

ЭФФЕКТЫ ЭЛЕКТРОН-ЭЛЕКТРОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВАХ ПЛОТНЫХ МАССИВОВ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК Ge/Si

*А. И. Якимов**, *А. В. Дзуреченский*, *Н. П. Степина*, *А. И. Никифоров*

*Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия*

А. В. Ненашев

*Новосибирский государственный университет
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 14 июня 2000 г.

Представлены результаты исследования межзонного и межуровневого поглощения света и фотопроводимости в плотных массивах квантовых точек Ge в Si, формируемых на основе эффекта самоорганизации при гетероэпитаксии из молекулярных пучков. Обнаружено, что образование заряженных экситонных комплексов, состоящих из двух дырок и электрона, а также комплексов из двух экситонов в квантовых точках второго типа приводит к увеличению энергии непрямого в реальном пространстве экситонного перехода вследствие пространственного разделения электрона и дырки. Самосогласованные расчеты волновых функций электронов и дырок в составе экситона и экситонных комплексов показали, что в случае одного экситона электрон локализуется в области максимальных напряжений Si в окрестности вершины Ge пирамиды, а дырка сосредоточена вблизи основания пирамиды. В комплексе, состоящем из двух экситонов расталкивание электронов приводит к их пространственному разделению, в результате которого второй электрон оказывается связанным на границе между Si и сплошным слоем Ge, на котором располагаются пирамиды. Экспериментально обнаружен коротковолновый сдвиг межуровневого резонанса, сужение линии и изменение ее формы при увеличении концентрации носителей заряда в основном состоянии квантовых точек, что обусловлено эффектом деполяризации внешней электромагнитной волны коллективными осцилляциями зарядовой плотности в латеральном направлении в массиве нанокластеров Ge. Установлено, что инжекция дырок в возбужденное состояние квантовых точек приводит к длинноволновому сдвигу максимума фотопроводимости вследствие распада коллективного возбуждения и подавления эффекта деполяризации.

PACS: 73.20.Mf, 73.50.Pz

1. ВВЕДЕНИЕ

Квантовые точки представляют собой предельный случай систем с пониженной размерностью, поскольку пространственное ограничение движения носителей заряда реализуется в них во всех трех измерениях. С приборной точки зрения такие наноструктуры должны иметь размеры порядка нескольких нанометров, чтобы предотвратить тепловое размытие дискретного энергетического спектра при комнатной температуре. Кроме того, для практиче-

ской реализации высокого модального усиления в лазерах, большой квантовой эффективности фотоприемных устройств, заметного сдвига порогового напряжения в транзисторных элементах одноэлектронной памяти и быстрой обработки информации в квантовых сетях необходимо иметь плотные массивы квантовых точек со слоевой концентрацией $\geq 10^{11}$ см⁻².

Наноразмерный масштаб и большая плотность квантовых точек сильно ограничивают возможности применения традиционных способов приготовления структур, связанных с литографическими

*E-mail: yakimov@isp.nsc.ru

процессами и требуют развития новых подходов. В ходе поиска новых технологических возможностей весьма плодотворной оказалась идея использования морфологических изменений поверхности в процессе роста рассогласованных гетероэпитаксиальных систем для формирования массива наноразмерных атомных кластеров при переходе от двумерного роста к трехмерному по механизму Странско-Крастанова. Впервые эта идея была реализована в 1992 г. на системе Ge/Si, по результатам исследования которой был сделан вывод о наличии одноэлектронных эффектов в новом классе наноструктур [1]. В дальнейшем этот метод создания полей квантовых точек получил название «самоорганизации», поскольку необходимо было объяснить результаты по формированию достаточно однородного по размеру массива нанокластеров [2, 3].

Особый интерес к нанокластерам Ge в Si связан со следующими обстоятельствами. Во-первых, с помощью уменьшения температуры гетероэпитаксии и увеличения скорости осаждения удалось уменьшить размеры нанокластеров Ge до значений ~ 10 нм, обеспечивающих проявление эффекта размерного квантования и одноэлектронных явлений вплоть до комнатной температуры, и увеличить плотность квантовых точек до величины $3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ [3, 4]. Во-вторых, весьма привлекательной является совместимость разработанных методов с существующей в мире кремниевой технологией изготовления дискретных приборов и схем.

Напряженные слои Ge/Si(001) представляют собой гетероструктуры второго типа. Характерные черты этого класса систем определяются взаимным расположением краев зон исходных полупроводников на гетерогранице. Зона проводимости одного из материалов (Si) здесь близка к валентной зоне другого (Ge), что вызывает пространственное разделение носителей. В данном случае дырки локализуются в квантовых точках Ge, тогда как для электронов в Ge имеется потенциальный барьер. Однако создаваемый дырками положительный заряд и неоднородная деформация структуры вследствие рассогласования параметров решетки Ge и Si могут приводить к появлению потенциальной ямы для неравновесных электронов в зоне проводимости кремния вблизи гетероперехода (рис. 1). Таким образом, фундаментальной особенностью квантовых точек второго типа является возможность формирования непрямого в реальном пространстве экситона: дырка сосредоточена в островке Ge, а электрон движется в самосогласованном потенциале в кремнии вблизи нее. В настоящее время свойства непрямых эксито-

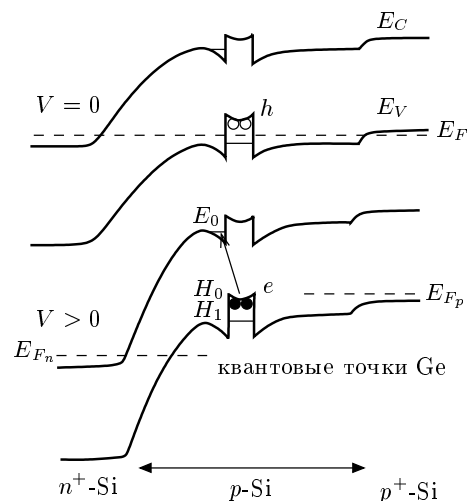


Рис. 1. Схематичное изображение зонной диаграммы $p^+ - p - n^+ - \text{Si}$ диода с квантовыми точками Ge при нулевом и обратном смещениях. Стрелкой показан оптический переход, сопровождающийся появлением основного состояния непрямой экситона

нов в квантовых точках изучены достаточно слабо, что открывает новые возможности как в фундаментальных исследованиях, так и для приборных применений, реализация которых на гетероструктурах первого типа невозможна [5]. В частности, ничего не известно о спектре и структуре многочастичных экситонных комплексов.

