

## КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНАХ В Si-Ge-Si-СТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ТОЧКАМИ

А.Б.Талочкин<sup>1)</sup>, В.А.Марков, С.П.Супрун, А.И.Никифоров

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН  
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 11 июля 1996 г.

Исследовано комбинационное рассеяние света на оптических фононах в Si-Ge-Si-структурах с псевдоморфными квантовыми точками германия. Наблюдалось резонансное усиление интенсивности рассеяния на  $E_0$  ( $\Gamma_7-\Gamma_8$ )-переходах. Показано, что энергия резонанса возрастает на  $\sim 0.3$  эВ по сравнению с двумерным случаем в результате образования слоя квантовых точек германия.

PACS: 72.15.Rn

Интерес к получению и исследованию полупроводниковых квантовых точек ( $QD$ ) обусловлен появлением в них новых особенностей электронного спектра, которые не наблюдаются в системах более высокой размерности ( $3D$ ,  $2D$  и  $1D$ ). В результате квантования движения носителей во всех направлениях спектр становится дискретным с  $\delta$ -образной функцией плотности состояний, а также может существенно возрастать энергия связи экситона и сила осциллятора для межзонных переходов [1, 2]. Интенсивно исследуются полупроводниковые  $QD$ , полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) в системах InAs-GaAs, Ge-Si и др. Так, электронные переходы наблюдались в спектрах люминесценции [3, 4], эффекты, связанные с протеканием тока через состояния  $QD$  исследовались в работах [5, 6]. В данной работе исследовано комбинационное рассеяние света (КРС) на оптических фононах в Si-Ge-Si-структурах, в которых псевдоморфные  $QD$  были получены в процессе МЛЭ. Наблюдение резонансного усиления при КРС на оптических фононах позволило определить энергию прямых зона-зонных переходов в  $QD$  и ее изменение по сравнению с двумерным случаем.

В результате значительной разницы постоянных решеток Ge и Si ( $\Delta a = 4\%$ ) псевдоморфный двумерный рост Ge на Si при МЛЭ сохраняется до критической толщины пленки германия  $h_c$ . По достижению этого значения механические напряжения частично релаксируют за счет введения дислокаций несоответствия, а далее происходит самосогласованный рост трехмерных островков ( $QD$ ) по механизму Странского-Крастанова [4]. Обычно Ge  $QD$  получают при температурах Si-подложки  $T_s = 500 \div 700^\circ\text{C}$ , для которых  $h_c$  составляет  $2 \div 4$  моноатомных слоя (ml) и характерный размер срелаксированных  $QD$  в плоскости подложки  $\sim 1000 \text{ \AA}$  [4, 7]. В данной работе были получены  $QD$  Ge в псевдоморфном состоянии существенно меньших размеров ( $\sim 100 \text{ \AA}$ ). Это достигалось понижением температуры роста  $T_s$  до  $200 \div 300^\circ\text{C}$ . С понижением  $T_s$  возрастает  $h_c$  (в нашем случае до  $10 \div 15 \text{ ml}$ ,  $1 \text{ ml} = 1.3 \text{ \AA}$ ) и резко уменьшается диффузионная длина адатомов германия, что обеспечивает образование

<sup>1)</sup>e-mail: shumsky@isphnt.nsk.su

трехмерных псевдоморфных островков Ge на начальных стадиях роста. Исследованные Si-Ge-Si-структуры выращивались в МЛЭ установке на подложках кремния с ориентацией (001). После предварительной химической обработки подложки помещались в ростовую камеру, где проводилась их очистка при температуре 800°C в слабом потоке Si в течение 15 минут. В результате очистки образуется атомарно-чистая поверхность со сверхструктурой (2 × 1). Затем выращивался буферный слой Si толщиной 1000 Å. Потоки Si и Ge создавались электронно-лучевыми испарителями, обеспечивающими характерную скорость роста 5 Å/мин. В процессе роста Ge наблюдались до 4 осцилляций зеркального рефлекса дифракции быстрых электронов, в момент перехода к трехмерному росту осцилляции исчезают. После нанесения германия структура покрывалась слоем Si толщиной 100 Å. Полученные образцы представляли собой ступенчатые структуры с различной эффективной толщиной Ge, которая получалась с помощью заслонки, вводимой в поток Ge в процессе роста. Эффективная толщина Ge изменялась в диапазоне 0 ÷ 40 ml с шагом 2 ÷ 4 ml для малых толщин и 10 ml для больших (> 20 ml). Размеры QD в полученных структурах оценивались с помощью электронной микроскопии (ЭМ) высокого разрешения [5].

