению не велика. Основная причина – малая плотность состояний, связанных с КТ. В связи с этим возникают фундаментальные задачи поиска физических механизмов увеличения фототока в гетероструктурах с КТ. Следует отметить, что величина токовой чувствительности растет с увеличением коэффициента фотоэлектрического усиления, который представляет собой отношение времени жизни возбужденного носителя заряда к времени его пролета через детектор. В свою очередь, время жизни определяется вероятностью обратного захва-

¹⁾e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

та электрона либо дырки в КТ. Таким образом, подавив процесс захвата носителей в КТ, можно добиться существенного роста фототока. В настоящей работе получено экспериментальное доказательство того, что достичь указанной цели можно в слоях КТ с резкой гетерограницей Ge/Si.

Как правило, исследования структурных характеристик, оптических и электрических явлений выполняются в массивах КТ Ge/Si, сформированных при температурах выше 550°C [6, 7]. Мотивацией выбора высокой температуры роста служит стремление получить слои, совершенные по кристаллической структуре. Однако в таких условиях происходит изменение элементного состава нанокластеров Ge и размытие гетерограниц, вызванные диффузионным перемешиванием Ge и Si [8, 9]. Альтернативой может служить низкотемпературный синтез гетероструктур. Понизив температуру эпитаксиального роста и, возможно, проиграв в кристаллическом совершенстве структуры, можно сохранить резкость границы между материалом матрицы и КТ в надежде повлиять положительным образом на величину возбудяемого фототока.

Идея проведенного эксперимента заключалась в использовании возможности контроля за резкостью гетерограницы Ge/Si в многослойной гетероструктуре путем изменения температуры заравнивания слоев Ge кремнием T_{sub} . Два образца выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке $p^+\text{-Si}(001)$, служащей нижним электрическим контактом при фотоэлектрических измерениях. Объемное сопротивление подложки составляло $0.02 \text{ Ом}\cdot\text{см}$. Верхний контакт формировался путем осаждения $150 \text{ нм } p^+\text{-Si}$ с концентрацией бора $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (рис. 1а). Структуры состояли из буферного слоя Si толщиной 300 нм , десяти слоев квантовых точек Ge, разделенных промежутками Si толщиной 30 нм , и покрывающего слоя Si толщиной 175 нм . Для синтеза массивов нанокластеров Ge использовалось явление самоорганизации полупроводниковых наноструктур в процессе гетероэпитаксиального роста материалов с большим несоответствием параметров решетки (механизм роста Странского–Крастанова). В обоих образцах осаждение слоев Ge номинальной толщиной покрытия 0.85 нм проводилось при одной и той же температуре 400°C со скоростью $0.4 \text{ \AA}/\text{с}$. Непосредственно после формирования нанокластеров Ge осуществлялось заравнивание каждого слоя Ge слоем Si толщиной 5 нм . Различие в двух образцах заключалось лишь в температуре T_{sub} . В первом образце температура заравнивания составляла $T_{\text{sub}} = 400^\circ\text{C}$, во втором – 550°C . Даль-

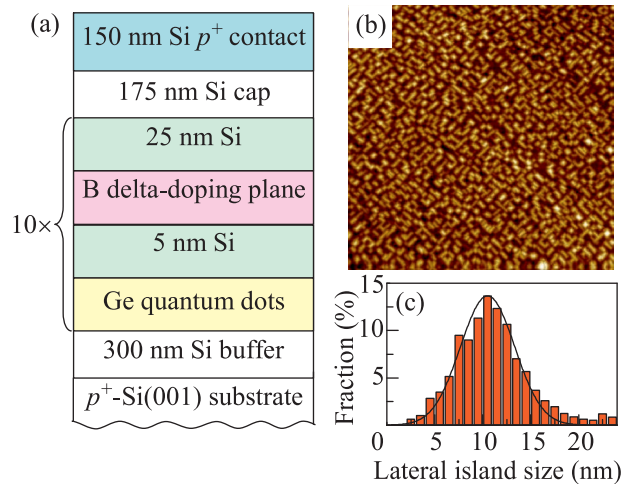


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематический разрез многослойной гетероструктуры с квантовыми точками Ge в матрице Si. (б) – Полученное с помощью сканирующей туннельной микроскопии изображение поверхности Si(001) с массивом нанокластеров Ge. Размер изображения $500 \times 500 \text{ нм}^2$. (с) – Гистограмма распределения квантовых точек по размерам в плоскости роста. В качестве характерного латерального размера бралась величина $l = \sqrt{a \times b}$, где a и b – длины сторон основания hut-кластеров Ge

нейший рост барьерных слоев Si выполнялся при 500°C .