Актуальность исследования оптических свойств квантовых точек обусловлена ярко выраженной практической ориентацией в направлении создания фотоприемных и светоизлучающих приборов, а также рядом преимуществ таких объектов по сравнению с двумерными системами. Особенностью квантовых точек является, во-первых, возможность управления спектральной полосой (цветом) излучения и фотоотклика путем заселения дискретных состояний с требуемой энергией переходов; во-вторых, уменьшение пороговой плотности тока в диодных лазерах и высокая температурная стабильность [2]; в третьих, наличие квантования в латеральном направлении снимает запрет на оптические переходы, поляризованные в плоскости фотоприемника, а значит, предоставляет возможность осуществить поглощение фотонов при нормальном падении света без дополнительных решеток и отражателей; в четвертых, в квантовых точках ожидается сильное увеличение времени жизни фотовозбужденных носителей вследствие так называемого эффекта «бутылочного горла» (phonon bottleneck effect [6]). В основе послед-

него лежит подавление рассеяния на LO -фононах, когда расстояние между дискретными уровнями в квантовых точках сильно отличается от энергии фонона.

До сих пор большинство оптических измерений проводилось на разреженных системах квантовых точек, в которых эффекты взаимодействия несущественны [7–9]. С фундаментальной точки зрения, в оптике плотных массивов квантовых точек возникают новые явления, связанные с крупномасштабным кулоновским взаимодействием. Для плотного массива островков, когда расстояние между островками оказывается сравнимо с размерам островков ($L \sim 10$ нм), взаимодействие носителей, локализованных на разных квантовых точках, становится заметным фактором, определяющим, например, темновую проводимость вдоль слоев Ge, содержащих квантовые точки [10]. Характерная величина такого взаимодействия $U \approx e^2/4\pi\epsilon\epsilon_0 L \approx 10$ мэВ (ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, ϵ — относительная диэлектрическая проницаемость среды) сравнима с kT при комнатной температуре и не является исчезающе малой по сравнению с характерным расстоянием между уровнями размерного квантования (70–80 мэВ [3, 11]).

Целью настоящей работы являлось исследование процессов поглощения света и фотопроводимости в областях длин волн фотонов, соответствующих межзонным и межуровневым переходам в гетероструктурах Ge/Si с квантовыми точками, при нормальной геометрии падения световой волны (направление распространения перпендикулярно плоскости образцов). Работа построена следующим образом. В разделе 2 приведены результаты исследования экситонного поглощения света в заряженных квантовых точках (длина волны $\simeq 1.6$ мкм). Делается вывод о том, что образование заряженных экситонных комплексов (из двух дырок и электрона), а также комплексов из двух экситонов в квантовых точках второго типа приводит к увеличению энергии экситонного перехода вследствие пространственного разделения электрона и дырки. Раздел 3 посвящен изучению поглощения света и фотопроводимости в области энергий фотонов, соответствующих переходам между основным и возбужденным состояниями дырок в квантовых точках Ge (длины волн фотонов $\simeq 15$ – 18 мкм). Обнаружен коротковолновый сдвиг межуровневого резонанса, сужение линии и изменение ее формы при увеличении концентрации носителей заряда в основном состоянии квантовых точек, что обусловлено эффектом деполяризации внешней электромагнитной волны коллектив-

ными возбуждениями зарядовой плотности в латеральном направлении. Показано, что время жизни дырки в возбужденном состоянии сравнимо с временами, установленными для двумерных квантовых ям, что ставит под сомнение эффект «бутылочного горла».

2. ЭКСИТОНЫ И ЭКСИТОННЫЕ КОМПЛЕКСЫ В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ ВТОРОГО ТИПА

2.1. Метод модуляции электронного заполнения

Для изучения влияния зарядового состояния квантовых точек на межзонные оптические переходы мы использовали метод модуляции электронного заполнения. Ранее этот тип спектроскопии был успешно применен при исследовании люминесцентных [12] и отражательных [13] свойства массивов квантовых точек на основе систем InAs/GaAs и $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Для реализации метода слой островков Ge был введен в базу кремниевого n^+p -диода. В такой структуре заполнение дырочных уровней в квантовых точках контролируется приложением к диоду внешнего смещения (рис. 1). Если уровень в валентной зоне Ge заполнен дырками, то переход в зону проводимости с этого уровня блокирован; если же смещение таково, что квантовая точка нейтральна (в ней нет дырок), то возможно поглощение фотона электроном в валентной зоне с образованием непрямого экситона. Модулируя во времени напряжение смещения (а значит, и заполнение квантовой точки дырками) и измеряя на частоте модуляции прохождение ИК-фотонов через структуру, можно получить спектр поглощения, непосредственно связанный с квантовыми точками. Проведение измерений при различных амплитудах смещения позволяет анализировать влияние зарядового состояния островков на соответствующие энергии переходов. Достоинством этого метода является его нечувствительность к отклику от немодулированной части системы (поглощение в подложке, в атмосфере и т. п.).

Образцы выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках Si с ориентацией (001) и удельным сопротивлением 4.5 Ом·см. Температура роста слоев Si составляла соответственно 800 °C и 500 °C до и после осаждения слоя Ge. Скорости роста поддерживались на уровне 0.3 нм/с для Si и 0.03 нм/с для Ge. Слой островков Ge с

