Фотоиндуцированное и равновесное поглощение света в квантовых точках Ge/Si

© Л.Е. Воробьев, Д.А. Фирсов, В.А. Шалыгин, В.Ю. Паневин, А.Н. Софронов[¶], А.И. Якимов⁺, А.В. Двуреченский⁺, А.А. Тонких^{*}, Р. Werner^{*}

Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, 195251 Санкт-Петербург, Россия ⁺ Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия *Max Planck Institute of Microstructure Physics, 06120 Halle(Saale), Germany

(Получена 15 апреля 2012 г. Принята к печати 15 апреля 2012 г.)

Представлены результаты исследования спектров оптического поглощения в структурах с квантовыми точками Ge/Si в среднем инфракрасном диапазоне. Исследовались 2 типа структур, различающихся методами формирования квантовых точек и шириной барьерных слоев. Изучено фотоиндуцированное поглощение при неравновесном заполнении дырочных состояний, а также поглощение света в структурах с разным уровнем легирования. Обнаружены особенности, связанные с заполнением основного и возбужденного состояний квантовой точки, демонстрирующие зависимость от поляризации излучения. По полученным данным экспериментально определен энергетический спектр дырок в структурах обоих типов.

1. Введение

Важное место в развитии кремниевой оптоэлектроники занимают наноструктуры на основе квантовых точек (КТ) Ge/Si благодаря возможности организации ближней инфракрасной (ИК) оптической связи между различными элементами интегральных схем, построенных в рамках существующей кремниевой технологии [1]. Оптические свойства структур с квантовыми точками Ge/Si в средней ИК области также представляют немалый интерес как в связи с возможностью создания детекторов среднего ИК излучения на основе этой системы, так и с точки зрения фундаментальной физики. Ряд исследований в этом направлении уже проведен (см., например, [2,3]), однако поляризационным зависимостям внутризонного поглощения света на межуровневых переходах дырок и особенностям внутризонного поглощения при неравновесном заполнении возбужденных состояний квантовой точки уделено мало внимания.

В данной работе приведены результаты исследований равновесного и фотоиндуцированного поглощения поляризованного излучения среднего ИК диапазона при межзонном фотовозбуждении неравновесных дырок.

2. Образцы

Исследовались 2 группы структур с самоорганизованными квантовыми точками Ge/Si.

1-я группа структур выращена методом молекулярнопучковой эпитаксии в Институте физики полупроводников СО РАН по технологии, аналогичной использованной в работе [2]. Структура выращивалась на подложке КЭФ-5, ориентированной в кристаллографическом направлении [001], и содержала 10 слоев квантовых точек, каждый из которых получался при напылении 8 монослоев германия. Каждый слой точек заращивался прослойкой собственного кремния толщиной 100 нм. Слои германия напылялись со скоростью 0.2 монослоя в секунду при температуре подложки 300°С, кремниевые барьеры напылялись при температуре 500°С. Полученные квантовые точки имели форму пирамидок с квадратным основанием, средние размеры основания составляли 15 нм, высота пирамидки около 1.5 нм, разброс размеров составлял порядка 20%. Плотность точек оценивается как $3 \cdot 10^{11}$ см⁻² [2]. Имелись легированная и нелегированная структуры этой группы, легирование осуществлялось в δ -слое, сдвинутом на 5 нм от квантовых точек, до концентрации $8 \cdot 10^{11}$ см⁻².

2-я группа структур выращена в Институте физики микроструктур им. Макса Планка (Германия) на двусторонне полированных подложках Si(100) с удельным сопротивлением 2000 Ом · см методом молекулярнопучковой эпитаксии на установке SIVA 45 (Riber). Структуры состояли из буферного слоя кремния толщиной 100 нм, на котором выращивалось 10 слоев Ge квантовых точек, разделенных прослойкой Si толщиной 15 нм. Квантовые точки получались осаждением 7 монослоев германия со скоростью 0.14 монослоя в секунду. Завершал структуру слой Si толщиной 100 нм. Температура роста структуры составляла 600°С. Формирование Ge KT проводилось с применением сурфактанта (Sb) с целью повышения плотности массива КТ по методу, описанному в работе [4]. Было изготовлено 4 структуры, различие между которыми заключалось в использовании локального легирования бором (б-легирования) на расстоянии 5 нм до каждого слоя с Ge КТ. Плотность атомов бора в каждом б-легированном слое в различных структурах была: 0, $4 \cdot 10^{11}$, $8 \cdot 10^{11}$, $12 \cdot 10^{11} \, \text{см}^{-2}$. Для определения плотности квантовых