Спектры КРС на оптических фононах возбуждались линиями Ar-лазера при температурах 77 и 300 K и регистрировались с помощью спектрометра ДФС-52. На рис.1 представлены спектры КРС Si-Ge-Si-структур с различной эффективной толщиной слоя Ge ( $T_s = 200^\circ\text{C}$ ). Линия  $305\text{ см}^{-1}$  обусловлена рассеянием второго порядка на TA-фононах Si, она присутствует с одинаковой интенсивностью во всех спектрах. Начиная с толщины 5 ÷ 6 ml (рис.1), в спектре наблюдается линия ( $316\text{ см}^{-1}$ ), связанная с рассеянием на оптических фононах Ge. Частота фонона линейно зависит от деформации германия. Объемное значение показано на рис.1 стрелкой. Наблюдаемый сдвиг частоты оптического фонона относительно объемного значения ( $16\text{ см}^{-1}$ ) соответствует двуслойной деформации Ge равной 4% или давлению ~ 50 кбар. Из рис.1 видно, что Ge находится в псевдоморфном состоянии для толщин 6, 8 и 12 ml. Начиная с 15 ml, наблюдается релаксация, то есть фононная линия смещается в низкочастотную область, а при 20 ml в спектре (рис.1) проявляется линия, частично срелаксированного Ge и псевдоморфная фаза уже отсутствует. Из рис.1 видно, что интенсивность рассеяния резко зависит от эффективной толщины, в то время как механические напряжения Ge не изменяются. Наблюдаемые особенности обусловлены изменением электронного спектра в зависимости от размера QD.

Нами исследованы резонансные зависимости КРС на оптических фононах с использованием дискретных линий Ar-лазера в диапазоне энергий возбуждающего света 2.4 ÷ 2.6 эВ. Эти зависимости представлены на рис.2 для образцов Si-Ge-Si-структур с эффективной толщиной Ge – 6, 8 и 12 ml. По вертикальной оси отложена интенсивность КРС, отнесенная к единице рассеивающего объема. Сплошные кривые, показанные на рис.2, проведены через экспериментальные точки. Видно, что зависимости, полученные для образцов с QD (a и b) имеют резонансный характер. Максимум для одного расположен при  $\hbar\omega = 2.5\text{ эВ}$ , для другого – сдвинут в высокочастотную область. Для третьего образца (рис.2c) квантовые точки смыкаются в сплошной слой Ge и резонансная зависимость в области 2.4 ÷ 2.6 эВ проявляет характерный спад, соответствующий пику при  $\hbar\omega < 2.4\text{ эВ}$ .

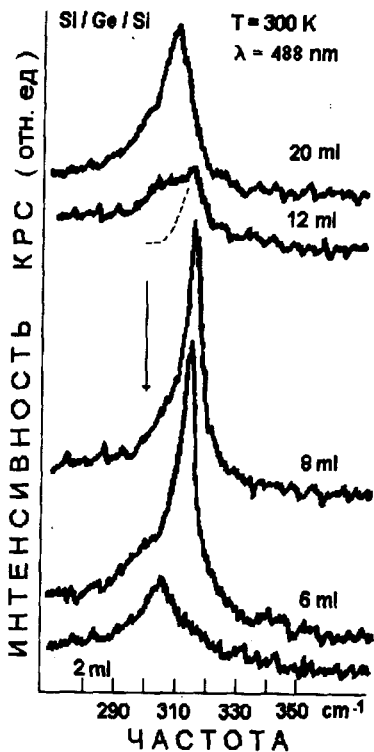


Рис.1. Спектры комбинационного рассеяния света на оптических фонах в Si-Ge-Si-структурах с эффективной толщиной германия 2, 6, 8, 12 и 20 монослоев

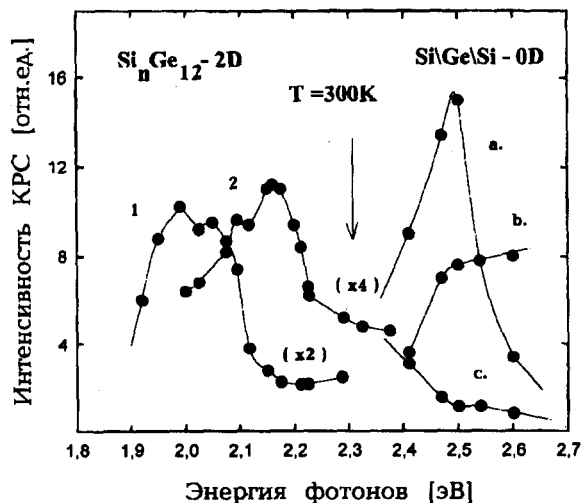


Рис.2. Резонансные зависимости КРС на оптических фонах Si-Ge-Si-структур с различной эффективной толщиной слоя германия: а - 8ml, б - 6ml, с - 12ml. Резонансные зависимости КРС на оптических фонах Ge 1 и 2, полученные от сверхрешеток  $Si_nGe_{12}$  (1 -  $n = 4$ ml, 2 -  $n = 12$ ml) в работе [8]