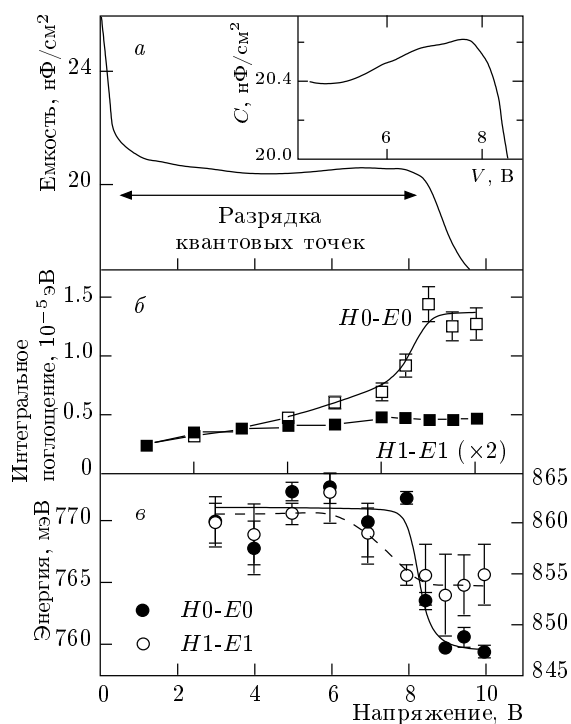


Рис. 2. Вольт-фарадная характеристика p^+-p-n^+ -диода с квантовыми точками, измеренная на частоте 100 кГц при комнатной температуре (а), зависимости интегрального поглощения в области экситонных переходов $H0-E0$ и $H1-E1$ (б) и энергии экситонных переходов $H0-E0$ (левая шкала) и $H1-E1$ (правая шкала) (в) от обратного смещения, модулирующего во времени заполнение квантовых точек дырками

номинальной толщиной 10 монослоев (1 монослой равен 1.4 \AA) вводился в середину слоя p -Si толщиной 1 мкм при температуре 300°C (концентрация бора в кремнии составляла $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$). Захороненный нижний контакт создавался путем осаждения 50 нм p^+ -Si ($2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ бора), рост завершался формированием n^+-p -перехода с помощью осаждения 50 нм n^+ -Si (Sb, $n = 1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$). Ранее с помощью сканирующей туннельной микроскопии и просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения было установлено, что островки Ge имеют форму пирамид с размерами основания 15 нм и высотой 1.5 нм [14]. При этом разброс островков по размерам характеризуется стандартным отклонением не более 20%.

Измерения ИК-поглощения проводились в условиях нормального падения света. Температура измерений комнатная. Прошедшее через образец излучение фиксировалось германиевым фотодетекто-

ром. Модуляция заполнения квантовых точек дырками осуществлялась прямоугольными импульсами обратного смещения с частотой 700 Гц. Для установления необходимой амплитуды импульсов и ее связи с зарядовым состоянием квантовых точек была измерена вольт-фарадная характеристика структуры. Результат, полученный на частоте 100 кГц, представлен на рис. 2а. При нулевом смещении точки заполнены дырками и заряжены положительно. Область пространственного заряда находится в p -Si выше слоя Ge. Вблизи $V \approx 0.5 \text{ В}$ край этой области достигает массива квантовых точек, и дырки начинают освобождать уровни в островках. При этом емкость структуры C практически не зависит от напряжения V и определяется глубиной залегания квантовых точек. Используя приближенное соотношение $x \approx \epsilon\epsilon_0/C$, можно найти глубину залегания массива точек x . Для $C \approx 20 \text{ нФ/см}^2$ получаем $x = 0.5 \text{ мкм}$, что согласуется с величиной, заложенной при росте структур. При напряжении больше 8.5 В дырки полностью уходят из квантовых точек (последним опустошается основное состояние), точки становятся нейтральными, и емкость структуры начинает опять уменьшаться вследствие распространения области пространственного заряда в глубь кремния. Отметим наличие слабо выраженного пика емкости в области $V = 6-8 \text{ В}$, что является характерным признаком δ -образного спектра состояний в островках [15]. В дальнейшем измерение дифференциального поглощения в квантовых точках проводилось в условиях модуляции заполнения обратным смещением, меняющимся от нуля до $V = 2-10 \text{ В}$.

2.2. Межзонное поглощение света

На рисунке 3 приведены спектры поглощения, полученные при различных амплитудах модулирующего смещения. В области энергий 650–850 мэВ, меньших края собственного поглощения в Si ($\sim 1.12 \text{ эВ}$), наблюдается полоса поглощения шириной $\sim 70 \text{ мэВ}$. Аналогичный максимум в области энергий 730–750 мэВ наблюдался нами ранее в спектрах фототока кремниевого $p-i-n$ -диода с квантовыми точками Ge [14]. Заметим, что в этой же области энергий ($\sim 800 \text{ мэВ}$) и с такой же шириной находится пик фотолюминесценции, отвечающий экситонному переходу в квантовых точках Ge/Si(001) [16–19]. Анализ формы максимума поглощения показал, что он хорошо описывается суперпозицией двух гауссианов (рис. 4).

Мы связываем пик поглощения при 760–770 мэВ с возбуждением электрона из валентной зоны с кван-

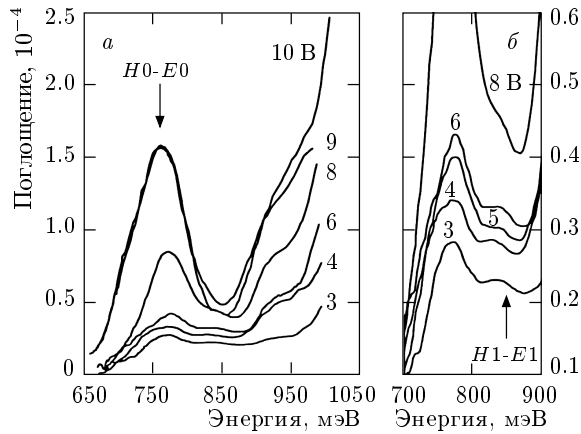


Рис. 3. Спектры поглощения при различном обратном смещении на диоде

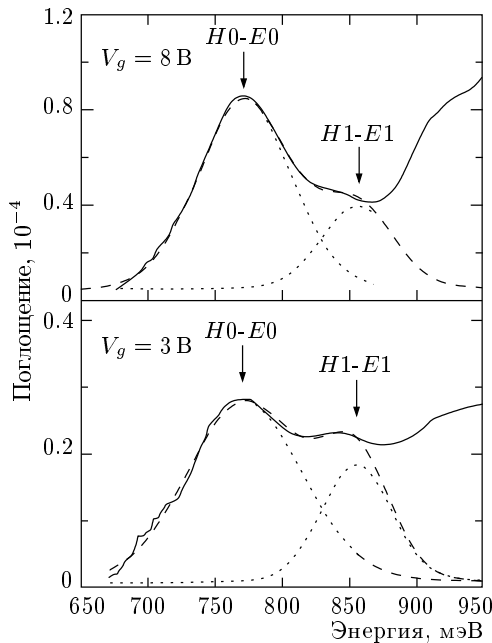


Рис. 4. Низкоэнергетическая область спектра поглощения, соответствующая двум экситонным переходам. Пунктирные линии — результат разложения экспериментального спектра (сплошные линии) на две гауссианы, штриховые линии — их сумма. Данные приведены для двух значений напряжения, 3 В и 8 В

товыми точками Ge в зону проводимости Si, в результате которого формируется основное состояние непрямого экситона (дырка появляется в основном состоянии ($H0$) в точках, а электрон локализуется в основном состоянии в Si ($E0$) вблизи гетерограницы). Линия меньшей интенсивности в области энер-

гий 850–860 мэВ отвечает возбужденному состоянию экситона (дырка и электрон находятся в возбужденных состояниях $H1$ и $E1$). Большая ширина полосы обусловлена флуктуациями размера островков.

