

Спонтанное излучение терагерцового диапазона частот при оптическом возбуждении доноров в SiGe/Si и одноосно-деформированном объемном кремнии

© Р.Х. Жукавин^{*¶}, К.А. Ковалевский^{*}, М.Л. Орлов^{*}, В.В. Цыпленков^{*}, Н.А. Бекин^{*},
А.Н. Яблонский^{*}, П.А. Юнин^{*}, S.G. Pavlov⁺, N.V. Abrosimov^{*},
H.-W. Hübers^{+♦}, H.H. Radamson[■], B.H. Шастин^{*‡}

^{*} Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

⁺ Institute of Planetary Research, German Aerospace Center (DLR),
12489 Berlin, Germany

[•] Institute for Crystal Growth,
12489 Berlin, Germany

[♦] Institut für Optik und Atomare Physik, Technische Universität Berlin,
10623 Berlin, Germany

[■] Royal Institute of Technology (KTH),
16640 Kista, Sweden

[‡] Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 23 мая 2014 г. Принята к печати 15 июня 2014 г.)

Представлены результаты измерений интегральной фотолюминесценции терагерцового диапазона частот доноров V группы (фосфор, сурьма, висмут, мышьяк) в объемном кремнии и SiGe/Si гетероструктурах (фосфор) в зависимости от интенсивности возбуждения. Сигнал из объемного кремния также измерялся как функция одноосной деформации. Результаты измерений зависимости интенсивности спонтанного излучения от одноосной деформации достаточно хорошо согласуются с теоретическими расчетами времен релаксации возбужденных состояний доноров в объемном кремнии. Сравнительные измерения спонтанного излучения из различных напряженных гетероструктур показали, что сигнал фотолюминесценции обусловлен легированными донорами кремниевыми областями.

1. Введение

Водородоподобные центры в кремнии вновь становятся объектом изучения в связи с возможностью создания на основе их „квантово-механических“ свойств таких приборов, как квантовые вычислители [1], „одноатомные“ транзисторы [2], лазеры на переходах между состояниями примесей [3]. В частности, было показано, что одноосная деформация может приводить к значительному уменьшению пороговой интенсивности накачки и возрастанию выходной мощности, а также частотной перестройке в кремниевых лазерах. Наличие встроенной деформации в кремний-германиевых структурах [4], а также триумф квантово-каскадных схем [5] позволяют надеяться на возможность использования многопериодных SiGe-структур для создания лазеров терагерцового диапазона частот [6,7]. Как представляется, вариация параметров гетероструктуры позволяет изменять ее свойства в довольно широком диапазоне, однако экспериментальные попытки использования примесных переходов в двумерных системах на основе SiGe достаточно редки [8]. Существует несколько работ, в которых авторами исследован спектр спонтанного излучения примесных центров в объемных полупроводниках и гетероструктурах [9–11]. В частности, в работе [11] авторы провели

сравнение спектров электролюминесценции недеформированного и деформированного Si:P при фиксированной величине деформации. Данная работа имеет своей целью исследование влияния величины деформации и интенсивности возбуждения на фотолюминесценцию в терагерцовом диапазоне частот доноров V группы в объемном кремнии, а также наблюдение спонтанного излучения гетероструктур на основе кремний-германия с напряженными слоями кремния.

2. Влияние деформации на спектр донора в кремнии

Поскольку кремний имеет шесть эквивалентных долин зоны проводимости, в методе эффективной массы с возмущающим кулоновским потенциалом каждое состояние примеси имеет шестикратное вырождение по числу долин. Наличие потенциала центральной ячейки приводит к снятию вырождения наиболее локализованного основного состояния. Уровень $1s$ расщепляется на три состояния: синглет $1s(A_1)$, дублет $1s(E)$ и триплет $1s(T_2)$. Индексы A_1 , E , T_2 соответствуют обозначениям неприводимых представлений точечной симметрии тетраэдра T_d и отражают симметрию каждого состояния. Энергия основного состояния зависит от типа донора, а ее отличие от величины в методе эффек-

[¶] E-mail: zhur@ipmras.ru

тельность импульсов составляла 300 нс. Спонтанное излучение детектировалось с помощью примесного фотоприемника Ge:Ga. Для исключения засветки приемника рассеянным возбуждающим излучением использовался холодный (4.2 К) сапфир. Для образцов объемного кремния была использована отдельная криогенная вставка, позволяющая достигать давления до величин порядка 3–4 кбар с использованием методики, аналогичной использованной в экспериментах по наблюдению стимулированного излучения [3,14].

