

Резонансное комбинационное рассеяние света в сверхрешетках GeSi/Si с квантовыми точками GeSi

А. Г. Милехин¹⁾, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков, А. Г. Родригес⁺²⁾, Ж. К. Гальзерани⁺²⁾, Д. Р. Т. Цан*²⁾

Институт физики полупроводников Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

⁺*Departamento de Fisica, Universidade Federal de Sao Carlos, C.P. 676, Sao Carlos, SP, Brasil*

^{*}*Institut für Physik, Technische Universität Chemnitz, D 09107 Chemnitz, Germany*

Поступила в редакцию 29 ноября 2004 г.

Изучено резонансное комбинационное рассеяние света в структурах GeSi/Si с квантовыми точками GeSi, сформированными при различной температуре в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии. Показано, что в спектрах комбинационного рассеяния, записанных вблизи резонансов с электронными переходами E_0 и E_1 в квантовых точках, наблюдаются линии оптических фононов Ge, частоты которых существенно отличаются от соответствующего значения в объемном Ge. При низкой температуре роста структур (300–400 °C) частота фононов уменьшается с ростом энергии возбуждения, что обусловлено комбинационным рассеянием, селективным по размеру квантовых точек, и свидетельствует о неоднородности размера квантовых точек. При повышенной температуре роста (500 °C) обнаружено противоположное поведение зависимости частоты фононов Ge от энергии возбуждения, что объясняется конкурирующим влиянием встроенных механических напряжений в квантовых точках, эффекта локализации оптических фононов и перемешивания атомов Ge и Si в структурах с двумодовым распределением квантовых точек по размеру.

PACS: 63.22.+m, 78.67.Hc, 78.30.Am

Структуры с самоорганизованными квантовыми точками (КТ) Ge/Si обладают серьезным потенциалом для применения в качестве элементной базы фотоприемных и светоизлучающих [1–6], нелинейных оптических [7] устройств, устройств памяти [8] и лазеров [9] благодаря их новым физическим свойствам и совместимости с хорошо развитой кремниевой технологией. Очевидно, что производство таких устройств накладывает жесткие требования на технологию формирования и структурные параметры КТ (такие как размер, форма, состав, напряжения в КТ и т.д.), определяющие энергетический спектр КТ. Понимание колебательных свойств КТ важно как с точки зрения изучения фундаментальных свойств (электрон-фононного рассеяния, теплопроводности) новых физических объектов, так и использования для решения прикладных задач, поскольку колебательный спектр КТ несет информацию об их структурных свойствах. Комбинационное рассеяние света (КРС) является наиболее информативным методом изучения колебательных свойств структур с КТ Ge. В литературе известен ряд работ, посвященных изучению акустических [10–13] и оптических фоно-

нов [13–18] в КТ Ge различного размера и формы. Недавно мы сообщали о наблюдении резонансного КРС, селективного по размеру КТ, в многослойных структурах с КТ Ge пирамидальной формы ("hut" кластеры) [19].

В настоящей работе мы представляем результаты изучения резонансного КРС в структурах с КТ Ge/Si, сформированных в широком диапазоне температур роста и обладающих различными структурными и оптическими свойствами.

Набор из четырех образцов, обозначенных как T300, T400, T500, T600, был последовательно выращен в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии в ростовом режиме Странского-Крастанова при температуре нанесения Ge 300, 400, 500 и 600 °C, соответственно, на подложках Si, ориентированных в направлении (001). Температура роста слоев Si составляла 800 °C и 500 °C до и после осаждения Ge, соответственно. Структуры состояли из пяти последовательно повторяющихся пар слоев КТ Ge и Si номинальной толщиной 1.4 нм и 50 нм, соответственно. Рассеяние света изучалось при температуре 8 К при возбуждении светом лазера на красках Rhodamine 6G, накачиваемого с помощью Ar⁺Kr⁺-лазера, в диапазоне длин волн 457.8–630.1 нм. Спектры резонансного КРС записывались с помощью тройного мо-

¹⁾e-mail: milekhin@thermo.isp.nsc.ru

²⁾A. G. Rodrigues, J. C. Galzerani, D. R. T. Zahn.

нохроматора Т64000 в геометрии обратного рассеяния.

Как уже хорошо известно, спектры КРС структур с КТ GeSi обнаруживают три основные линии на частотах $300 \div 320 \text{ см}^{-1}$, вблизи 420 см^{-1} и 525 см^{-1} , соответствующие оптическим колебаниям (продольным оптическим фононам) Ge–Ge, Ge–Si и Si–Si, соответственно [14–19]. Кроме этого, возможно наблюдение более слабых линий вблизи 300 см^{-1} и 510 см^{-1} , обусловленных вкладом рассеяния второго порядка (2TA_{Si}) и локальных колебаний Si–Si [20], соответственно.

