

©1995 г.

## ОПТИЧЕСКИЕ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СВЕРХРЕШЕТОК ФИБОНАЧЧИ РЬS–С, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ ИМПУЛЬСНОГО ЛАЗЕРНОГО НАПЫЛЕНИЯ

*С.Ф.Музитин, Л.Г.Бакуева, В.И.Ильин,  
О.В.Рабизо, Л.В.Шаронова\**

Государственный технический университет,  
195251, Санкт-Петербург, Россия

\*Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,  
194021, Санкт-Петербург, Россия

(Получена 3 августа 1993 г. Принята к печати 16 августа 1994 г.)

Изготовлены сверхрешетки, состоящие из элементов двух типов — пленок сульфида свинца и алмазоподобных пленок углерода. Каждый образец включал 11 пар этих элементов. Толщина пленок РbS составляла 60 или 120 Å, пленок С — 5 Å, последовательность их расположения в образце предполагала выполнение для толщин закона чисел Фибоначчи. Исследованы образцы, полученные на подложках из ВаF<sub>2</sub>, Si, стекла и слюды. Часть образцов была снабжена Al-контактами.

Измерялись оптические спектры в ультрафиолетовой, видимой, инфракрасной областях при комнатной температуре. Установлено, что в них проявляются особенности, обусловленные нерегулярной структурой сверхрешетки. Электрические измерения (вольт-амперные, вольт-фарадные, частотные характеристики) также свидетельствуют о формировании свехрешеток Фибоначчи.

### 1. Введение

Наряду с активным изучением периодических сверхрешеток устойчивое внимание привлекают непериодические сверхрешетки как объекты, в которых проявляются андерсоновская локализация. Создание и экспериментальное исследование таких сверхрешеток позволяет произвести экспериментальную проверку моделей Андерсона и Лифшица для неупорядоченной среды [1]. Кроме того, создание искусственных непериодических сред позволяет изготовить объекты, занимающие промежуточное положение между периодическими (упорядоченными) и непериодическими. Так, квазипериодическая сверхрешетка Фибоначчи является одномерным аналогом квазикристалла. Электронные состояния в квазипериодической сверхрешетке обладают рядом интересных свойств, не имеющих своего аналога в периодических

сверхрешетках. К ним можно отнести самоподобие энергетического спектра, состоящее в том, что энергетический спектр делится на три подзоны, каждая из которых делится на свои три подзоны и т.д. [2]. В результате спектр плотности энергетических состояний приобретает характерные особенности, связанные с тем, что в нем чередуются по определенному закону узкие и широкие ступеньки.

## 2. Объект исследования

В данной работе объектом исследования являются изготовленные методом импульсного лазерного напыления сверхрешетки PbS-алмазоподобная пленка углерода. Ранее мы сообщали о получении и использовании такой пленки [3]. Изучаемая решетка Фибоначчи (рис. 1) содержала два структурных элемента. Элемент A состоял из слоя сульфида свинца толщиной 60 Å и алмазоподобного слоя углерода толщиной 5 Å, элемент B — из слоя сульфида свинца толщиной 120 Å и алмазоподобного слоя углерода толщиной 5 Å. Слои PbS образуют квантовые ямы, а алмазоподобный слой C является барьером. Использование PbS в качестве материала, образующего квантовую яму, удобно, поскольку позволяет изучать энергетический спектр сверхрешетки при нормальном падении света относительно плоской решетки, так как энергетическая зона сульфида свинца является непараболической.