При больших энергиях возбуждаются переходы в делокализованные состояния зоны проводимости, в результате чего вероятность поглощения возрастает. На этом фоне наблюдаются особенности, связанные, по-видимому, с участием высших возбужденных состояний экситонов.

Связь линии поглощения $H0 - E0$ с межзонным переходом в квантовых точках подтверждается анализом зависимости интегрального поглощения I от амплитуды модулирующего напряжения (рис. 2б). Площадь под пиком находилась путем аппроксимации линии поглощения формулой Гаусса. Для экситонного перехода

$$I = \frac{he^2 n f}{2m_0 \epsilon_0 c} (1 + \sqrt{\epsilon}), \quad (1)$$

где f — сила осциллятора, n — концентрация носителей, участвующих в поглощении, m_0 — масса свободного электрона, c — скорость света. Так как $I \propto n$, то график $I(V)$ непосредственно отражает изменение степени заполнения точек дырками при изменении обратного смещения на диоде. В области $V > 8.5$ В $I \approx 1.4 \cdot 10^{-5}$ эВ и не зависит от напряжения, так как все точки нейтральны (ситуация наиболее благоприятная для межзонных переходов). При уменьшении амплитуды модуляции интегральное поглощение уменьшается, поскольку основное состояние в квантовых точках начинает заселяться дырками и межзонные переходы подавляются. Очевидно, что этот сценарий полностью согласуется с вольт-фарадной характеристикой структуры, приведенной на рис. 2а.

Заметим, что площадь полосы, соответствующей возбужденному состоянию экситона, практически не зависит от напряжения в диапазоне 4–10 В, поскольку при таких напряжениях энергетический уровень, соответствующий возбужденному состоянию в островках, не содержит дырок.

Экспериментальное значение интегрального поглощения при $V > 8.5$ В может быть использовано для нахождения силы осциллятора f экситонного перехода. Поскольку максимальное число дырок, способных находится в основном состоянии квантовых точек, равно двум, то n равняется удвоенной плотности квантовых точек ($6 \cdot 10^{11}$ см⁻²). Взяв $I \approx 1.4 \cdot 10^{-5}$ эВ, получаем $f = 0.5$. Эта величина примерно в 20 раз меньше силы осциллятора для прямых экситонов в системе InAs/GaAs,

где $f = 10.9$ [21], что является прямым следствием пространственного разделения электрона и дырки. Кроме того, абсолютная величина поглощения ($\alpha = 1.6 \cdot 10^{-4}$ при $V = 10$ В) позволяет оценить эквивалентное сечение межзонного поглощения в квантовых точках Ge как $2.5 \cdot 10^{-16}$ см².

2.3. Взаимодействие экситона с дыркой

При уменьшении напряжения смещения от 8.5 В и менее (рис. 2б), т. е. при инжекции в островки дырок, был обнаружен сдвиг энергии экситонного поглощения на 11 мэВ в коротковолновую сторону. Полученный результат оказался совершенно противоположным тому, что наблюдалось ранее для прямых в пространстве экситонов в ансамблях квантовых точек InAs/GaAs [21, 12], в которых энергия экситонного перехода уменьшается при образовании заряженных комплексов. Приняв во внимание найденную выше величину силы осциллятора и взяв экспериментальные значения интегрального поглощения, мы определили среднюю заселенность основного состояния в квантовых точках дырками (N_h) для различных напряжений. При расчетах использовалось то очевидное обстоятельство, что инжекция дырки в островок сопровождается уменьшением числа возможных межзонных переходов на единицу, причем полное число переходов, связанных с основным состоянием в каждой квантовой точке, равно двум. Зависимость энергии экситонного перехода от N_h приведена на рис. 5 (темные символы). Важным является то, что энергия резко возрастает, когда в основное состояние квантовых точек инжектируется одна дырка, и меняется слабо при дальнейшем увеличении концентрации дырок.

Необходимо отметить, что квантовые точки находятся в области достаточно сильного вертикального электрического поля, которое в данных условиях может достигать 10^4 В/см и приводить к сдвигу уровней размерного квантования согласно квантовому эффекту Штарка [22]. Мы нашли три аргумента против объяснения наблюдаемого нами сдвига эффектом Штарка. Во-первых, штарковский сдвиг должен быть монотонным с увеличением напряженности электрического поля. Однако в нашем случае наблюдается скачкообразное изменение энергии перехода, причем именно при том напряжении, при котором меняется зарядовое состояние островков. Во-вторых, как легко сообразить, величина эффекта должна быть очень мала, поскольку размер островков в вертикальном направлении (их высота) составляет всего 1.5 нм. Действительно, в работе [23]

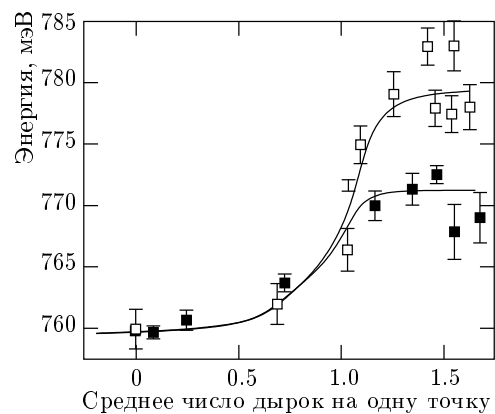


Рис. 5. Энергия экситонного перехода как функция числа дырок в основном состоянии квантовых точек. Черные квадраты соответствуют ситуации, когда инжекция дырок в квантовые точки достигается приложением внешнего смещения и формируются комплексы экситон-дырка (дополнительная подсветка отсутствует). Светлые квадраты соответствуют оптической инжекции электронов и дырок в квантовые точки при фиксированном обратном смещении $V = 9$ В. В такой ситуации образуются комплексы из двух экситонов