Остановимся более подробно на оптических колебаниях Ge–Ge, локализованных в КТ. Три физических явления оказывают конкурирующее влияние на частоты этих фононов: встроенные механические напряжения (им соответствует высокочастотный сдвиг), перемешивание атомов Ge и Si в КТ и эффект локализации оптических фононов (оба эффекта вызывают низкочастотный сдвиг) [12–19]. На рис.1 приведены результаты экспериментов резонансного КРС, проведенных на исследуемых образцах. Ин-

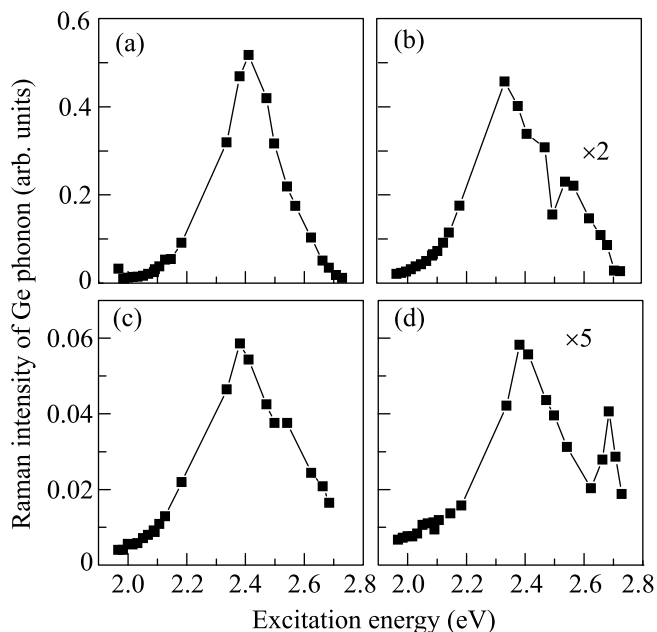


Рис.1. Интенсивность линии КР колебательной моды Ge–Ge в зависимости от энергии возбуждения лазера для структур Т300 (а), Т400 (б), Т500 (с) и Т600 (д)

тенсивность сигнала продольного оптического (ЛО) фонона Ge нормировалась на интенсивность сигнала Si–Si для каждого спектра и приведена на рис.1 как функция энергии возбуждения лазера. Как видно из рисунка, резонансный профиль имеет широкий максимум вблизи 2.4 эВ для всех структур. Образ-

цы, выращенные при повышенной температуре (Т400 и Т500), обнаруживают асимметричное высокочастотное плечо, причем резонансный профиль образца Т600, имеет дополнительный максимум вблизи 2.68 эВ.

Важным представляется поведение частот ЛО фонона Ge в зависимости от энергии возбуждения (рис.2). Положение частоты ЛО фонона Ge для образцов Т300 и Т400 уменьшается с ростом энер-

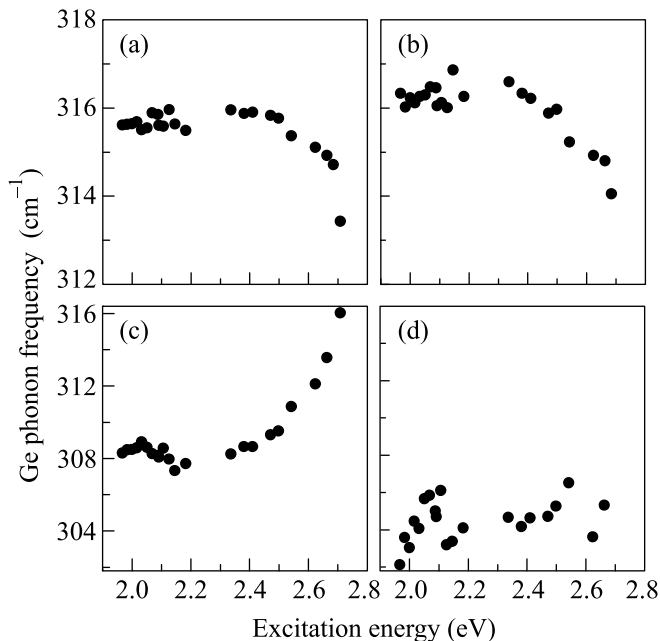


Рис.2. Частота оптических колебательных мод Ge–Ge в КТ как функция энергии возбуждения лазера для структур Т300 (а), Т400 (б), Т500 (с) и Т600 (д)

гии возбуждения (от 2.5 до 2.7 эВ). Этот сдвиг составляет величину $4\text{--}5 \text{ см}^{-1}$ и соответствует значению, наблюдавшемуся ранее для образцов, подобных Т300 [11, 13]. Вместе с тем, одновременно наблюдается увеличение частоты фонона для образца Т500 с 308 см^{-1} до 316 см^{-1} . Для образца Т600 частота ЛО фонона Ge остается неизменной при 305 см^{-1} .