[¶] E-mail: sofronov@rphf.spbstu.ru



Рис. 1. АСМ-изображение массива Ge островков на поверхности Si(100), выращенных с добавлением Sb при температуре подложки 600°C.



Рис. 2. Равновесный спектр поглощения легированной структуры с квантовыми точками 1-го типа для *p*-поляризации, T = 300 K. На вставках показана схема эксперимента и схема оптических переходов.

точек был выращен тестовый образец с одним слоем Ge островков с Sb в условиях, аналогичных многослойным образцам. В этом образце Ge островки не были покрыты Si. Образец исследовался методом атомно-силовой микроскопии (ACM) на микроскопе Dimension 5000 (Digital Instruments). На рис. 1 приведено изображение массива Ge островков на поверхности Si(100), выращенных с добавлением Sb. Плотность островков составляла $\sim 2 \cdot 10^{11}$ см⁻². Средняя высота и размер основания островков составляли 1.2 и 18 нм соответственно.

1-я и 2-я группы образцов отличались, во-первых, методом формирования квантовых точек, и, во-вторых,

толщиной слоев кремния, разделяющих слои с квантовыми точками.

Из структур обоих типов были изготовлены образцы для исследований в многопроходной геометрии. В такой геометрии торцы образца, перпендикулярные плоскости слоев с квантовыми точками, шлифуются и полируются под углом 45°. Излучение падает нормально на скошенную поверхность и за счет полного внутреннего отражения, многократно проходит через слои с квантовыми точками (см. вставку на рис. 2). При этом вектор поляризации излучения может лежать как в плоскости слоя с квантовыми точками (*s*-поляризация), так и располагаться под углом 45° к плоскости слоя (*p*-поляризация). В последнем случае вектор поляризации содержит равные компоненты в плоскости слоя и вдоль оси роста структуры.

3. Экспериментальные методы

Исследования спектров равновесного пропускания проводились с помощью фурье-спектрометра Brucker Vertex 80v. Исследования фотоиндуцированного поглощения света проводились на автоматизированном спектрометре на базе ИКС-21. В обоих случаях в качестве источника среднего инфракрасного излучения использовался глобар, в качестве приемника — охлаждаемый жидким азотом фотодетектор на основе КРТ. При измерении фотоиндуцированного поглощения использовался фильтр из Ge, установленный непосредственно перед входным окном фотодетектора, отсекающий излучение лазера. Неравновесные носители возбуждались в образцах с помощью непрерывного твердотельного YAG:Nd-лазера со светодиодной накачкой с удвоением частоты с длиной волны излучения 0.53 мкм. Максимальная мощность лазерного излучения составляла 300 мВт. Излучение лазера с помощью системы зеркал направлялось на поверхность образца со стороны слоев с квантовыми точками. Непрерывное излучение лазера модулировалось механическим обтюратором на частоте 900 Гц. Сигнал с фотоприемника, фиксировавшего изменение пропускания инфракрасного излучения образцом при засветке лазером, усиливался предусилителем и измерялся с помощью селективного фазочувствительного усилителя SR-830 на этой частоте. Измеренные спектры фотоиндуцированного изменения пропускания образца нормировались на равновесные спектры пропускания (в отсутствие лазерной засветки).

Фотомодуляционная методика измерения спектров внутризонного поглощения имеет ряд преимуществ, в частности, она позволяет избежать паразитных вкладов в поглощение от гидроксильных групп, абсорбированных на поверхности кремния (см., например, [5,6] и ссылки в этих работах), а также вкладов решеточного поглощения, в частности, двухфононного поглощения в кремнии.