наблюдался штарковский сдвиг уровней величиной ≈ 60 мэВ в структурах Ge/Si, содержащих квантовые точки, высотой 7.5 нм в полях порядка 10^4 В/см. Поскольку величина сдвига зависит от размера квантовой ямы L как L^4 [24], то в наших структурах следует ожидать смещения резонанса всего на 0.1 мэВ. И наконец, в электрическом поле уровень дырки в гетероструктурах Ge/Si с квантовыми точками смещается в сторону делокализованных состояний валентной зоны [23]. Это подразумевает увеличение энергии межзонного перехода, что противоречит данным наших опытов. Таким образом, сдвиг энергии экситона нельзя интерпретировать в рамках квантового эффекта Штарка.

Рассмотрим детальнее взаимодействие между всеми частицами, возникающее при экситонном поглощении. При возбуждении экситона в однократно положительно заряженной точке формируется комплекс экситон-дырка, в котором электрон связан сразу возле двух дырок в основном состоянии. Одна из дырок инжектируется приложением смещения, вторая генерируется при переходе электрона из валентной зоны Ge в зону проводимости Si. Есть два дополнительных вклада в энергию заряженного экситона по сравнению с нейтральным. Первый — энергия расталкивания инжектированной и фотовозбужденной дырок (E_{hh}). Вторым — энер-

гия притяжения инжектированной дырки и фотоэлектрона (E_{eh}). Результирующая добавочная энергия для заряженного экситона определяется разностью $\Delta E_{ex-h} = E_{hh} - E_{eh}$. Поскольку две дырки в основном состоянии имеют антипараллельную ориентацию спинов, вклад обменного взаимодействия отсутствует [25]. В случае прямых экситонов взаимодействие электрона с дыркой доминирует и смещение линии заряженного экситона наблюдается в «красную» сторону [21]. Вследствие пространственного разделения носителей в квантовых точках второго типа, ожидается, что энергия E_{eh} будет меньше, чем E_{hh} , это приведет к сдвигу экситонной линии в коротковолновую область при образовании заряженного комплекса.

Приняв во внимание экспериментальные значения экситонного сдвига, $\Delta E_{ex-h} = 11$ мэВ и $E_{hh} = 36$ мэВ [26], получаем энергию взаимодействия электрона и дырки в квантовых точках, равную $E_{eh} = 25$ мэВ, что находится в согласии с самосогласованными расчетами энергии связи экситона в исследуемых структурах (разд. 2.5). Отметим, что эта величина почти на порядок превышает энергию связи свободного экситона в объемном Ge и примерно в два раза больше таковой в объемном Si. Этот результат для квантовых точек второго типа был теоретически предсказан Рорисоном [27] и связан с двумя обстоятельствами. Во-первых, наличие пространственной локализации хотя бы одной из частиц (в данном случае дырки) приводит к коррелированному движению второй частицы (электрону). Во-вторых, конечная высота потенциальных барьеров в реальных системах (разрывы зон) приводит к проникновению частиц в область барьеров, в результате которого возникает заметное перекрытие их волновых функций.

Отметим, что максимум поглощения, соответствующий возбужденному состоянию экситона, смещается слабее при появлении дырки в основном состоянии квантовых точек (рис. 2). Это обусловлено тем очевидным обстоятельством, что вследствие меньшего перекрытия волновых функций энергия взаимодействия дырки в возбужденном состоянии и дырки в основном состоянии меньше энергии взаимодействия двух дырок в основном состоянии.

2.4. Взаимодействие двух экситонов в квантовой точке

Дополнительные аргументы в пользу того, что наблюдаемый в области примерно 760 мэВ максимум поглощения связан с экситонным переходом в

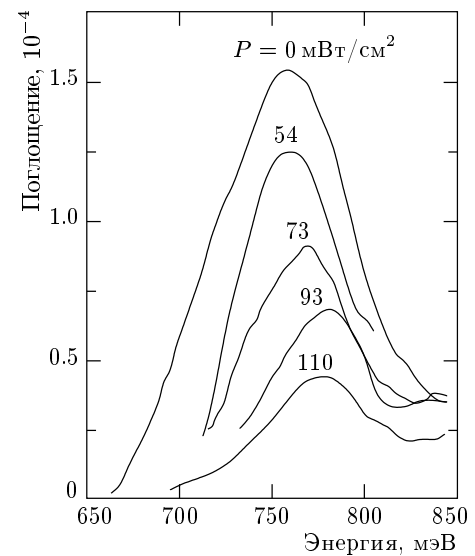


Рис. 6. Экситонная линия при различной мощности оптической накачки P

квантовой точке, были получены при оптической накачке структур галогеновой лампы. Спектры поглощения при фиксированной амплитуде модуляции ($V = 9$ В), но различных интенсивностях накачки показаны на рис. 6. В условиях дополнительной межзонной подсветки уровни дырок в точках и электронов в кремнии вблизи гетерограницы начинают заселяться неравновесными носителями. При достаточно большой интенсивности уровни, соответствующие основному состоянию, заполняются полностью, и экситонный переход $H0 - E0$ под действием зондирующего спектр поглощения ИК-излучения блокируется. На рисунке 6 действительно наблюдается подавление поглощения при увеличении интенсивности накачки.

На рисунке 5 (светлые символы) показана зависимость энергии экситонного перехода от среднего числа дырок в квантовой точке, генерируемых межзонной подсветкой. Видно, что оптическая генерация приводит к более сильному сдвигу максимума поглощения в ту же сторону, нежели инжекция дырок напряжением. Разница между экспериментами с электрической и оптической накачкой заключается в том, что в последнем случае поглощение фотона зондирующего излучения происходит в условиях существования в квантовой точке экситона, возбужденного дополнительной подсветкой. Таким образом, при освещении мы имеем два экситона в одной и той же квантовой точке, первый возбужден дополнительной подсветкой, второй генерируется зонди-

рующим пучком. По сравнению с изолированным экситоном, энергия взаимодействия двух экситонов возрастает на величину $\Delta E_{ex-ex} = E_{hh} + E_{ee} - 2E_{eh}$, где E_{ee} — энергия взаимодействия двух электронов, связанных возле квантовой точки хартриевским потенциалом двух дырок. Как и в предыдущем случае, благодаря пространственному разделению компонент экситона $E_{hh} > E_{eh}$, $E_{ee} > E_{eh}$ и $\Delta E_{ex-ex} > 0$. Это означает, что в гетероструктурах второго типа два экситона в одной квантовой точке расталкиваются и биэкситонная молекула не образуется.