4. Результаты измерений и обсуждение

Результаты измерений зависимости интенсивности спонтанного излучения Si:P от величины одноосной деформации вдоль направления [001] для различных значений интенсивности возбуждения представлены на рис. 3, *a*.

Можно выделить два режима по отношению к интенсивности накачки: для малых значений ($I_H \leq 2 \text{ кВт/см}^2$) зависимость достигает максимума при давлении около 500 бар, а затем происходит постепенное уменьшение интенсивности. В случае больших значений накачки при давлении около 200–300 бар наблюдается локальный минимум. Как известно, наибольшее влияние деформация оказывает на времена жизни именно рабочих лазерных состояний ($2p_0$) в Si:P, ввиду того, что они определяются взаимодействием с междолинными фононами [12]. Поэтому, несмотря на то, что свой вклад в спонтанное излучение вносят и другие переходы, для упрощения анализа вполне достаточно проанализировать переходы с уровня $2p_0$. Рис. 3, *b* представляет результат расчета темпа релаксации на переходе между состояниями $2p_0$ и $1s(B_2)$, принадлежащими нижним долинам зоны проводимости при деформации вдоль [001]. Снижение темпа релаксации при давлениях менее 500 бар вызвано увеличением времени жизни состояния $2p_0$ при выходе из резонанса взаимодействия с междолинными $TA-f$ -фононами. Таким образом, зависимость интенсивности спонтанного излучения от величины деформации хорошо согласуется с теоретическим расчетом для небольших интенсивностей возбуждения и давлений менее 500 бар. Однако для интенсивностей больше 2 кВт/см^2 на экспериментальных зависимостях возникает локальный минимум вблизи 250 бар. Авторы связывают такое поведение с наличием разогрева электронной (и фононной) подсистемы, что может привести к перебросу носителей из нижних 2Δ долин в верхние 4Δ долины зоны проводимости при небольших значениях одноосной деформации (менее 300 бар). Поскольку для 4Δ долин время жизни верхнего рабочего состояния $2p_0$ меньше, такое перераспределение может приводить к уменьшению сигнала. Дальнейшее увеличение величины расщепления зоны проводимости с ростом деформации