Далее, по закону последовательности чисел Фибоначчи, где каждый последующий член равен сумме двух предыдущих, при условии, что заданы первые два,

$$S_n = S_{n-2} + S_{n-1}, \quad (1)$$

была создана структура из элементов A и B:  $S_1 = BA$ ,  $S_2 = ABA$ ,  $S_3 = BAABA$ , ...;  $S_\infty = ABAABAABAABA...$  В настоящей работе

Element A    Element B

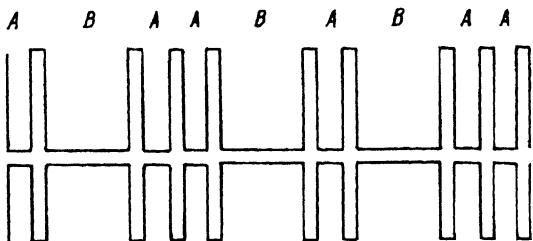
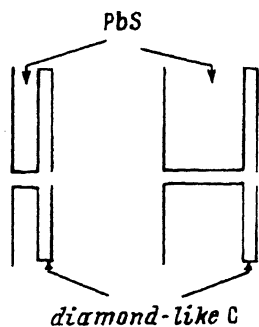


Рис. 1. Схематическое изображение сверхрешетки Фибоначчи сульфид свинца-алмазоподобный слой углерода.

были получены сверхрешетки Фибоначчи с 11 слоями углерода и 11 слоями PbS, из которых 7 имели толщину 60 Å и 4 толщину 120 Å. Сверхрешетки напылялись на подложки BaF<sub>2</sub>, Si, стекло, слюда. Контроль толщины пленок производили по количеству импульсов лазера с предварительной калибровкой по напыленным толстым пленкам.

Сверхрешетка Фибоначчи состоит из определенной последовательности квантовых ям и барьеров, чередующихся непериодическим образом. Потенциальные ямы, сформированные слоями PbS двух различных толщин, и потенциальные барьеры постоянной ширины, образованные слоями алмазоподобного углерода, создают достаточно сложную картину энергетических уровней. Ранее были получены и исследованы сверхрешетки Фибоначчи с постоянной шириной ямы и переменной шириной барьера [4,5]. Расчет по модели Кронига-Пенни [6] показывает, что спектр плотности энергетических состояний содержит ряд запрещенных полос. Ширина и положение этих полос меняются в различных частях спектра, но одна особенность плотности состояний спектра, которая является следствием самоподобия [7], заметна достаточно хорошо. Она состоит в том, что между двумя широкими ступенями в спектре располагаются две более узкие.

### 3. Оптические свойства

Исследованы спектры оптического пропускания сверхрешеток в ультрафиолетовой, видимой и инфракрасной областях при комнатной температуре. Наиболее информативны спектры в инфракрасной области. В этой области возможны внутризонные переходы в сульфиде свинца и межзонные переходы там же между первыми уровнями. Спектр поглощения в сверхрешетке, выращенной на свежем сколе BaF<sub>2</sub>, приведен на рис. 2. Обращает на себя внимание, что в спектре чередуются узкие и широкие ступени. Причем весь спектр разбит широкими степенями на несколько частей. Внутри каждой части присутствует несколько узких ступеней. Широкие ступени разбивают весь спектр примерно на четыре части: 0.1–0.2, 0.2–0.3, 0.3–0.45, 0.45–... эВ. Высота ступеней уменьшается при увеличении энергии, и кривая становится более сглаженной при энергиях более 0.45 эВ, что согласуется с характерным видом спектра [6]. Так, если сравнить участки спектра 0.19–0.30 эВ и 0.31–0.45 эВ, то видно похожее расположение ступеней при энергиях 0.20 и 0.23 эВ на одном из них и 0.33 и 0.37 эВ на другом. Аналогичные ступени можно обнаружить и на других участках спектра: 0.11 и 0.13 эВ, а также 0.47 и 0.51 эВ. Такие особенности являются отражением самоподобия энергетического спектра [7] и подтверждением того факта, что действительно получена сверхрешетка Фибоначчи.