2.5. Самосогласованные расчеты энергетической структуры непрямых экситонов

Численное моделирование волновых функций и энергетического спектра электронов и дырок в составе непрямых экситонов проводилось для пирамиды Ge с размерами основания 15×15 нм и высотой 1.5 нм. Пирамида находится на сплошном слое Ge толщиной 5 монослоев (7 Å) и со всех сторон окружена Si. Ориентация подложки и пирамиды соответствует экспериментальной ситуации (см. разд. 2.1). Направление z выберем параллельным главной оси симметрии пирамиды, а оси x и y — в плоскости сплошного слоя Ge. На первом этапе рассчитывалось распределение упругих напряжений в такой структуре. Использовалась модель валентных сил (valence force field model, VFF) с потенциалом в форме Китинга [28], основанная на потенциале упругих сил как функции межатомных расстояний и углов. Ее достоинством по сравнению с теорией сплошной среды служит возможность получения реального положения атомов. Моделирование показало, что в окружении пирамиды наиболее напряженной областью является окрестность ее вершины, в то время как внутри пирамиды в окрестности вершины упругие напряжения наиболее срелаксированы. С учетом полученного трехмерного распределения упругих деформаций внутри и вне пирамидальной квантовой точки и известных деформационных потенциалов в Si и Ge [29] рассчитывались разрывы валентной зоны и зоны проводимости на гетерогранице Ge/Si. В частности, было установлено, что в напряженной структуре нижними минимумами в зоне проводимости Si являются две Δ -долины, ориентированные в направлениях $[001]$ и $[00\bar{1}]$.

На втором этапе решалась система двух трехмерных уравнений Шредингера для электрона и дырки в приближении эффективной массы. Электрон и

дырка рассматривались как движущиеся в самосогласованном поле, создаваемом разрывом зон и второй частицей. Гамильтониан системы записывался в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_h + \hat{H}_{eh}, \quad (2)$$

где \hat{H}_e и \hat{H}_h включают операторы кинетической и потенциальной энергий невзаимодействующих электрона и дырки, а \hat{H}_{eh} описывает их взаимодействие. При моделировании комплексов экситон-дырка и экситон-электрон в систему уравнений добавлялось одно или два самосогласованных уравнения соответственно для дырки или дырки и электрона. Взаимодействие между заряженными частицами принималось в форме кулоновского потенциала

$$U_{ij}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) = e^2/4\pi\epsilon_0|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|.$$

Волновая функция экситона записывалась в приближении Хартри в виде

$$\psi_{ex}(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e) = \psi_h(\mathbf{r}_h)\psi_e(\mathbf{r}_e),$$

где $\psi_h(\mathbf{r}_h)$ — волновая функция дырки, $\psi_e(\mathbf{r}_e)$ — волновая функция электрона. Решение системы уравнений Шредингера осуществлялось на сетке с шагом, равным половине постоянной решетки (0.27 нм), содержащей $80 \times 80 \times 50$ узлов, с граничными условиями Дирихле. При расчетах использовались следующие зонные параметры. Разрыв зоны проводимости между соответствующими Δ -минимумами ненапряженных Ge и Si составляет 340 мэВ. Разрыв валентной зоны — 610 мэВ. Эффективные массы в зоне проводимости $m_z = 0.92m_0$ и $m_{xy} = 0.19m_0$, в валентной зоне $m_z = 0.2m_0$ и $m_{xy} = 0.39m_0$.

Экспериментальные и расчетные значения энергии локализации электрона при образовании экситона E_l , энергии связи экситона E_{eh} , а также сдвиги энергии экситонного перехода для комплексов экситон-дырка, ΔE_{ex-h} , и экситон-электрон, ΔE_{ex-ex} , по сравнению с энергией одного экситона в квантовой точке приведены в таблице. Из таблицы следует, что по всем позициям наблюдается удовлетворительное согласие теории и эксперимента. Моделирование дает несколько меньшее значение ΔE_{ex-ex} , чем эксперимент. По-видимому, это обусловлено пренебрежением вкладом взаимодействия между электронами на соседних квантовых точках. Расчеты показывают, что $E_l = 38$ мэВ, причем основную долю составляет энергия взаимодействия между электроном и дыркой $\langle \psi_{ex} | \hat{H}_{eh} | \psi_{ex} \rangle = 31$ мэВ, а оставшаяся часть ($\langle \psi_{ex} | \hat{H}_e | \psi_{ex} \rangle = 7$ мэВ) связана с возникновением потенциальной ямы на границе Ge/Si благодаря неоднородному распределению деформаций.

Энергетические параметры экситона и экситонных комплексов

Источник	E_l , мэВ	E_{eh} , мэВ	ΔE_{ex-h} , мэВ	ΔE_{ex-ex} , мэВ
Эксперимент	—	25	$+(11 \pm 3)$	$+(19 \pm 5)$
Расчеты	38	31	+9.7	+10.2

Примечание. Значок + означает сдвиг в коротковолновую область спектра.