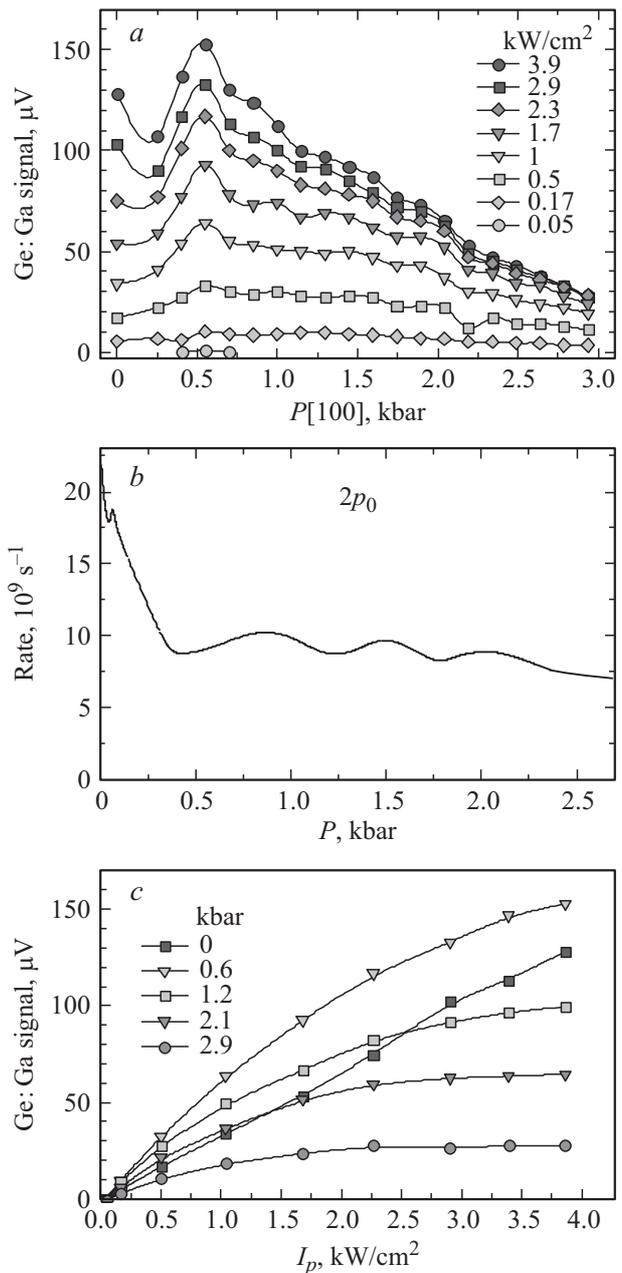


Рис. 3. *a* — зависимость интенсивности спонтанного излучения Si:P от величины давления вдоль направления [001] для различных значений мощности возбуждения; *b* — рассчитанная зависимость темпа релаксации от величины давления вдоль направления [001] для объемного Si:P для состояний нижних долин; *c* — зависимость интенсивности спонтанного излучения от мощности возбуждения при нескольких значениях величины одноосной деформации.

делает такой переброс невозможным. На рис. 3, *c* показаны зависимости интенсивности спонтанного излучения от мощности возбуждения для нескольких значений давления в объемном Si:P. Из рисунка следует, что увеличение давления до величины 0.5 кбар приводит к уменьшению сигнала, а также к возникновению насыще-

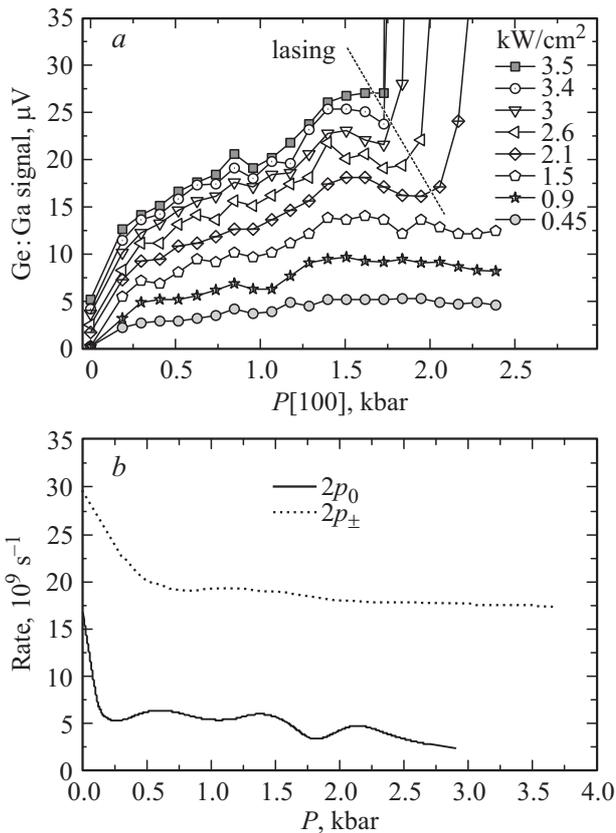


Рис. 4. *a* — зависимость интенсивности спонтанного излучения Si:As от величины давления вдоль направления [001] для различных значений мощности возбуждения; *b* — рассчитанная зависимость темпа релаксации от величины давления вдоль направления [001] для Si:As для состояний нижних долин.