Рис. 3. Спектры фотоиндуцированного поглощения нелегированной структуры с квантовыми точками 1-го типа для *s*-поляризации (1) и *p*-поляризации (2) излучения. Кривая 1 поднята на 0.1% для наглядности. Интенсивность возбуждающего излучения около 0.8 Bт/см², T = 300 К. На вставке показана схема оптических переходов дырок, ответственных за наблюдаемые спектральные особенности.

4. Экспериментальные результаты

4.1. Структуры с широкими барьерными слоями

Измеренный с помощью фурье-спектрометра равновесный спектр поглощения легированных квантовых точек с широкими барьерными слоями для *p*-поляризации излучения показан на рис. 2. Он представляет собой достаточно широкий пик с максимумом при энергии кванта $\hbar\omega = 450$ мэВ, связанный с фотоионизацией квантовой точки, т.е. с оптическими переходами дырок из основного состояния в состояния сплошного спектра над барьером. Положение пика удовлетворительно совпадает с данными о величине разрыва валентной зоны в системе Ge/Si [7].

Измеренные при комнатной температуре спектры фотоиндуцированного поглощения в структурах с нелегированными квантовыми точками с широкими барьерными слоями для двух поляризаций излучения при максимальной мощности возбуждающего лазера представлены на рис. 3.

Для излучения *p*-поляризации наблюдается довольно широкий пик поглощения в области энергии кванта около 460 мэВ, а также монотонный рост поглощения в длинноволновой области спектра. Излучение *s*-поляризации интенсивно поглощается в достаточно широкой области в районе 170 мэВ, однако можно заметить и еще одну слабую линию поглощения в области 380 мэВ. При этом при энергиях кванта менее 180 мэВ начинается область решеточного поглощения в кремнии [8], потому в этой спектральной области измерения оптического пропускания затруднены даже при использовании фотомодуляционной методики измерений.

Наблюдаемая спектральная особенность фотоиндуцированного поглощения в р-поляризации, так же как и равновесное поглощение в легированной структуре (рис. 2), обусловлена фотоионизацией квантовой точки. Сильное поглощение в s-поляризации в области энергий кванта около 170 мэВ связывается с межуровневыми оптическими переходами дырок между первым и третьим уровнями. Энергия такого перехода хорошо согласуется с имеющимися литературными данными. Известные результаты по оптическому поглощению вместе с данными по фотопроводимости в средней ИК области спектра в подобных системах [3], а также теоретическое рассмотрение вопроса [9] дают величину энергетического зазора между основным и первым возбужденным состояниями, равную 80 мэВ, между основным и вторым возбужденным состояниями — 150 мэВ.

Слабый пик при $\hbar\omega = 380$ мэВ обусловлен заполнением дырками второго уровня квантовой точки и оптическими переходами из этого уровня в сплошной спектр состояний над барьером. Это подтверждается величиной сдвига максимума этого пика относительно поглощения в *p*-поляризации, равной 80 мэВ, что соответствует расстоянию между основным и возбужденным состояниями квантовой точки.

Зависимости величины фотоиндуцированного поглощения от интенсивности возбуждающего излучения, приведенные на рис. 4, подтверждают высказанные предположения. Действительно, с ростом интенсивности лазера поглощение при $\hbar\omega = 460$ мэВ в *р*-поляризации и при $\hbar\omega = 170$ мэВ в *s*-поляризации, обусловленное переходами из основного состояния, сначала достаточно быстро растет, а при определенной величине



Рис. 4. Зависимости величины фотоиндуцированного поглощения нелегированной структуры с квантовыми точками 1-го типа от интенсивности возбуждающего излучения I_{ex} в *s*-поляризации (сплошные символы) и *p*-поляризации (пустые символы) при энергиях кванта $\hbar\omega$, мэВ: I - 460, 2 - 170, 3 - 380. T = 300 K.