На рис.2 приведены также резонансные зависимости для оптических фононов Ge, полученные от сверхрешеток  $Si_nGe_{12}$  (для кривой 1 -  $n = 4$ ml, для кривой 2 -  $n = 12$ ml) в работе [8]. Эти зависимости сшивались с нашими данными по интенсивности КРС на объемном Ge (100), приведенной в [8] для  $\lambda = 514$ nm. Интенсивность нормировалась на единицу длины рассеяния  $(2\alpha)^{-1} = 250 \text{ \AA}$ , где  $\alpha$  - коэффициент поглощения Ge для возбуждающего света. Первый образец имеет ненапряженные слои Ge, деформация которого во втором составляет 2%. В [8] показано, что наблюдаемый резонанс связан с  $E_0$ -краем прямыми переходами из валентной зоны ( $\Gamma_8$ ) в зону проводимости ( $\Gamma_7$ ), причем электронные (дырочные) состояния локализованы в слоях Ge. Энергия  $E_0$ -края в объемном Ge составляет 0.9эВ, в 2D-случае энергия  $\Gamma_7$  состояния растет из-за квантования движения электронов вдоль оси сверхрешетки (рис.2, кривая 1, 2). Вклад в изменение  $E_0$ -края дает в основном сдвиг электронного состояния ( $\Gamma_7$ ), смещение же дырочного уровня примерно на порядок меньше из-за разницы эффективных масс электронов и дырок ( $m_e = 0.04m_0$ ,  $m_h = 0.37m_0$ , где  $m_0$  - масса свободного электрона). В результате деформации в 2%  $E_0$ -край сдвигается на 0.15эВ (рис.2, кривая 2). Отсюда положение мак-

симума резонансной зависимости в случае  $2D$  псевдоморфного Ge (деформация 4%) должно составлять 2.3 эВ. Это положение отмечено на рис.2 стрелкой. Из вида приведенных на рис.2 резонансных зависимостей (кривая 1, 2) следует, что вблизи  $E_0$ -края в КРС доминируют вклады от трехзонных процессов (см., например, [9]). Это означает, что положение  $E_0$ -края находится по энергии на  $0.05 \div 0.1$  эВ ниже максимума резонансной зависимости.

Наблюдаемые особенности в резонансных зависимостях для образцов с  $QD$  (рис.2, *a* и *b*) связаны с  $E_0$ -краем, энергия которого растет по сравнению с  $2D$ -случаем в результате квантования движения электронов в остальных двух направлениях  $x$  и  $y$ . Сдвиг для образца *a* составляет  $0.25 \div 0.3$  эВ. По оценкам ЭМ в этой структуре  $QD$  имеют характерные размеры: высота  $d_x \sim 30$  Å, размер в плоскости  $d_x = d_y \sim 8 \div 100$  Å. Рассмотрим положение уровня  $\Gamma_7$  в простейшей модели  $QD$  - "ящик с бесконечными стенками". Система энергетических уровней частицы с массой  $m$  определяется выражением [10]:

$$E = E^{2D} + E^{0D} = (\pi^2 \hbar^2 / 2m)(n_1 / d_x)^2 + (\pi^2 \hbar^2 / 2m)[(n_2 / d_x)^2 + (n_3 / d_y)^2], \quad (1)$$

где  $n_1, n_2, n_3$  - целые числа. Для основного состояния  $n_1 = n_2 = n_3 = 1$ . Первый член определяет сдвиг энергии при переходе от объемного состояния к двумерному ( $2D$ ), второй - от  $2D$  к  $0D$ . Как показали теоретические расчеты [11] и эксперимент [8], из-за влияния электронных состояний Si и границы раздела Si-Ge зависимость  $E^{2D}$  от  $d_x$  существенно отличается от (1) для  $d_x < 20$  ml. Экспериментальное положение  $E^{2D}$  слабо зависит от  $d_x$  в диапазоне  $6 < d_x < 15$  ml. Отсюда для нашего случая можно считать  $E^{2D} = 2.2 \div 2.25$  эВ. В то же время, результаты расчета и эксперимент [8] для  $d_x > 25$  ml совпадают со сдвигом, полученным с помощью выражения (1). Поэтому, для  $QD$  Ge не слишком малого размера ( $d_x, d_y$ ) второй член  $E^{0D}$  в выражении (1) может быть достаточно хорошим приближением. Согласно (1), наблюдаемый сдвиг  $E^{0D} = 0.25 \div 0.3$  эВ соответствует  $d_x = d_y = 80 \div 90$  Å. Это значение вполне согласуется с данными ЭМ. Для второго образца (рис.2*b*) резонансная зависимость имеет вдвое меньшую амплитуду и максимум расположен в районе 2.6 эВ. Этому положению, согласно (1), соответствует размер  $QD$   $d_x = d_y = 70$  Å. Соотношение между размерами  $QD$  для образцов *a* и *b* согласуется с эффективной толщиной слоев Ge.

