

Оптические фононы в квантовых точках Ge, полученных на Si(111)

А. Б. Талочкин¹⁾, С. А. Тийс

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 6 февраля 2002 г.

Исследовано комбинационное рассеяние света на оптических фононах в квантовых точках Ge, полученных на поверхности Si ориентации (111) с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии. Наблюдалась серия линий, связанных с квантованием фононного спектра. Показано, что частоты фононных мод хорошо описываются с помощью упругих свойств и дисперсии оптических фононов объемного Ge. Определена величина деформации квантовых точек Ge.

PACS: 72.15.Rn

Полупроводниковые квантовые точки (КТ) получают с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) в напряженных структурах: InAs/GaAs, Ge/Si и др. Обычно самосогласованный рост КТ осуществляется на поверхности с ориентацией (100), для которой КТ имеют пирамидальную форму. Отношение высоты пирамиды к размеру основания для КТ InAs в GaAs составляет 1:3, а для КТ Ge в Si – 1:10. Данная форма КТ, а также различие постоянных решетки материала КТ и матрицы приводят к неоднородному распределению механических напряжений в КТ. Для КТ InAs в GaAs они были рассчитаны в [1], а для КТ Ge в Si – в [2, 3]. Деформационное состояние КТ Ge в Si было исследовано экспериментально в [4, 5]. Неоднородное распределение напряжений осложняет анализ спектров электронных состояний и других параметров КТ. Этим обусловлен интерес к КТ, в которых напряжения либо отсутствуют [6], либо однородны. В ряде работ (например, [7, 8]) отмечалось, что эпитаксиальный рост Ge на поверхности Si с ориентацией (111) существенно отличается от ориентации (100). Полученные на Si(111) островки Ge имеют форму усеченной пирамиды с близкими размерами верхней и нижней граней. При такой форме напряженное состояние КТ Ge в матрице Si должно быть близко к случаю однородного гидростатического сжатия. В данной работе исследованы размеры и форма КТ Ge, полученных на Si (111) при субмонослойных покрытиях. В спектрах комбинационного рассеяния света (КРС) на оптических фононах КТ Ge наблюдалась серия линий, связанных с квантованием спектра оптических фононов КТ в направлении роста, определено значение деформации КТ.

Рост КТ Ge на подложках Si с ориентацией (111) проводился в сверхвысоковакуумной камере скани-

рующего туннельного микроскопа (СТМ) производства Omicron, что позволяло *in situ* исследовать форму и размеры островков Ge, а также контролировать состояние поверхности Si и Ge. Пластины Si после стандартной химической обработки помещались в вакуумную камеру, где окончательная очистка поверхности достигалась прогревом Si прямым пропусканием тока при $T = 1250^\circ\text{C}$ и плавном снижении температуры до 400°C . Осаждение Ge на Si(111) – 7×7 проводилось при температурах подложки $T_s = 350 - 500^\circ\text{C}$ со скоростью в диапазоне $0.03 \div 0.0003$ нм/мин. Подготовленная поверхность Si имела при температурах роста Ge $T_s = 350 - 500^\circ\text{C}$ сверхструктуру (7×7). Данная реконструкция поверхности существенно отличается от сверхструктуры (2×1), характерной для поверхности Si(100). Образование ячейки Si(100) – (2×1) связано со смещением атомов поверхностного слоя в плоскости роста и образованием так называемых димеров (с π -связями) [8]. Для сверхструктуры Si(111) – (7×7) характерна перестройка атомов в трех поверхностных слоях [9]. Ячейка (7×7) состоит из двух зеркально симметричных треугольных подъячеек, вдоль границ которых образуются цепочки димеров с π -связями. Атомы поверхностного слоя в одной из половинок ячейки (7×7) оказываются развернутыми на 180° в плоскости (111) относительно их положения в объеме кристалла (stacking fault). По углам ромбовидной ячейки (7×7) имеются глубокие дефекты упаковки вакансионного типа, связанные с отсутствием четырех атомов в регулярной кристаллической структуре 2-го и 3-го слоев. Эти особенности реконструкции определяют различия в формировании КТ Ge на поверхностях Si(100) и (111).