Точный расчет плотности состояний в данной сверхрешетке мы не производили, однако представление о характере спектра можно получить из анализа расположения уровней в широкой и узкой ямах. Алмазоподобная пленка имеет запрещенную зону, существенно превышающую запрещенную зону сульфида свинца. В результате высота потенциального барьера в решетке оказывается настолько большой, что взаимодействие волновых функций в соседних ямах становится незначительным. Во всяком случае расчет, проведенный для случая двух ям, разделенных таким же барьером, дает величину расщепления от 8

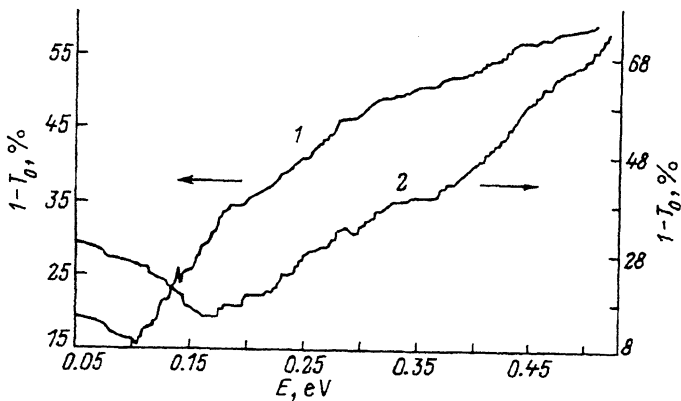


Рис. 2. Оптические спектры сверхрешеток Фибоначчи, полученные вычитанием коэффициента пропускания  $T_0$  из уровня 100%: 1 — сверхрешетные вычитанием  $\text{BaF}_2$ , 2 — сверхрешетка на стеклянной подложке.

до 12 мэВ для высоко расположенных уровней. Для нижних уровней расщеплением можно пренебречь, поскольку его величина находится в пределах точности измерения. Вследствие того что при выбранном способе организации решетки Фибоначчи все барьеры имеют одну и ту же ширину, а уровни энергии в узких ямах располагаются почти вдвое дальше друг от друга по энергии, чем в широких, в решетке можно выделить отдельные участки, на которых квантовые ямы связаны более сильно, чем на других. Так, из рис. 1 видно, что широкие ямы, расположенные через одну узкую яму, связаны сильнее за счет резонансных состояний, чем широкие ямы, расположенные через две узкие ямы. Две расположенные рядом ямы служат как бы барьером, разделяющим широкие ямы. Две широкие ямы, расположенные через одну узкую друг от друга, оказываются как бы изолированными от остальной части решетки. Большая доля электронов при умеренном уровне легирования находится только в широких ямах, куда электроны перетекают при выравнивании уровней Ферми.

Между спектром пропускания и функцией плотности состояний имеется непосредственная связь [8,9]. Спектр пропускания света с поляризацией, при которой вектор напряженности электрического поля параллелен плоскости решетки, если при этом имеется возможность для поглощения, напрямую отражает основные особенности функции плотности энергетических состояний. В сульфиде свинца из-за непараболической зависимости энергии от волнового вектора такая возможность имеется. Особенности в спектре пропускания являются следствием внутрizonных и межзонных переходов в сверхрешетке. Полная толщина слоев, расположенных в узких ямах, примерно равна полной толщине слоев, расположенных в широких ямах. Следовательно, их вклад в спектр поглощения должен быть примерно одинаков. Ступени, расположенные при значениях энергии менее 0.41 эВ, обусловлены целиком внутрizonными переходами, а при более высоких энергиях — к ним добавляются межзонные переходы. При образовании сверхрешетки происходит перераспределение электронов между широкими и узкими ямами. Электроны собираются на нижних уровнях широкой ямы, а первый уровень узкой ямы опустошается. Это приводит к появлению