При выборе величины T_{sub} мы использовали те известные обстоятельства, что (1) процессы диффузионного перемешивания Ge и Si активизируются уже при $T_{\text{sub}} > 400^\circ\text{C}$ [10], (2) изменение плотности и размеров островков Ge вследствие остwaldовского созревания (Ostwald ripening) становятся существенными лишь при $T_{\text{sub}} > 550^\circ\text{C}$ [11]. Таким образом, первый образец является структурой с относительно резкими гетерограницами, во втором образце верхняя гетерограница должна представлять собой неоднородный по составу слой GeSi. Для доказательства этого утверждения были измерены спектры комбинационного рассеяния света (КРС), которые приведены на рис. 2 в области частот оптических колебаний связей Ge–Ge и Ge–Si. Видно, что повышение T_{sub} от 400 до 550°C приводит к существенному росту пика КРС на колебаниях связей Ge–Si, свидетельствующему о формировании твердого раствора GeSi. Оценки средней доли Ge в нанокластерах, сделанные из отношения интегральных интенсивностей пиков КРС на связях Ge–Ge и Ge–Si по методике, описанной в [12, 13], дают 88 и 69% для первого и второго образцов, соответственно.

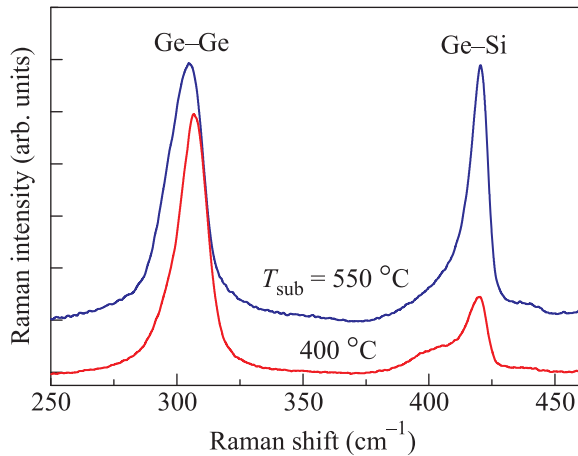


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры комбинационного рассеяния света в образцах с различной температурой заравнивания слоев германия кремнием T_{sub} . Для удобства восприятия спектры сдвинуты по вертикали

Морфология выращенных слоев Ge контролировалась с помощью сканирующей туннельной микроскопии (СТМ). Для этой цели были созданы тестовые образцы с нанокластерами Ge, не покрытыми Si. Анализ показал, что островки Ge имеют форму hut-кластеров (рис. 1b). Плотность нанокластеров составляла $\sim 3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, латеральные размеры $10.5 \pm 2.8 \text{ нм}$ (рис. 1c), их высота была на порядок меньше. Контролируемое заполнение КТ Ge дырками осуществлялось путем введения δ -легированных бором слоев Si на расстоянии 5 нм выше слоев Ge. Плотность атомов бора в каждом δ -легированном слое составляла $7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Для создания омических контактов к сильно легированным слоям кремния использовались пленки Al:Si, нанесенные в высоковакуумной установке.

Коэффициент фотоэлектрического усиления g определялся из измерений темнового тока I_d и генерационно-рекомбинационного шума i_n с помощью соотношения $g = i_n^2 / (4eI_d\Delta f)$, где e – заряд электрона, Δf – ширина полосы частот измерительного тракта [14]. Генерационно-рекомбинационная компонента шумового тока i_n находилась путем вычитания теплового шума из общего шумового тока, измеренного с помощью малошумящего предусилителя тока SR570 и фурье-анализатора спектров SR770 в области частот, где шум является “белым”. Далее, используя следующее соотношение между коэффициентом усиления g и вероятностью захвата дырки в КТ p_c : $g = (1 - p_c/2)/(FNp_c)$, можно вычислить величину p_c [15]. Здесь F – степень заполнения плоскости квантовыми точками, N – число слоев

КТ. Величина F находится из данных СТМ, в нашем случае $F \approx 0.44$.