При обычных режимах МЛЭ с относительно большими скоростями осаждения Ge ($3 \div 0.3$ нм/мин) наблюдается послойный рост пленки до критической толщины $\sim 6 \text{ ml} = 3a_0$ (a_0 – постоянная решетки Ge

¹⁾e-mail: tal@thermo.isp.nsc.ru

Рис.1. СТМ-изображения поверхности Si(111) – 7×7 с островками Ge: (а) островки Ge, полученные при температуре 400 С, покрытия Ge ~ 0.7 ml и скорости напыления 0.0005 нм/мин; (б) отдельный островок Ge высотой 6 ml

в направлении (111), ml – моноатомный слой равен 1.3 \AA), после чего начинается образование трехмерных островков Ge. При меньших скоростях осаждения Ge наблюдается рост островков пирамидальной формы с плоской вершиной, имеющих высоту 6 ml. Эти островки в процессе роста увеличиваются в размерах в плоскости (111), сохраняя высоту, и смыкаются в сплошной слой. На рис.1а приведено СТМ-изображение поверхности 210×210 нм с покрытием Ge ~ 0.7 ml, полученное при туннельном токе 0.05 нА. Плотность островков составляет $\sim 2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, причем высота подавляющего числа островков (80%) составляет 6 ml. Количество островков меньшей высоты, 4 ml (обозначен цифрой 2 на рис.1а) и 2 ml (обозначен цифрой 1), несущественно – 18 и 2%, соответственно. Средний размер островков в плоскости (111) составляет ~ 40 нм (основание треугольника), что значительно превышает

максимальную высоту островков, равную ~ 1 нм. На рис.1б показан отдельный островок, высота которого составляет 6 ml.

Заметим, что наличие поверхностной перестройки в виде структуры (7×7) на исходной ростовой поверхности Si оказывает организующее действие на поступающие на поверхность атомы Ge. На это указывают следующие обстоятельства: а) первоначальное накопление атомов Ge происходит в половинках элементарных ячеек структуры (7×7) , б) размер островков в плоскости (111) кратен размеру ячейки (7×7) , поскольку поверхностная структура подложки повторяется на поверхности островка Ge, и в) края треугольных островков Ge заканчиваются по границам ячеек поверхностных структур Si.

Спектры КРС на оптических фононах полученных структур возбуждались линией Ar-лазера с $\lambda = 488$ нм и регистрировались с помощью спектрометра ДФС-52. Чтобы избежать окисления Ge, структуры перегружались из ростовой камеры в погружной криостат с жидким азотом. Измерения спектров КРС при контакте с атмосферой при $T = 300$ К показали, что полное окисление Ge происходит за время ~ 20 мин, так что за время перегрузки ~ 30 с, проводимое в парах жидкого азота, окисление несущественно. На рис.2 представлен спектр КРС на оптиче-

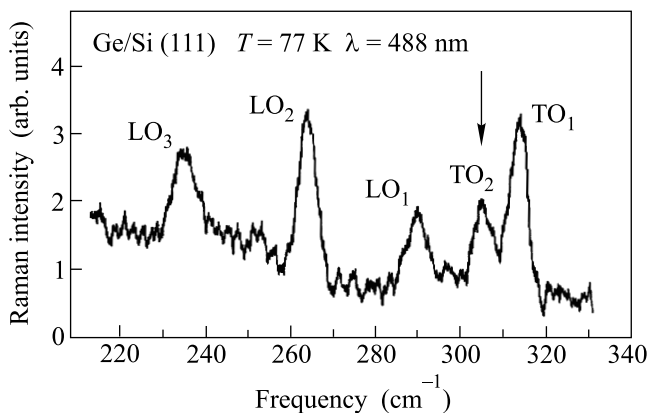


Рис.2. Спектр КРС на оптических фононах КТ Ge, полученных на поверхности Si(111). Спектр получен при $T = 77$ К с длиной волны возбуждения $\lambda = 488$ нм