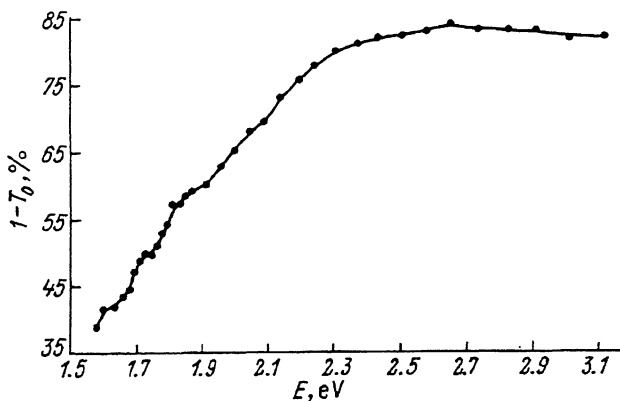


Рис. 3. Оптический спектр сверхрешетки Фибоначчи на подложке  $\text{BaF}_2$  в видимой и ультрафиолетовой областях спектра, полученный вычитанием коэффициента пропускания  $T_0$  из уровня 100%.

электрических полей и взаимному смещению одной ямы относительно другой. Такая перезарядка влечет за собой и изменение спектра плотности состояний, и появление отличий его от спектра, рассчитанного по модели Кронига-Пенни. Оптические переходы с поглощением света возможны в широких ямах. Переход с уровней в широкой яме на уровни узкой ямы также возможен, поскольку решетка обладает общими для всех слоев уровнями.

Ступени в области больших энергий ( $\geq 1.6$  эВ) расположены приблизительно равномерно по энергии и не имеют ярко выраженного характера (рис. 3). Это также согласуется с видом энергетического спектра решетки Фибоначчи [3], в котором с ростом энергии особенности сглаживаются, и спектр становится непрерывным.

Характерные проявления, присущие решетке Фибоначчи, хорошо заметны в спектре пропускания решетки, выращенной на аморфной подложке. На рис. 1 кривая 2 представляет собой спектр пропускания решетки, выращенной на стекле. В спектре наблюдается большое количество ступенек, он более «насыщен» сериями ступенек, в которых чередуются широкие и узкие ступени. Это подтверждает тезис о самоподобии энергетического спектра сверхрешеток Фибоначчи, т.е. о чередовании ступеней по определенному закону. Так, в группе ступеней в диапазоне от 0.17 до 0.22 эВ имеются три одинаковые, между которыми располагаются более мелкие ступеньки. Обращают на себя внимание две повторяющиеся группы из трех ступенек в диапазоне 0.08–0.12 эВ, три повторяющиеся группы ступенек в областях энергий 0.22, 0.26 и 0.30 эВ, а также три повторяющиеся группы ступеней, разделенных большими ступенями в областях энергий 0.43, 0.47, 0.51 эВ. Энергетическое положение ступенек обусловлено различными внутри- и межзонными переходами носителей в узкой и широкой квантовых ямах, образованных слоями сульфида свинца. Полученный при измерении спектр поглощения оказывается более сложным, чем рассчитанный по модели Кронига-Пенни, поскольку он включает также возможные межзонные и межуровневые переходы.

Сам факт роста качественных монокристаллических слоев на аморфной подложке при нанесении их методом импульсного лазерного

напыления не является удивительным [10,11]. При росте пленок на ориентирующей подложке, например,  $\text{BaF}_2$ , сказывается разница постоянных кристаллической решетки подложки и пленки. Как следствие, проявляются напряжения и дислокации несоответствия. Напротив, аморфная структура подложки, по-видимому, не «навязывает» порядок роста пленки при мгновенной кристаллизации каждой порции наносимого материала, особенно при росте тонких слоев.

#### 4. Электрические свойства

Исследованы вольт-амперные, вольт-фарадные и амплитудно-частотные характеристики. На рис. 4 представлена вольт-амперная характеристика при протекании тока вдоль оси сверхрешетки при температуре 110 и 300 К. Сверхрешетка выращена на поверхности слоя алюминия, расположенного на слюде. Верхний электрод — также напыленный слой алюминия.