Физика и техника полупроводников, 2012, том 46, вып. 12

интенсивности накачки выходит на насыщение. Эта интенсивность (показана стрелкой на рис. 4) соответствует полному заполнению основного состояния всех точек дырками. Однако поглощение при $\hbar\omega = 380$ мэВ в *s*-поляризации, обусловленное переходами со второго уровня, демонстрирует иную зависимость от интенсивности межзонной накачки. Поглощение начинает расти при интенсивности возбуждения, превышающей значение интенсивности, при котором полностью заполнено основное состояние квантовой точки.

Слабый рост поглощения с ростом интенсивности накачки в области больше пороговой может быть связан с изменением соотношения между временем захвата неравновесных носителей заряда в точку и временем термического выброса из нее при увеличении концентрации неравновесных электронов и дырок. Для кривой, снятой при $\hbar \omega = 170$ мэВ, наклон зависимости несколько больше, чем для двух других, что может говорить о дополнительном вкладе в поглощение свободных носителей заряда в этой спектральной области. На спектрах фотоиндуцированного поглощения для кривой р-поляризации также наблюдается слабый рост в области энергий кванта менее 250 мэВ, при этом экспериментальные точки в этой области удовлетворительно ложатся на квадратичную зависимость поглощения от длины волны, характерную для поглощения на свободных носителях.

4.2. Структуры с узкими барьерными слоями

Измеренные в структурах второго типа спектры равновесного пропускания света двух разных поляризаций для образцов с разным уровнем легирования показаны на рис. 5.

Спектр пропускания нелегированного образца является практически плоским в области энергий квантов до 180 мэВ, после чего начинается полоса решеточного поглощения в кремнии, при этом общий уровень сигнала существенно уменьшается, но он остается измеряемым. С ростом уровня легирования в спектре пропускания *р*-поляризованного света появляется широкий провал с минимумом при $\hbar\omega = 290$ мэВ.

На рис. 6 показано отношение оптического пропускания образца с уровнем легирования $12 \cdot 10^{11}$ см⁻² к пропусканию нелегированного образца. Заметим, что такой уровень легирования соответствует полному заполнению основного и первого возбужденного состояния квантовых точек дырками.

Наличие носителей заряда на основном уровне квантовой точки приводит к появлению поглощения света *p*поляризации в области энергий кванта около 290 мэВ, а также к различимому поглощению света обеих поляризаций в области энергий кванта около 100 мэВ. В области энергий квантов менее 180 мэВ спектральные особенности, связанные с квантовыми точками, накладываются на решеточное поглощение в кремнии, что приводит к повышению уровня шумов. На рис. 5 эта



Рис. 5. Равновесные спектры пропускания структур с квантовыми точками 2-го типа с разным уровнем легирования: *I* — *p*-поляризация, *2* — *s*-поляризация. *T* = 300 K.



Рис. 6. Спектры пропускания легированной структуры с квантовыми точками 2-го типа для *p*-поляризации (1) и *s*-поляризации (2), нормированные на пропускание нелегированной структуры, T = 300 К. На вставке показана схема оптических переходов дырок.

область не показана для наглядности восприятия пика, связанного с квантовыми точками.

Полученные спектральные особенности могут быть связаны с переходами дырок с основного состояния квантовой точки в сплошной спектр состояний над потенциальной ямой, а также в возбужденное состояние квантовой точки соответственно.

Сравнивая энергетический спектр дырочных состояний, полученный по экспериментальным спектрам поглощения в структурах первого и второго типа, можно заметить уменьшение энергии связи дырочных состояний в структурах с узкими барьерными слоями. При этом латеральные размеры островков германия, определяющие энергию связи основного состояния точки, в обоих типах структур достаточно близки.