ния зависимости интенсивности излучения от мощности накачки. Авторы считают, что такое поведение связано с уменьшением энергетического зазора между основным и первым возбужденным уровнем и значительным поглощением на переходе $1s(B_2) - 2p_0^{\Delta}$, что вызвано увеличением чисел заполнения неравновесных терагерцовых фононов с большим временем жизни и увеличением населенности состояния $1s(B_2)$.

На рис. 4, *a* представлен результат измерения сигнала спонтанного излучения объемного кремния, легированного мышьяком, в зависимости от величины деформации при различных значениях интенсивности возбуждения. Сигнал спонтанного излучения претерпевает значительное (в 2–5 раз) увеличение при увеличении давления до 1.5–2 кбар. Исследуемый образец при больших интенсивностях ($I_H > 1.5 \text{ кВт}/\text{см}^2$) и величинах деформации ($P \geq 1.7$ –2 кбар) переходил в режим стимулированного излучения. Зависимость скорости релаксации электронов с уровней $2p_0$, $2p_{\pm}$ представлена на рис. 4, *b*. Для этих состояний время жизни значительно увеличивается из-за ослабления взаимодействия с междолинными TA- $f(2p_0)$ и LA- $f(2p_{\pm})$ фононами. Кроме того, в отсутствие деформации важным каналом внутрицентро-

вой релаксации является достаточно быстрый процесс сброса электронов из состояния $2s$ при излучении LA- f -фононов, что приводит к слабому заселению состояния $2p_0$. Увеличение давления уменьшает взаимодействие с междолинными фононами и, таким образом, приводит к увеличению потока электронов в состоянии $2p_0$.

Несколько более сложная ситуация наблюдается в кремнии, легированном висмутом, которая объясняется сравнительно большой энергией ионизации (71 мэВ), что приводит к возможности внутрицентровой релаксации с излучением оптических междолинных фононов. Экспериментальные зависимости интенсивности спонтанного излучения от величины давления показаны на рис. 5, *a*. С ростом величины давления от 0 до 300–500 бар наблюдается рост интенсивности спонтанного излучения. Расчет, проведенный для нижних долин (рис. 5, *b*), не может описать такое поведение. Проведенные ранее эксперименты по измерению спектра стимулированного излучения показали, что в сигнал дают вклад состояния всех долин [14]. Качественно понятно, что возрастание связано с выходом из резонанса с TO- f -фононами состояний $2p_0$ и $2p_{\pm}$ в верхних