Большое значение полуширины максимума резонансного профиля (до 0.2 эВ) для образцов Т300 и Т400 предполагает наличие вкладов от нескольких электронных резонансов. Во-первых, энергия переходов E_1 в напряженных КТ Ge составляет величину 2.39 эВ, что на 0.16 эВ больше его объемного значения [21]. Во-вторых, энергия резонанса E_0 в смачивающем слое Ge соответствует значению $2.0 \div 2.2 \text{ эВ}$ [22]. Поэтому электронные переходы в смачивающем слое также могут дать вклад в процесс КР. Наконец, энергия E_0 переходов в КТ может достигать значения $2.4 \div 2.6 \text{ эВ}$, что делает возмож-

ным резонансное КРС, селективное по размеру КТ. КРС квантовыми точками малого размера, для которых энергия E_0 переходов лежит при более высоких энергиях, оказывается резонансно усилено при совпадении энергий возбуждающего лазера и локализованных электронных состояний. Эффект локализации оптических фононов оказывается существенно больше для КТ малого размера, что проявляется в уменьшении частоты оптических фононов в спектрах КРС (рис.2), возбужденных при большей энергии лазера (2.5÷2.7 эВ). Направление сдвига частоты фонона определяется отрицательной дисперсией оптических фононов в Ge [23]. Перемешивание атомов в КТ образцов Т300 и Т400 незначительно (содержание Si не превышает величину 15÷20 %) [16] и не приводит к существенному изменению электронных переходов.

В образцах Т500 и Т600 КТ представляют собой твердый раствор GeSi, в котором содержание Si достигает уже значений 33 % и 47 %, соответственно, а КТ имеют размер 25÷100 нм [16]. Для таких значений состава Сердейра и др. [24] определили положение E_1 -переходов в Ge_xSi_{1-x}/Si сверхрешетках как 2.6 эВ и 2.7 эВ, соответственно, что хорошо согласуется с энергетическим положением наблюдаемого плеча вблизи 2.6 эВ и дополнительного пика для образца Т600 (2.68 эВ). При температурах роста 300÷400 °С формируются напряженные КТ малого размера, в которых эффект локализации значителен. Поэтому частоты фононов в КТ определяются уже описанным нами КРС, селективным к размеру КТ [11]. Небольшое увеличение частоты LO фонона в КТ Ge для образца Т400 (около 1 см^{-1}) по сравнению с соответствующим значением для образца Т300 связано, по всей видимости, с увеличением среднего размера КТ при увеличении температуры роста, наблюдаемого в экспериментах по высокоразрешающей электронной микроскопии [16]. Дальнейшее увеличение температуры роста приводит к интенсивному перемешиванию атомов Ge и Si, что для образца Т500 должно приводить к уменьшению частоты колебания Ge–Ge (около 308 см^{-1}). Это и наблюдается в спектрах КРС при относительно малых энергиях возбуждения лазера (до 2.4 эВ), но не объясняет рост частоты фонона (до 316 см^{-1}) с ростом энергии возбуждения до 2.7 эВ.

Такое поведение частоты фонона в зависимости от энергии возбуждения может быть объяснено двумодовым характером распределения КТ по размеру, что имеет место для образцов, выращенных при температурах роста вблизи 500 °С [25]. С ростом температуры роста плотность напряженных КТ малого размера (“hut” кластеров) уменьшается, в то время

как плотность частично срелаксированных КТ GeSi большого размера растет. При температуре роста 500 °С становится значительным вклад КТ твердого раствора GeSi, что приводит к уменьшению частоты фононов (308 см^{-1}) относительного напряженного состояния (316 см^{-1}). Однако при увеличении энергии возбуждения лазера (выше 2.4 эВ) “hut” кластеры вносят резонансный вклад в КРС, что приводит к росту частоты фонона до значения, соответствующего напряженному состоянию в “hut” кластерах. В структурах же, выращенных при более высокой температуре (600 °С) плотность “hut” кластеров существенно снижается, в результате чего вклад в КРС срелаксированными КТ GeSi большого размера превалирует при всех энергиях возбуждения лазера, а частота колебательной моды остается постоянной вблизи 305 см^{-1} . Дополнительно интенсивность колебательных мод твердого раствора КТ оказывается усилена вследствие резонанса при 2.68 эВ (рис.2d). Следует отметить, что с увеличением температуры роста интенсивность резонансных кривых для образцов Т300÷Т400 уменьшается. Это может быть связано как с уменьшением плотности КТ с ростом температуры, так и с уменьшением интенсивности КР колебательных мод Ge–Ge в твердых растворах GeSi.