ских фононах образца Ge/Si (111), СТМ-изображение которого показано на рис.1. В спектре наблюдается серия фононных линий, обозначенных на рис.2 как TO_1 , TO_2 , LO_1 , LO_2 и LO_3 . Положение объемного фонона Ge при $T = 77$ К (305 см^{-1}) отмечено на рис.2 вертикальной стрелкой. Объемные фононы Ge при $k = 0$, регистрируемые в КРС, трехкратно вырождены ($LO + 2TO$). В нашем случае вырождение снима-

ется за счет возникающих механических напряжений, поскольку КТ деформированы из-за различия постоянных решетки Si и Ge ($\Delta a = 4\%$). Кроме того, фононный спектр в направлении (111) квантуется в результате достаточно малой высоты КТ. Эти два фактора определяют наблюдаемые частоты оптических фононов.

Рассмотрим деформации КТ Ge, полученных на Si (111), и их влияние на фононный спектр. Островки Ge деформированы (сжаты) в плоскости роста. Поскольку размер КТ в плоскости существенно больше высоты, влиянием боковых граней можно пренебречь и считать деформацию однородной. Обозначим компоненты тензора деформации в плоскости роста как $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon$. В направлении роста z происходит растяжение Ge. Компонента ε_{zz} находится из граничного условия $\sigma_{zz} = 0$, где σ_{zz} – компонента тензора напряжений. Преобразовав тензор деформации в систему (100) и применив закон Гука, можно найти компоненты тензора напряжений в этой системе. После обратного преобразования и использования граничного условия можно найти $\varepsilon_{zz} = -2\varepsilon_{xx}C_{44}(C_{11} + 2C_{12} - C_{44}) / (C_{11} + 2C_{12} - C_{44}) = 0.92\varepsilon$, где C_{11} , C_{12} и C_{44} – компоненты тензора упругой податливости Ge. Компоненты тензора напряжений в плоскости роста равны $\sigma = \sigma_{xx} = \sigma_{yy} = 3C_{44}\varepsilon(C_{11} + 2C_{12}) / (C_{11} + 2C_{12} - C_{44})$. Данные напряжения расщепляют состояние оптического фонона с $\mathbf{k} = 0$ на синглетное (LO) и дублетное (TO). Выражения для зависимости частот этих фононов от двусонного напряжения в плоскости, перпендикулярной (111), получены в [10]:

$$\Omega_L = \omega_0 + \Delta\Omega_h - (1/3)\Delta\Omega, \quad (1)$$

$$\Omega_T = \omega_0 + \Delta\Omega_h + (2/3)\Delta\Omega, \quad (2)$$

где ω_0 – частота оптических фононов Ge, $\Delta\Omega_h = 2\sigma(S_{11} + 2S_{12})(\mathbf{p} + 2\mathbf{q})/6\omega$ – гидростатическая компонента частотного сдвига, $\Delta\Omega = \Omega_T - \Omega_L = \sigma S_{44}\mathbf{r}/2\omega_0$ – величина LO – TO расщепления, S_{11} , S_{12} и S_{44} – компоненты тензора упругости, а \mathbf{p} , \mathbf{q} и \mathbf{r} – ангармонические постоянные Ge, экспериментально определенные в [11]: $\mathbf{p} = -1.47\omega_0^2$, $\mathbf{q} = -1.93\omega_0^2$, $\mathbf{r} = -1.08\omega_0^2$. После подстановки значений всех параметров выражения (1) и (2) принимают вид $\Delta\Omega_T = \Omega_T - \omega_0 = -1.306\varepsilon\omega_0$, $\Delta\Omega_L = \Omega_L - \omega_0 = -0.322\varepsilon\omega_0$. Величину деформации ε будем использовать в качестве подгоночного параметра.