Вольт-амперная характеристика оказалась несимметричной при температуре 300 К. Это, возможно, связано как с асимметрией самой решетки при разных полярностях напряжения, так и с различными условиями на верхнем и нижнем контактах: нижний контакт имеет слой окисла на границе с решеткой, а верхний его не имеет, так как алюминий нанесен непосредственно на алмазоподобную пленку. Ветвь вольт-амперной характеристики при температуре 300 К (кривая 2) и аналогичная ветвь при 110 К (кривая 4) имеют явно выраженный экспоненциальный вид. Зависимость при напряжениях более 0.2–0.3 В имеет характер

$$I \approx I_0 \exp\left(\frac{U}{U_0}\right), \quad (2)$$

где  $U$  — приложенное напряжение, а  $U_0$  — постоянная. При температуре 300 К  $U_0 = 0.41$  В, а при 110 К имеются два участка: на участке 0.3–0.5 В  $U_0 = 0.324$  В, а на участке 0.5–0.75 В  $U_0 = 0.42$  В. Значения  $U_0$  при температуре 300 и 100 К (на первом участке) совпадают со значениями ширины запрещенной зоны сульфида свинца 0.41 и 0.325 эВ

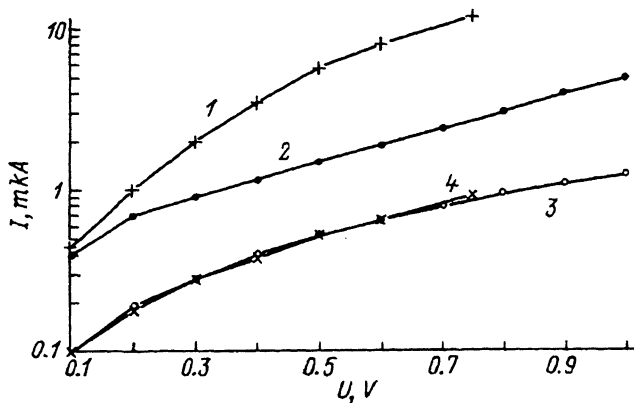


Рис. 4. Вольт-амперные характеристики сверхрешетки Фибоначчи на слюдяной подложке с подслоем алюминия. Температура  $T$ , К: 1, 2 — 300, 3, 4 — 110. 1, 3 и 2, 4 — ветви при одинаковой полярности напряжения.

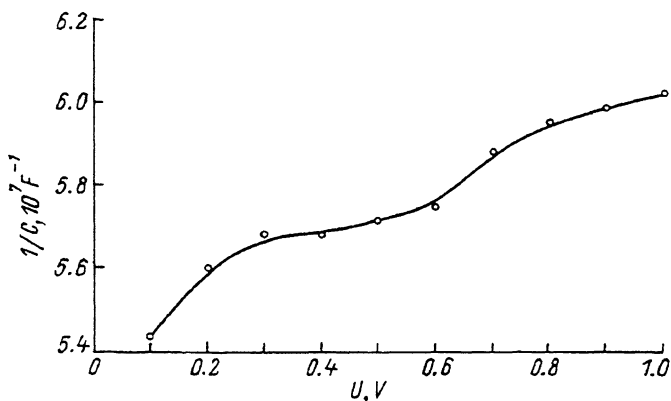


Рис. 5. Вольт-фарадная характеристика сверхрешетки Фибоначчи.

при соответствующих температурах. Такая зависимость может быть связана с межзонным туннелированием, особенно, если учесть непараболичность энергетической зоны в сульфиде свинца. Возможным механизмом также является оже-генерация горячими электронами в квантовых ямах. При этом энергия, необходимая для возбуждения, определяется переходом между уровнями валентной зоны и зоны проводимости в квантовой яме. Расстояние между этими уровнями увеличивается при приложении напряжения. Возможно, по этой причине происходит рост  $U_0$  при температуре 110 К при напряжении более 0.5 В. В то же время величина тока при охлаждении до 100 К снижается на порядок. По-видимому, в области слоев PbS происходит межзонное туннелирование, а вследствие уменьшения теплового размытия распределения электронов в ямах уменьшается возможность резонансного туннелирования из одной ямы в другую. Это вызывает резкое снижение тока через структуру в целом при ее охлаждении, вплоть до полного прекращения при достаточно глубоком охлаждении.