Обращает на себя внимание поведение амплитуды резонансных зависимостей. Из рис.2 видно, что при уменьшении размера  $QD$  амплитуда падает вдвое с изменением формы резонансной зависимости. Возможная причина этого состоит в том, что для большей части  $QD$  из распределения по размерам образца *a* выполняется условие двойного резонанса. Энергия возбуждающего (входной канал) и рассеянного (выходной канал) света совпадает с энергией прямых переходов. Это условие выполняется, когда расщепление между дырочными уровнями пространственного квантования равно энергии фонона и основной вклад в КРС дают трехзонные процессы, для которых переходы между ними происходят с испусканием фонона. Расстояние по энергии между дырочными уровнями с  $n_1 = n_2 = n_3 = 1$  и  $n_1 = n_2 = 1, n_3 = 2$ , согласно (1), для  $d_x = d_y = 80 \div 90$  Å (образец *a*) составляет  $\Delta_h = 37 \div 45$  мэВ, энергия же оптического фонона равна 40 мэВ. Отметим, что разрыв уровней валентных зон Si и псевдоморфного Ge составляет 0.5 эВ [11] и учет в (1) такой величины потенциального барьера для дырок Ge приводит к несущественным энергетическим поправкам. Для второго образца (рис.2*b*)  $\Delta_h = 60$  мэВ. Большая часть

$QD$  для него не удовлетворяет условию двойного резонанса и интенсивность КРС на них падает по сравнению с первым, в то же время незначительная часть  $QD$  в распределении с  $\Delta_h = 40$  мэВ может давать вклад в резонансную зависимость, сопоставимый с основной частью  $QD$ . Этот вклад должен приводить к уширению резонансной зависимости в низкочастотную область, что и наблюдается экспериментально (рис.2b). В результате, учет спектра дырочных состояний  $QD$  позволяет объяснить изменение формы наблюдаемых резонансных зависимостей.

Таким образом, обнаруженные особенности в резонансных зависимостях КРС на оптических фонах позволяют определять характерные размеры квантовых точек в Si-Ge-Si-структурах по сдвигу энергии  $E_0$  резонанса.

Работа выполнена в рамках Российской государственной программы "Поверхностные атомные структуры" (проект 95-2.19), а также при поддержке проекта 129-57-2 ГНТП "Перспективные технологии микро- и нанозлектроники".

- 
1. M.Grundman, J.Christen, N.N.Ledentsov et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
  2. E.L.Ivchenko, A.V.Kavokin, V.P.Kochereshko et al., Superlattices Microstruct. **12**, 317 (1992).
  3. М.В.Максимов, А.Ю.Егоров, А.Е.Жуков и др., ФТП **28**, 1046 (1994).
  4. P.Schittenhelm, M.Gail, and G.Abstreiter, J. Cryst. Growth **157**, 260 (1995).
  5. А.И.Якимов, В.А.Марков, А.В.Двуреченский, and О.Р.Рчеляков, J. Phys. C **6**, 2573 (1994).
  6. А.И.Якимов, В.А.Марков, А.В.Двуреченский, О.П.Пчеляков, Письма в ЖЭТФ **63**, 423 (1996).
  7. H.Sunamura, S.Fukatsu, N.Usami, and Y.Shiraki, J. Cryst. Growth **157**, 265 (1995).
  8. R.Shorer, G.Abstreiter, H.Kibel, and H.Presting, Phys. Rev. B **50**, 16211 (1994).
  9. М.Кардона, Г.Гюнтеродт, *Рассеяние света в твердых телах*, ч.2, М.: Мир, 1984 (*Light Scattering in Solids II*, Ed. M.Cardona, G.Guntherodt, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1982).
  10. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, *Квантовая механика*, М.: Наука, 1974.
  11. S.Froyen, D.M.Wood, and A.Zunger, Phys. Rev. B **37**, 6893 (1988).