Высота КТ Ge составляет $h = 3a_0$, что приводит к существенной модификации фононного спектра. Спектр фононов с волновыми векторами \mathbf{k} вдоль направления (111) квантуется в соответствии с условием образования стоячей волны: $k_n = (\pi/h)n$, где

n – целое число. Отсюда видно, что в зоне Бриллюэна существуют по три колебательные моды TO и LO-фононов ($n = 1, 2, 3$). На вставке рис.3 показаны амплитуды колебаний атомов (N) для трех

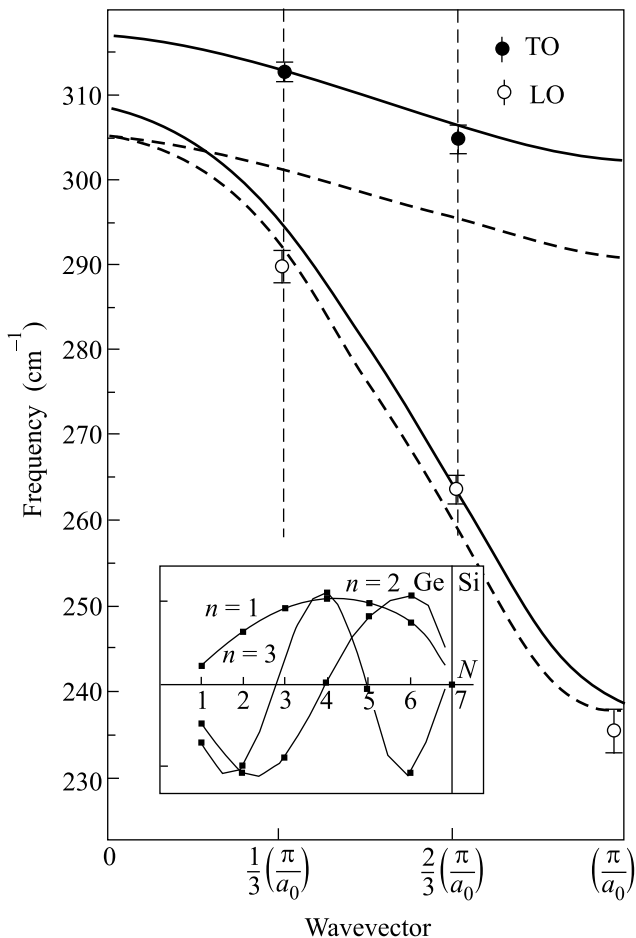


Рис.3. Дисперсионные зависимости оптических фононов Ge в направлении (111), рассчитанные в [12], – штриховые линии. Сплошные линии – дисперсия фононов с учетом деформации Ge. Круглыми символами обозначены значения частот оптических фононов, измеренные в квантовых точках Ge. На вставке показаны зависимости амплитуд колебаний атомов, рассчитанные в модели одномерной цепочки

продольных оптических мод ($n = 1, 2, 3$), рассчитанные в модели одномерной цепочки, состоящей из шести атомов. Считалось, что амплитуда колебаний зануляется при $N = 7$ (то есть на границе с Si), а первый атом имеет оборванную связь (свободная поверхность). Значение силовой постоянной Ge-Si-связи, образованной на гетерогранице, определялось по частоте Ge-Si-колебаний (400 см^{-1}) и оказалось на 40% больше, чем для Ge-Ge-связей. Расчеты показали, что частоты мод практически не различают-

ся от значений, полученных для цепочки, имеющей только Ge–Ge-связи, с закрепленными концами, то есть уменьшение частоты колебаний из-за оборванных связей на поверхности компенсируется ее ростом в результате более жесткой Ge–Si-связи. Отсюда получаем, что частоты квантованных фононных мод должны соответствовать объемной дисперсии фононов Ge.