Вольт-фарадная характеристика приведена на рис. 5. Она имеет немонотонный характер. При значениях 0.3–0.6 В видна ступенька, что характерно для вольт-фарадных характеристик сверхрешеток [12]. Концентрация электронов в квантовой яме, определенная согласно [12], составила  $1.2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ .

Амплитудно-частотные характеристики приведены на рис. 6. Кривые 1, 2 являются частотными зависимостями структур, представляющих собой решетку Фибоначчи на кремниевой подложке. Кривая 3 — частотная зависимость решетки Фибоначчи, нанесенной на слой алюминия на слюдяной подложке, верхний контакт — также слой алюминия. Проводимость исследована при пропускании тока вдоль оси сверхрешетки. Видно, что зависимости носят различный характер. Структура, характеризуемая кривой 1, отличается от структур, характеризуемых кривыми 2, 3, энергией лазерного пучка, используемого при напылении: для структуры 1 энергия больше. Это приводит к тому, что появляются дефектные участки в решетке, связанные с выбросом крупных кластеров из мишени, которые достигают подложки и приводят к нарушению решетки. Для решеток 2, 3 энергия меньше и однородность вдоль слоя пленки высокая. Как следствие, отсутствуют каналы токопрохождения сквозь дефектные участки. В случае кремни-

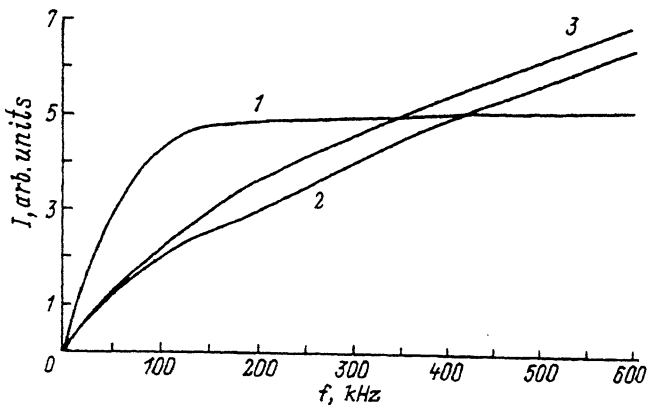


Рис. 6. Амплитудно-частотные характеристики сверхрешеток Фибоначчи на кремниевых подложках (1, 2) и на слюдяной подложке с подслоем алюминия (3).

евых подложек последовательно с сопротивлением решетки подключено сопротивление слоя объемного заряда кремния. Именно его изменение с частотой мы и видим на кривой 1. В случае кривых 2, 3 основное сопротивление представляет собой сверхрешетка Фибоначчи. Можно заметить, что частотные зависимости структур похожи, хотя структура, которой соответствует кривая 2, нанесена на поверхность кремния, и у нее последовательно с решеткой подключена также область объемного заряда. Видно, что зависимость носит почти линейный характер во всем исследуемом диапазоне частот. Амплитудно-частотная зависимость определяется, скорее всего, мнимой частью проводимости. В этом случае, как следует из [1],

$$\text{Im}\sigma(\omega) = 4\sigma_0\xi(3)(\omega\tau), \quad (3)$$

где  $\sigma$  — проводимость,  $\xi$  —  $\xi$ -функция Римана,  $\tau$  — время пробега расстояния, равного радиусу локализации носителя в решетке,  $\omega$  — частота. Цитируя монографию [1], можно сказать, что «появление диэлектрических свойств у одномерной неупорядоченной структуры», каковой и является сверхрешетка Фибоначчи, «связано с локализацией состояний и обусловленной ею способностью к поляризации». При частотах более 150 кГц амплитудно-частотная зависимость проводимости исследуемых сверхрешеток Фибоначчи близка к линейной, что подтверждает наличие диэлектрических свойств у сверхрешеток PbS-C и локализацию носителей в ней.