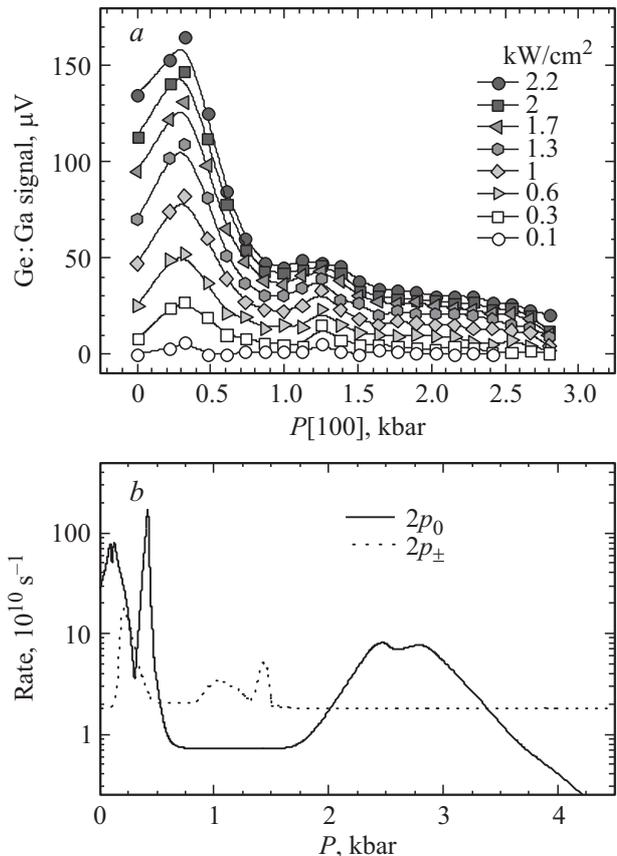


Рис. 5. *a* — зависимость интенсивности спонтанного излучения Si:Bi от величины давления вдоль направления [001] для различных значений мощности возбуждения; *b* — рассчитанная зависимость темпа релаксации от величины давления вдоль направления [001] для Si:Bi для состояний нижних долин.

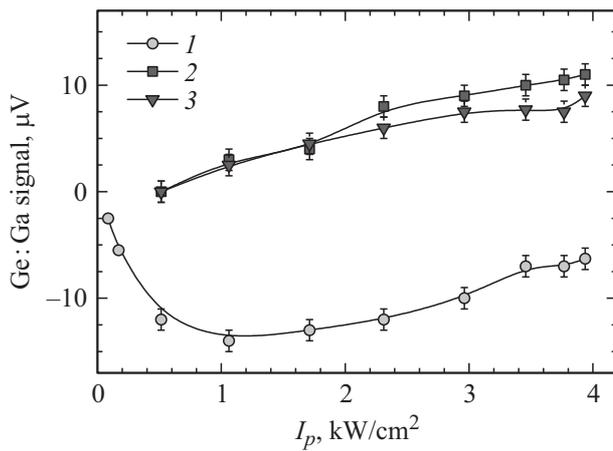


Рис. 6. Зависимость отклика детектора Ge:Ga от мощности возбуждения для нелегированной гетероструктуры $49 \cdot [\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}]/\text{Si}_{1-y}\text{Ge}_y/\text{Si}(001)$ с $x = y = 0.04$ (1) и гетероструктур с легированными слоями Si ($x = y = 0.04$ (2) и $x = 0.06, y = 0.08$ (3)).

долинах. Дальнейший рост давления ($P > 500$ бар) ведет к перетеканию носителей в нижние 2Δ долины, где существует проблема заселения p состояний из-за активного взаимодействия возбужденных состояний с междолинным LO- g фоном [16]. Следует отметить, что, в отличие от Si:P, для Si:As и Si:Bi не наблюдалось насыщение в зависимостях интенсивности спонтанного излучения от мощности накачки во всем исследованном диапазоне I_H (до 4 кВт/см^2). Подобное отличие вызвано гораздо большим энергетическим зазором между основным и первым возбужденным состояниями для более глубоких примесей (мышьяк и висмут).

Проведены измерения зависимости отклика детектора от интенсивности возбуждения структур $49 \times [\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}]/\text{Si}_{1-y}\text{Ge}_y/\text{Si}(001)$. Довольно большая толщина кремниевых слоев (10 нм) и небольшое содержание германия в барьерах позволяют в анализе пренебречь размерным квантованием и рассматривать встроенную деформацию кремниевых слоев как ключевой параметр. Рассчитанная величина эффективного расщепления долин в кремниевых слоях составляла 23 мэВ для структур с содержанием германия $x = y = 0.04$ и 34 мэВ для структур с $x = 0.04$ и $y = 0.06$, что в случае кремния соответствует деформации порядка 2.7 и 4 кбар соответственно. Рис. 6 демонстрирует зависимость отклика детектора для случая возбуждения структур $49 \times [\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}]/\text{Si}_{1-y}\text{Ge}_y/\text{Si}(001)$ с легированным кремниевым слоем. В общем случае, переменный сигнал, регистрируемый фотоприемником, содержит вклад спонтанного излучения исследуемого образца, а также вклад фонового теплового излучения (300 К). Возникновение переменной составляющей в интенсивности фонового теплового излучения, попадающего на фотоприемник, обусловлено изменением поглощения данного излучения в исследуемом образце