На рис.3 приведена дисперсия фононов Ge в первой зоне Бриллюэна для направления (111). Кружками обозначены экспериментальные значения фононных частот, соответствующие волновым векторам k_n при $n = 1, 2, 3$. Штриховыми линиями показаны дисперсионные зависимости оптических фононов Ge для направления (111), которые были рассчитаны в [12]. Сплошными линиями показаны зависимости, полученные смещением теоретических кривых [12] в соответствие с выражениями (1) и (2). Это смещение для TO - и LO -фононов составляет $\Delta\Omega_T$ и $\Delta\Omega_L$, соответственно, а величина деформации ϵ определялась из наилучшего совпадения с экспериментальными значениями частот. В результате $\Delta\Omega_T = 11.5 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\Omega_L = 2.8 \text{ см}^{-1}$, а определенная таким образом величина деформации составляет $\epsilon = -0.029 \pm 0.003$. Из рис.3 видно, что экспериментальные значения соответствуют дисперсионным кривым, что позволяет объяснить природу наблюдаемых фононных мод в КТ Ge. Незначительные отклонения частоты LO фононов (рис.3) от дисперсионной зависимости связаны с тем, что теоретические кривые [12] подгонялись под экспериментальные данные, полученные с помощью рассеяния нейтронов. Погрешность этих данных составляла $\sim 2\%$, а наблюдаемые нами отклонения не превосходят этой величины.

Отметим, что определенное значение деформации ($\epsilon = -0.029 \pm 0.003$) несколько отличается от величины -0.04 , которая соответствует псевдоморфному росту Ge на Si и наблюдалась в КТ Ge, полученных на Si (100) [5]. Это отличие мы связываем с реконструкцией поверхности (111) островков Ge. Границы ячеек (7×7) связаны с перестройкой атомов в трех ближайших к поверхности атомных слоях и имеют менее плотную упаковку атомов по сравнению с

объемной структурой внутри ячеек [9]. Это может приводить к большей деформации этих областей и к частичному снятию напряжений в ячейках, так что средняя деформация сохраняется равной -0.04 . Отсюда можно найти, что величина деформации границ ячеек может достигать величины -0.11 .

Таким образом, в работе исследован спектр оптических фононов КТ Ge, полученных на поверхности Si с ориентацией (111). В спектрах КРС на оптических фононах наблюдалась серия линий, связанных с квантованием фононного спектра вдоль направления роста. Показано, что частоты фононных мод хорошо описываются с помощью упругих свойств и дисперсии фононов объемного Ge. Определена величина деформации КТ Ge.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 02-02-17800, # 01-02-16844) и программы МНТП "Физика твердотельных структур" (проект # 2000-3Н).

1. M. Grundman, O. Stier, and D. Bimberg, Phys. Rev. **52**, 11969 (1995).
2. Y. Kikuchi, H. Sugii, and K. Shintani, J. Appl. Phys. **89**, 1191 (2001).
3. А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, ЖЭТФ **118**, 570 (2000).
4. Н. В. Востоков, С. А. Гусев, И. В. Долгов и др., ФТП **34**, 8 (2000).
5. А. Б. Талочкин, В. А. Марков, А. И. Никифоров, С. А. Тийс, Письма в ЖЭТФ **70**, 279 (1999).
6. А. Б. Талочкин, С. П. Супрун, А. В. Ефанов и др., Письма в ЖЭТФ **73**, 337 (2001).
7. U. Kohler, O. Jusko, G. Pietsch et al., Surf. Sci. **248**, 321 (1991).
8. B. Voigtlaender, Surf. Sci. Rep. **43**, 127 (2001).
9. K. Takayanagi, Y. Tanishiro, S. Takahashi, and M. Takahashi, Surf. Sci. **164**, 367 (1985).
10. И. И. Новак, В. В. Баптизманский, Л. В. Жога, Оптика и Спектроскопия **43**, 252 (1977).
11. F. Cerdeira, C. J. Buchenauer, F. H. Pollak, and M. Cardona, Phys. Rev. **B5**, 580 (1972).
12. W. Weber, Phys. Rev. **B15**, 4789 (1977).