Таким образом, в результате проведенных исследований структур, изготовленных методом импульсного лазерного испарения, выявлена сложная структура оптических спектров пропускания, обнаружен эффект самоподобия спектра пропускания таких структур и однозначно связанной с ним функции плотности состояний. Этот эффект является характерным для сверхрешеток Фибоначчи. Обнаружена нелинейность вольт-амперной характеристики, связанная с межзонным туннелированием в слоях сульфида свинца. Обнаружены снижение плотности тока при охлаждении сверхрешетки до температуры 110 К и линейная зависимость проводимости от частоты, обусловленные локализацией носителей в сверхрешетке. Сверхрешетка Фибоначчи предста-



вляет собой одномерную модель структуры, занимающей промежуточное положение между упорядоченной (периодической) и неупорядоченной структурой. Результаты исследований позволяют сделать вывод, что полученная структура является сверхрешеткой Фибоначчи.

Авторы выражают благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований за поддержку по гранту РФФИ № 94-02-05886.

### Список литературы

- [1] И.М. Лифшиц, С.А. Гродескул, Л.А. Пастур. *Введение в теорию неупорядоченных систем* (М., Наука, 1982).
- [2] C. Niu, F. Nori. *Phys. Rev. B*, **42**, 10329 (1990).
- [3] Л.Г. Бакуева, В.И. Ильин, С.Ф. Мусихин, Л.В. Шаронова. *ФТП*, **27**, 1868 (1993).
- [4] K. Hirose, D.Y.K. Ko, H. Kamimura. *J. Phys.: Condens. Matter.*, **4**, 5947 (1992).
- [5] F. Laruelle, B. Etienne, J. Barrau, K. Khirouni, J.C. Brabant, T. Amand, M. Brousseau. *Surf. Sci.*, **228**, 92 (1990).
- [6] D. Wurtz, M.P. Soerensen, T. Schneider. *Helvetica Phys. Acta*, **61**, 345 (1988).
- [7] R. Merlin. *IEEE J. Quant. Electron.*, **24**, 1791 (1988).
- [8] М. Херман. *Полупроводниковые сверхрешетки* (М., Мир, 1989).
- [9] А.Я. Шик. *Двумерные электронные системы* (СПб, СПбГТУ, 1993).
- [10] А.Н. Жерихин. В сб.: *Итоги науки и техники. Сер. Современные проблемы лазерной физики* (М., ВИНТИ, 1990) т. 1, с. 197.
- [11] J.T. Cheung, H. Sankur. *Crit. Rev. Sol. St. Mater. Sci.*, **15**, iss. 1, 63 (1988).
- [12] В.Я. Алешкин, Б.Н. Звонков, Е.Р. Линькова, А.В. Мурель, Ю.А. Романов. *ФТП*, **27**, 931 (1993).

Редактор Л.В. Шаронова

## Fibonacci superlattices of PbS-C type produced by the pulsed laser ablation: optical and electrical properties

*S.F. Musikhin, L.G. Bakueva, V.I. Il'in, O.V. Rabizo, L.V. Sharonova\**

State Technical University, 195251 St.-Petersburg, Russia

\*A.F. Ioffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St.-Petersburg, Russia

Superlattices consist of two kinds of elements: films of lead sulfide and the diamond-like films of carbon. Each specimen includes 11 pairs of these elements. The thickness of PbS films is equal to 60 Å or 120 Å, the thickness of C films is equal to 5 Å. The whole set of film thicknesses in each of the specimens follows the Fibonacci rule. A row of specimens formed on BaF<sub>2</sub>, Si, glassies and muscovite substrates was investigated. Some specimens were supplied by Al electrodes. Optical absorption spectra in ultraviolet, visible and infrared regions were measured at room temperature. They showed features of irregular superlattices. Electrical measurements (current-voltage, capacity-voltage and frequency characteristics) also evidenced formation of Fibonacci superlattices in our specimens. In particular, the dielectric behaviour of superlattices was registered.