На рис. 3 показаны зависимости g и p_c от приложенного внешнего смещения U_b . Здесь и далее

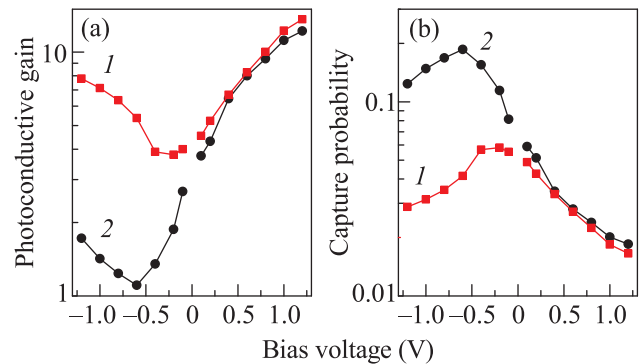


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости коэффициента фотоэлектрического усиления (a) и вероятности обратного захвата дырок в КТ (b) от напряжения для образцов с различной температурой заравнивания слоев КТ германия кремнием. 1 – $T_{\text{sub}} = 400 \text{ °C}$. 2 – $T_{\text{sub}} = 550 \text{ °C}$. Измерения выполнены при температуре 80 К

положительные значения напряжения отвечают ситуации, когда дырки движутся от верхнего электрического контакта в сторону подложки. Отрицательные – наоборот. Из рисунка видно, что формирование резкой гетерограницы приводит к почти пятикратному росту коэффициента фотоэлектрического усиления и такому же падению вероятности захвата дырок в КТ при приложении отрицательных смещений. Поскольку механизмы происхождения темнового тока и внутризонной фотопроводимости в слоях КТ Ge/Si одинаковы и связаны с возбуждением теплом либо светом дырок из связанных состояний в состоянии сплошного спектра, то следует ожидать аналогичного поведения и для фототока.

Измерения спектров фототока проводились при температуре 80 К с помощью ИК фурье-спектрометра Bruker Vertex 70 в режиме Rapid-Scan с разрешением 10 см^{-1} . Излучение глобара падало по нормали к поверхности образцов. Полученные с помощью фурье-преобразования спектры фототока нормировались на спектр излучения глобара, измеренный пироэлектрическим детектором DLATGS. На вставке к рис. 4 показаны типичные спектральные характеристики с максимумом токовой чувствительности в районе 400 мЭВ (длина волны излучения $\sim 3 \text{ мкм}$). Зависимости фототока от напряжения (рис. 4) с хорошей точностью воспроизводят поведение $g(U_b)$: фототок слабо меняется при изменении

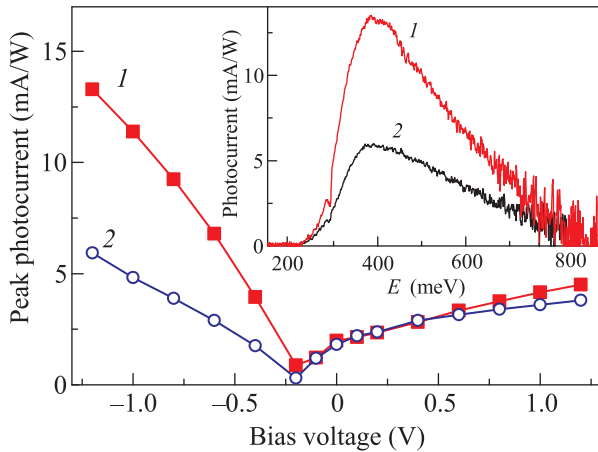


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости фототока, возбуждаемого излучением с длиной волны 3 мкм, от напряжения для образцов с различной температурой заращивания слоев КТ германия кремнием. 1 – $T_{\text{sub}} = 400^\circ\text{C}$. 2 – $T_{\text{sub}} = 550^\circ\text{C}$. На вставке приведены спектральные характеристики фототока при $U_b = -1.2\text{ В}$

T_{sub} в области положительных смещений и растет после формирования резкой гетерограницы в области отрицательных U_b . Это наблюдение позволяет сделать вывод о том, что усиление внутризонного фототока дырок в образце с резкой гетерограницей обусловлено процессом подавления захвата носителей в КТ Ge. Наблюдаемая асимметрия по отношению к полярности приложенного напряжения в настоящее время до конца не ясна и требует дальнейших исследований. По-видимому, это связано с тем обстоятельством, что во втором образце размывается только верхняя гетерограница Ge/Si, через которую и начинается движение дырок после их оптического возбуждения при $U_b < 0$.

В заключение необходимо привести дополнительный экспериментальный аргумент в пользу уменьшения вероятности захвата дырок в КТ Ge с резкими стенками потенциальной ямы. Нами были измерены спектры межзонной фотолуминесценции (ФЛ) в образцах, аналогичных описанным выше, за исключением легирования, которого в экспериментах по ФЛ не проводилось. В спектрах ФЛ (рис. 5) наблюдается линия в области 1.1 эВ, связанная с рекомбинацией носителей заряда в матрице Si с участием поперечного оптического фона. Интенсивность этой линии одинакова для обоих образцов, что говорит об отсутствии дополнительных каналов безизлучательной рекомбинации в гетероструктуре с низкой температурой осаждения кремния T_{sub} . Возбужденные лазером в Si дырки диффундируют в области Ge и захватываются в квантовые точки. Широкая полоса в области энергий 0.7–0.8 эВ обусловлена не прямой в