Подобное поведение может быть объяснено, во-первых, меньшим содержанием германия в материале квантовой точки в структурах второго типа, во-вторых, влиянием неоднородного пространственного распределения упругих деформаций в многослойной структуре с достаточно узкими слоями, разделяющими слои с квантовыми точками. Известно, что наличие упругих напряжений приводит к образованию достаточно сильного изгиба зоны проводимости кремния на гетерогранице квантовой точки, при этом возможно даже образование локализованных состояний для электронов вокруг квантовой точки [10]. При этом изгиб валентной зоны на гетероинтерфейсе со стороны кремния (см. вставку к рис. 6) приводит к уменьшению ограничивающего потенциального барьера для дырок и к снижению энергии локализации дырок внутри квантовой точки.

5. Заключение

В работе исследовано равновесное и фотоиндуцированное поглощение поляризованного света, связанное с оптическими переходами дырок в квантовых точках Ge/Si двух типов, различающихся методом роста и шириной барьерных слоев. Обнаружены поляризационно-зависимые спектральные особенности, связанные с оптическими переходами дырок из основного и возбужденного состояний квантовых точек при неравновесном распределении носителей заряда. В структурах с узкими барьерными слоями экспериментально наблюдается снижение энергии локализации связанных состояний дырок по сравнению со структурой с широкими барьерными слоями со сравнимыми размерами квантовых точек. Возможным объяснением может служить неоднородное пространственное распределение упругих деформаций в многослойной структуре, а также различное содержание германия в материале квантовой точки. Полученные экспериментальные данные позволили определить энергии связи локализованных состояний дырок в квантовых точках. Проведенные исследования могут быть полезны при разработке детекторов среднего инфракрасного излучения на базе наноструктур с квантовыми точками Ge/Si.

Работа поддержана грантами РФФИ и ФЦП "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России" на 2009–2013 годы.

Список литературы

- А.В. Антонов, Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник и др. *Тез. докл. конф. "Полупроводники–2009"*, Новосибирск (28 сентября–3 октября 2009) с. 310
- [2] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, N.P. Stepina, A.I. Nikiforov. Phys. Rev. B, 62, 9939 (2000).
- [3] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, Y.Y. Proskuryakov. J. Appl. Phys., **89**, 5676 (2001).
- [4] A. Tonkikh, N. Zakharov, V. Talalaev, P. Werner. Phys. Status Solidi RRL 4, 224 (2010).
- [5] A.B. Gurevich, B.B. Stefanov, M.K. Weldon et al. Phys. Rev. B, 58, R13434 (1998).
- [6] A. Milekhin, M. Friedrich, K. Hiller et al. J. of Vacuum Sci. Techn. B, 18, 1392 (2000).
- [7] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, Y.Y. Proskuryakov et al. Appl. Phys. Lett., 75, 1413 (1999).
- [8] F.A. Johnson. Proc. Phys. Soc., 73, 265 (1958).
- [9] A.V. Dvurechenskii, A.V. Nenashev, A.I. Yakimov. Nanotechnology, 13, 75 (2002).
- [10] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, A.A. Bloshkin, A.V. Nenashev, V.A. Volodin. Phys. Rev. B, 73, 115 333 (2001).

Редактор Т.А. Полянская

Photoinduced and equilibrium light absorption in Ge/Si quantum dots

L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.A. Shalygin, V.Yu. Panevin, A.N. Sofronov, A.I. Yakimov⁺, A.V. Dvurechenskii⁺, A.A. Tonkikh^{*}, P. Werner^{*}

St. Petersburg State Polytechnical University, 195251 St. Petersburg, Russia ⁺ Institute of semiconductor physics, Siberian Branch of Russian Academy of Sciences, 630090 Novosibirsk, Russia. * Max Planck Institute of Microstructure Physics,

06120 Halle(Saale), Germany

Abstract Authors report on mid IR optical absorption spectra studies in Ge/Si quantum dot structures. Two classes of quantum dots with different formation method and different Si barrier thicknesses were studied. Photoinduced absorption under non-equilibrium population of holes energy levels is studied as soon as absorption spectra in quantum dot structures with different doping levels. Spectra reveal some polarization dependent peculiarities related to population of ground and excited quantum dot states. Energy spectrum of holes in the quantum dot is determined from the experimental data for both two studied classes of quantum dot structures.