Таким образом, обнаружен немонотонный характер поведения зависимости частоты колебательных мод Ge–Ge от энергии возбуждения лазера для структур GeSi/Si, выращенных в широком диапазоне температур. При низких температурах роста (300÷400 °С) частоты мод определяются внутренними механическими напряжениями и эффектом локализации оптических фононов. При повышенной температуре роста (500 °С) двумодовое распределение КТ по размеру играет существенную роль. При низких энергиях возбуждения лазера частоты фононов определяются вкладом срелаксированных КТ твердого раствора GeSi большого размера, в то время как при высоких энергиях напряженные КТ малого размера вносят резонансный вклад в КРС. При дальнейшем повышении температуры роста плотность КТ малого размера уменьшается, а частоты фононов не зависят от энергии возбуждения и полностью описываются эффектом перемешивания атомов в КТ.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 02-02-17746).

1. R. A. Mezger, *Semicond. Comp.* **1**, 21 (1995).
2. U. Konig, *Physica Scripta* **T68**, 90 (1996).
3. R. A. Soref, *Thin Sol. Films* **294**, 325 (1997).

4. T. Tashiro, T. Tatsumi, M. Sugiyama et al., *IEEE Trans. Electron. Dev.* **44**, 545 (1997).
5. D. J. Paul, *Thin Sol. Films* **321**, 172 (1998).
6. S. Janz, J.-M. Baribeau, D. J. Lockwood et al., *J. Vac. Sci. Technol.* **A18.2**, 588 (2000).
7. Y. E. Jie, Y. N. Xiong, A. T. S. Wee et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3926 (2000).
8. W. K. Choi, W. K. Chim, C. L. Heng et al., *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2014 (2002).
9. J. L. Liu, G. Jin, Y. S. Tang et al., *Appl. Phys. Lett.* **76**, 586 (2000).
10. M. Cazayous, J. R. Huntzinger, J. Groenen et al., *Phys. Rev.* **B15**, 7243 (2000).
11. А. Г. Милехин, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков et al., *Письма в ЖЭТФ* **73**, 521 (2001).
12. A. Milekhin, N. P. Stepine, A. I. Yakimov et al., *Appl. Surf. Sci.* **175–176**, 629 (2001).
13. A. Milekhin, D. Tenne, and D. R. T. Zahn, in *Quantum Dots and Nanowires*, Eds. S. Bandyopadhyay and H. S. Nalwa, American Scientific Publishers, 2003, p. 375.
14. Н. В. Востоков, С. А. Гусев, И. В. Долгов и др., *Физика и техника полупроводников* **34**, 8 (2000).
15. A. G. Milekhin, A. I. Nikiforov, O. P. Pchelyakov et al., *Physica* **E13/2-4**, 982 (2002).
16. A. G. Milekhin, A. I. Nikiforov, M. Yu. Ladanov et al., *Physica* **E21/2-4**, 464 (2004).
17. М. Я. Валах, Р. Ю. Голиней, В. Н. Джаган и др., *ФТТ* **47**, 54 (2005).
18. P. H. Tan, D. Bougeard, G. Abstreiter et al., *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2632, (2004).
19. А. Г. Милехин, А. И. Никифоров, М. Ю. Ладанов и др., *ФТТ* **46**, 94 (2004).
20. M. I. Alonso and K. Winer, *Phys. Rev.* **B39**, 10056 (1989).
21. S. H. Kwok, P. Y. Yu, C. H. Tung et al., *Phys. Rev.* **B59**, 4980 (1999).
22. R. Schorer, G. Abstreiter, S. de Gironcoli et al., *Phys. Rev.* **B49**, 5406 (1994).
23. C. Trallero-Giner, A. Debernardi, M. Cardona et al., *Phys. Rev.* **B57**, 4664 (1998).
24. F. Cerdeira, A. Pinczuk, and J. C. Bean, *Phys. Rev.* **B31**, 1202 (1985).
25. J. Drucker, *IEEE Journ. of Quantum Electron.* **38**, 975 (2002).