при воздействии на него импульсом излучения CO_2 -лазера. В случае нелегированной гетероструктуры наличие сигнала поглощения фонового излучения объясняется влиянием центров с дополнительным электроном или дыркой [17,18]. В данном случае речь идет об A^+ -центрах в подложке, так как используется подложка p -типа. Образование A^+ -центров является очень эффективным каналом рекомбинации свободных дырок при малых интенсивностях и ослабляется с увеличением числа ионизованных акцепторов. Для легированных фосфором гетероструктур знак сигнала соответствует излучению. И хотя для доноров при малых интенсивностях также существует канал образования центров с дополнительным электроном (D^- -центры), в случае расщепления долин проводимости энергия таких центров уменьшается с 2 до 0.5 мэВ, что приводит к значительному уменьшению их времени жизни. Как и в случае объемных доноров, расщепление долин должно привести к увеличению времени жизни донорных состояний. Если предположить, что поглощение фонового излучения в подложке легированной гетероструктуры также дает вклад в общий сигнал, то для выделения сигнала спонтанного излучения следует произвести вычитание из сигнала легированной структуры сигнала нелегированной. Качественно понятно, что такой учет при сравнимых амплитудах должен привести к появлению насыщения зависимости сигнала спонтанного излучения от интенсивности возбуждения, что является косвенным доказательством аналогии с донорами в объемном кремнии (рис. 3, с).

5. Заключение

В заключение отметим, что впервые измерены зависимости сигнала спонтанного излучения доноров V группы от интенсивности накачки в предпороговом режиме для деформированного кремния и проведено сравнение с существующими расчетами. Подобный совместный анализ спонтанного излучения и теоретических зависимостей часто более удобен (и доступен), чем наблюдение стимулированного эффекта, что дает возможность проверки существующей модели. Измерения спонтанного излучения из напряженных гетероструктур показали, что источником его являются напряженные кремниевые слои, легированные фосфором. Подобные измерения позволяют надеяться, что при соответствующем подборе содержания германия в буферных и барьерных слоях можно достигнуть эффектов усиления на внутрицентровых переходах.

Российские авторы благодарят за поддержку Фонд РФФИ (гранты 12-02-01231, 13-02-97116 р_поволжье, 14-02-00638, 14-02-31628 мол, 14-02-01157).

Работа частично выполнена на оборудовании ЦКП ИФМ РАН.