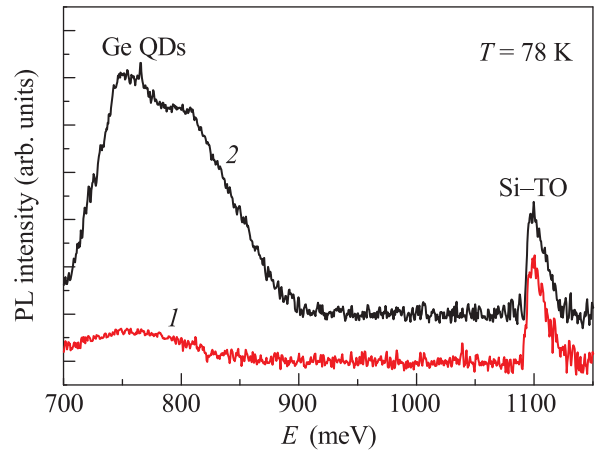


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектры фотолуминесценции, измеренные при $T = 78\text{ К}$. 1 – $T_{\text{sub}} = 400^\circ\text{C}$. 2 – $T_{\text{sub}} = 550^\circ\text{C}$

реальном пространстве рекомбинацией между дырками в островках Ge и электронами, находящимся в Si на гетерогранице Si/Ge [16, 17]. Видно, что интенсивность этой линии на порядок меньше в структуре с $T_{\text{sub}} = 400^\circ\text{C}$, что свидетельствует о меньшей концентрации неравновесных дырок в КТ с резкой гетерограницей и, следовательно, о меньшей вероятности их захвата.

Авторы благодарны В.А. Володину за измерение и обсуждение спектров комбинационного рассеяния света, А.А. Шкляеву за изображение, полученное с помощью сканирующего туннельного микроскопа. Исследование выполнено за счет гранта Российского фонда фундаментальных исследований (проект 16-29-03024).

1. C. Miesner, O. Röthig, K. Brunner, and G. Abstreiter, *Physica E* **7**, 146 (2000).
2. N. Rappaport, E. Finkman, T. Brunhes, P. Boucaud, S. Sauvage, N. Yam, V. Le Thanh, and D. Bouchier, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3224 (2000).
3. В.Ю. Паневин, А.Н. Софронов, Л.Е. Воробьев, Д.А. Фирсов, В.А. Шальгин, М.Я. Винниченко, Р.М. Балагула, А.А. Тонких, P. Werner, B. Fuhrman, and G. Schmidt, *ФТП* **47**, 1599 (2013).
4. А.И. Якимов, В.В. Кириенко, В.А. Тимофеев, А.В. Двуреченский, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 99 (2014).
5. A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, V. A. Armbrister, A. A. Bloskin, and A. V. Dvurechenskii, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 213502 (2015).
6. K. Brunner, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 27 (2002).
7. K. L. Wang, D. Cha, J. Liu, and C. Chen, *Proc. IEEE* **95**, 1866 (2007).
8. C. Lang, D. Nguyen-Manh, and D. J. H. Cockayne, *J. Appl. Phys.* **94**, 7067 (2003).

9. T. U. Schülli, M. Stoffel, A. Hesse, J. Stangl, R. T. Lechner, E. Wintersberger, M. Sztucki, T. H. Metzger, O. G. Schmidt, and G. Bauer, *Phys. Rev. B* **71**, 035326 (2005).
10. Y. Q. Wu, F. H. Li, J. Cui, J. H. Lin, R. Wu, J. Qin, C. Y. Zhu, Y. L. Fan, X. J. Yang, and Z. M. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 223116 (2005).
11. T. I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D. A. A. Ohlberg, and R. S. Williams, *J. Appl. Phys.* **85**, 1159 (1999).
12. В. А. Володин, М. Д. Ефремов, А. С. Дерябин, Л. В. Соколов, *ФТП* **40**, 1349 (2006).
13. В. А. Володин, М. Д. Ефремов, А. И. Якимов, Г. Ю. Михалев, А. И. Нкифоров, А. В. Двуреченский, *ФТП* **41**, 950 (2007).
14. G. Hasnain, B. F. Levine, S. Gunapala, and N. Chand, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 608 (1990).
15. Z. Ye, J. C. Campbell, Z. Chen, E. T. Kim, and A. Madhukar, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1234 (2003).
16. H. Sunamura, N. Usami, Y. Shiraki, and S. Fukatsu, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3024 (1995).
17. U. Denker, M. Stoffel, O. G. Schmidt, and H. Sigg, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 454 (2003).