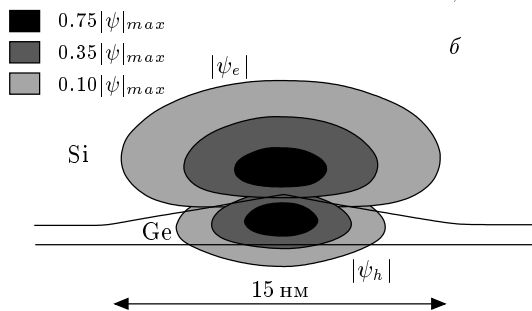
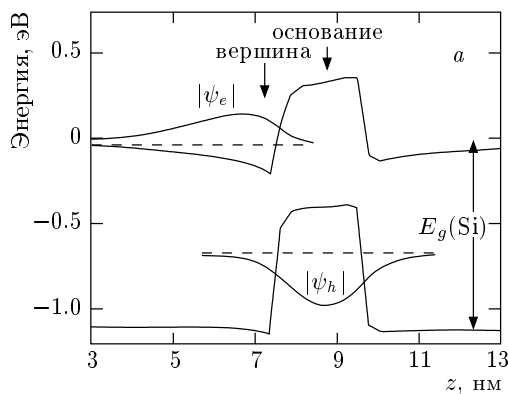


Рис. 7. Рассчитанный профиль потенциала, в котором движется электрон и дырка в составе непрямого экситона, вдоль оси z , проходящей через вершину пирамиды Ge (а). Двумерное изображение модуля волновых функций электрона $|\psi_e|$ и дырки $|\psi_h|$ в поперечном сечении квантовой точки и ее окружения (б). По-разному закрашены области, на границе которых волновые функции убывают до 75%, 35% и 10%

Профиль потенциала, связывающего электрон и дырку в составе экситона, в направлении оси z , проходящей через вершину пирамиды, показан на рис. 7а. На рисунке 7б приведены изображения модуля волновых функций электрона и дырки в поперечном сечении квантовых точек. Видно, что электрон в основном состоянии локализован в окрестности вершины пирамиды в кремнии (область максимального сжатия по вертикали и растяжения в латеральном направлении), тогда как дырка сосредоточена вблизи основания пирамиды. Основное состояние

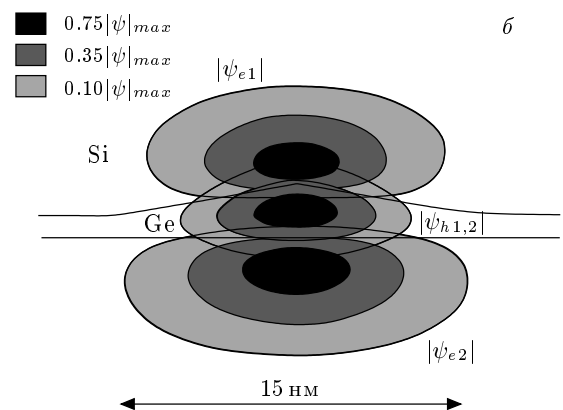
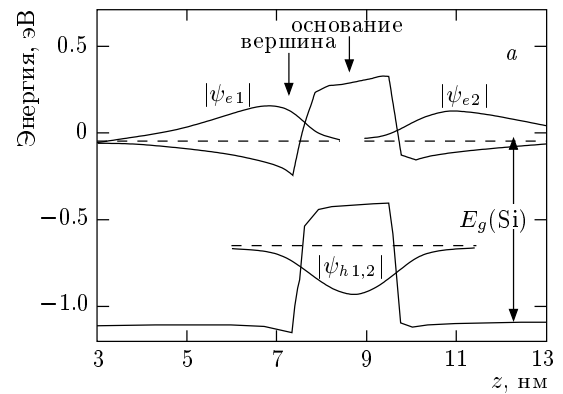


Рис. 8. Профиль потенциала (а) и двумерное изображение волновых функций (б) двух экситонов в одной квантовой точке

дырки имеет перекрытие волновых функций с основным электронным состоянием 15%. Если взять для прямых экситонов в гетеросистеме InAs/GaAs перекрытие 80% [30] и силу осциллятора $f = 10.9$ [21], то для экситона с перекрытием волновых функций электрона и дырки 15% следует ожидать $f \approx 0.4$, что близко к данным наших опытов ($f = 0.5$). Этот результат свидетельствует о том, что относительно большая сила осциллятора для непрямых экситонов в квантовых точках гетероструктуры Ge/Si обусловлена проникновением частиц в барьеры.

Структура комплекса, состоящего из двух экс-

тонов, связанных вблизи одной квантовой точки, показана на рис. 8. Оказалось, что при возбуждении двух экситонов электроны вследствие кулоновского расталкивания разделяются в пространстве: второй электрон локализуется с обратной стороны от квантовых точек, т. е. вблизи гетерограницы кремния со сплошным слоем германия.

3. МЕЖУРОВНЕВЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ПЕРЕХОДЫ В МНОГОСЛОЙНЫХ СТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ТОЧКАМИ

3.1. Коллективные явления в двумерных системах

Движение электронов в двумерных системах квантуется в поперечном направлении z . ИК-излучение, поляризованное в направлении z , может поглощаться двумерным электронным газом, возбуждая межподзонные переходы в квантовой долине. Известно, что если концентрация носителей в подзоне достаточно велика (10^{11} – 10^{12} см $^{-2}$), то энергия межподзонного поглощения может сильно отличаться от расстояния между одночастичными уровнями размерного квантования [31]. Причиной является возникновение под действием падающей электромагнитной волны коллективных возбуждений электронной или спиновой плотности, которые приводят к сдвигу межподзонного резонанса. Одним из таких коллективных эффектов является резонансное экранирование внешнего электрического поля самоподдерживающимися колебаниями электронной плотности, обусловленными дальнедействующим динамическим электрон-электронным взаимодействием (эффект деполяризации). Экспериментально эффект деполяризации проявляется в виде сдвига межподзонного резонанса в коротковолновую сторону при увеличении концентрации носителей в первой подзоне, а для систем с непараболическим связывающим потенциалом — еще и в сужении резонансной линии и в изменении ее формы [32].

С появлением ансамблей квантовых точек, в которых носители заряда ограничены еще и в латеральном направлении, возник вопрос о существовании коллективных возбуждений, поляризованных в плоскости структур. Недавно Мецнером и Делером [33] было отмечено, что динамическое многочастичное кулоновское взаимодействие должно быть эффективным и между электронами, осциллирующими в латеральном направлении. Тем не менее в экспериментах французской группы [8], выполнен-

ных на слоях InAs/GaAs, содержащих квантовые точки, в условиях поляризации света вдоль слоев, хотя и наблюдались межуровневые переходы, деполяризационный сдвиг обнаружен не был. Причина проста: слоевая концентрация квантовых точек ($4 \cdot 10^{10}$ см $^{-2}$) была недостаточно велика для проявления электрон-электронного взаимодействия и связывания оптических возбуждений в коллективную моду. По этой причине нам представлялось особенно актуальным провести исследования в структурах Ge/Si, в которых плотность точек в массиве достигает $3 \cdot 10^{11}$ см $^{-2}$.