Список литературы

- [1] V.N. Smelyanskiy, A.G. Petukhov, V.V. Osipov. *Phys. Rev. B*, **72**, 081 304 (2005).
- [2] M. Fuechsle, J.A. Miwa, S. Mahapatra, H. Ryu, S. Lee, O. Warschow, L.C.L. Hollenberg, G. Klimeck, M.Y. Simmons. *Nature Nanotechnology*, **7**, 242 (2012).
- [3] R. Kh. Zhukavin, V.V. Tsyplenkov, K.A. Kovalevsky, V.N. Shastin, S.G. Pavlov, U. Böttger, H.-W. Hübers, H. Riemann, N.V. Abrosimov, N. Nötzel. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 051 101 (2007).
- [4] M.O. Manasreh. *Semiconductor quantum wells and superlattices for long-wavelength infrared detectors* (Artech house inc., Boston–London, 1993).
- [5] R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H.E. Beere, E.H. Linfield, A.G. Davies, D.A. Ritchie, R.C. Jott, F. Rossi. *Nature*, **417**, 156 (2002).
- [6] S.A. Lynch, R. Bates, D.J. Paul, D.J. Norris, A.G. Cullis, Z. Ikonik, R.W. Kelsall, P. Harrison, D.D. Arnone, C.R. Pidgeon. *Appl. Phys. Lett.*, **81** (9) 1543 (2002).
- [7] N.A. Bekin, S.G. Pavlov. *Physica B*, **404**, 4716 (2009).
- [8] M.S. Kagan, I.V. Altukhov, E.G. Chirkova, V.P. Sinis, R.T. Troeger, S.K. Ray, J. Kolodzey. *Phys. St. Sol. B*, **235** (1), 135 (2003).
- [9] А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, И.Н. Ясиевич, Н.Н. Зиновьев. *Письма ЖЭТФ*, **79** (8), 448 (2004).
- [10] V.A. Shalygin, L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.Yu. Panevin, A.N. Sofronov, G.A. Melentyev, A.V. Antonov, V.I. Gavrilenko, A.V. Andrianov, A.O. Zakharyin, S. Suihkonen, P.T. Törma, M. Ali, H. Lipsanen. *J. Appl. Phys.*, **106**, 123 523 (2009).
- [11] P.-C. Lv, X. Zhang, J. Kolodzey, M.A. Odnoblyudov, I.N. Yassievich. *J. Appl. Phys.*, **98**, 103 511 (2005).
- [12] В.В. Цыпленков, К.А. Ковалевский, В.Н. Шагин. *ФТП*, **43** (11), 1450 (2009).
- [13] N. Deßmann, S.G. Pavlov, V.N. Shastin, R.Kh. Zhukavin, V.V. Tsyplenkov, S. Winnerl, M. Mittendorff, N.V. Abrosimov, H. Riemann, H.-W. Hübers. *Phys. Rev. B*, **89**, 035 205 (2014).
- [14] К.А. Ковалевский, Р.Х. Жукавин, В.В. Цыпленков, В.Н. Шагин, Н.В. Абросимов, Г. Рима, С.Г. Павлов, Г.В. Хьюберс. *ФТП*, **47**, 199 (2013).
- [15] J.S. Christensen, H.H. Radamson, A.Yu. Kuznetsov, B.G. Svensson. *J. Appl. Phys.*, **94**, 6533 (2003).
- [16] В.В. Цыпленков, Р.Х. Жукавин, В.Н. Шагин. *ФТП*, **48**, 1044 (2014).
- [17] Е.М. Гершензон, А.П. Мельников, Р.И. Рабинович, Н.А. Серебрякова. *УФН*, **132**, 353 (1980).
- [18] R.Kh. Zhukavin, S.G. Pavlov, K.A. Kovalevsky, H.-W. Hübers, H. Riemann, V.N. Shastin. *J. Appl. Phys.*, **97**, 113 708 (2005).

Редактор А.Н. Смирнов

Terahertz range spontaneous emission under optical excitation of donors in uniaxially stressed bulk silicon and SiGe/Si heterostructures

R.Kh. Zhukavin*, K.A. Kovalevsky*, M.L. Orlov*, V.V. Tsyplenkov*, N.A. Bekin*, A.N. Yablonsky*, P.A. Yunin*, S.G. Pavlov⁺, N.V. Abrosimov[•], H.-W. Hübers^{+♦}, H.H. Radamson[■], V.N. Shastin^{*‡}

* Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

+ Institute of Planetary Research, German Aerospace Center (DLR), 12489 Berlin, Germany

• Institute for Crystal Growth, 12489 Berlin, Germany

♦ Institut für Optik und Atomare Physik, Technische Universität Berlin, 10623 Berlin, Germany

■ Royal Institute of Technology (KTH), 16640 Kista, Sweden

‡ Lobachevsky State University of Nizhni Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract The results on measurements of terahertz range photoluminescence by group-V donors (phosphorus, antimony, bismuth, arsenic) in stressed bulk silicon and SiGe/Si:P heterostructures depending on excitation intensity are presented. The signal from bulk silicon was measured also versus uniaxial stress value. The results of measurements of stress dependence of spontaneous radiation from uniaxially stressed bulk silicon is in accordance with theoretical calculations for relaxation times of the donor excited states. Comparative measurements of spontaneous emission from various strained heterostructures have shown that signal of a photoluminescence is caused by the donors embedded into silicon layers.