3.2. Метод фотоиндуцированного поглощения

Исследуемые структуры выращивались на подложке n -Si(001) с удельным сопротивлением 5 Ом·см в условиях, аналогичным описанным в предыдущем разделе. Исключением является количество слоев островков Ge, которое в данном случае равнялось десяти. Слои разделялись прослойками Si толщиной 30 нм. Концентрация примеси фосфора в эпитаксиальном кремнии составляла приблизительно $2.5 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$.

Поскольку уровень легирования низок, в островках практически нет носителей (дырок) и межуровневые переходы отсутствуют. Заселение основного состояниями дырками можно осуществить двумя методами. Во-первых, это можно сделать с помощью эффекта поля, сформировав в структуре затвор и подав на него соответствующий потенциал. Во-вторых, можно использовать дополнительную межзонную подсветку, способную создавать большую концентрацию неравновесных носителей. Недостатком первого метода является неизбежное присутствие сильного электрического поля и, как следствие, в той или иной степени эффекта Штарка. С другой стороны, возбуждаемые при оптической накачке электроны могут влиять на энергетический спектр дырок в квантовых точках. Однако проведенные в разд. 2.5 численные расчеты экситонной структуры показали, что изменение энергии дырки в поле электрона не превышает 0.1 мэВ. Поэтому для инжекции дырок в квантовых точках использовалась мощная оптическая накачка галогеновой лампой (рис. 9). Излучение лампы пропусклось через интерференционный фильтр и имело максимум интенсивности на длине волны 0.67 мкм (энергия фотона 1.85 эВ). Интегральная мощность накачки измерялась Si-фотодиодом и варьировалась в диапазоне $P = 40$ – 140 мВт/см 2 . Прошедшее через образец

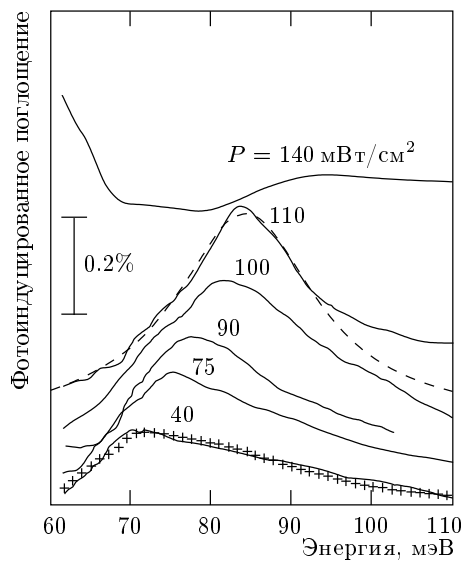


Рис. 9. Спектры фотоиндуцированного поглощения в области межуровневых переходов внутри квантовых точек. Кривые смещены вверх по оси ординат с шагом $5 \cdot 10^{-4}$. Увеличение мощности оптической накачки соответствует увеличению концентрации дырок в основном состоянии ансамбля нанокристаллов Ge. Крестами показан результат моделирования формы линии поглощения при $P = 40 \text{ мВт/см}^2$ с помощью выражений (3) и (4) для параметра асимметрии $\gamma = 1.25$. Штриховая линия представляет собой аппроксимацию линии поглощения для $P = 110 \text{ мВт/см}^2$ функцией Лоренца (5), описывающей возбуждение коллективной моды

ИК-излучение глобара фиксировалась болометром на частоте модуляции мощности накачки, которая составляла 1.7 Гц. Как и прежде, использовалась нормальная геометрия падения ИК-фотонов. Получаемые спектры фотоиндуцированного поглощения нормировались на опорный сигнал болометра, записанный без дополнительной подсветки структуры лампой.

Очень важно знать, какова концентрация дырок, оптически инжектированных в квантовые точки. Существуют два канала фотогенерации дырок при межзонной подсветке. Первый — это непосредственно в Ge. В линейном режиме двумерную концентрацию дырок в слое Ge с квантовыми точками можно оценить как $n = G\tau_{Ge}$, где $G = \alpha P/h\nu$ — скорость генерации, α — вероятность поглощения, τ_{Ge} — время межзонной рекомбинации в Ge. Для $\alpha \approx 2 \cdot 10^{-4}$ (см. разд. 2.2), $P \approx 100 \text{ мВт/см}^2$, $h\nu = 1.85 \text{ эВ}$ и $\tau_{Ge} \approx 10 \text{ мкс}$ [34, 35] получаем $n \approx 5 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$. Эта величина на три порядка меньше плотности кванто-

вых точек ($3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$). Таким образом, оптическая генерация непосредственно в слоях Ge не способна заметно повлиять на заполнение квантовых точек.

Следует учесть, однако, что неравновесные носители рождаются не только в Ge, но и в окружающем его Si (глубина проникновения фотонов с длиной волны порядка 0.67 мкм в Si составляет 2 мкм). В условиях эксперимента между характерными длинами нашей задачи — диффузионной длиной дырок (обычно $L_D = 100 - 1000 \text{ мкм}$ в Si [36]) и глубиной поглощения света d_a выполняется соотношение $L_D \gg d_a$. Поэтому существенная доля носителей выносится из области поглощения в объеме кремния путем диффузии и эффективно захватывается на связанные состояния квантовых точек Ge. В такой ситуации концентрация дырок, оптически инжектированных в квантовые точки, дается простым выражением $n = P\tau_{Si}/h\nu$, где τ_{Si} — время жизни неравновесных дырок в Si. Измерение времени уменьшения интенсивности поглощения света свободными носителями в аналогичных, но не содержащих квантовых точек слоях Si позволили нам определить $\tau_{Si} = 15 \text{ мкс}$, что согласуется с литературными данными [37]. Поскольку $\tau_{Si} \approx \tau_{Ge}$, рекомбинация электрона и дырки, захваченных на квантовые точки, не приводит к изменению концентрации дырок в островках. Взяв $P = 100 \text{ мВт/см}^2$, $h\nu = 1.85 \text{ эВ}$ и $\tau_{Si} = 15 \text{ мкс}$, находим $n = 5.1 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Приняв во внимание, что в структуре 10 слоев с островками и плотность островков в каждом слое равна $3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, получаем, что оптическая накачка мощностью 100 мВт/см^2 обеспечивает практически полное заселение основного состояния в квантовых точках (две дырки на островок).

3.3. Эффект латеральной деполяризации в массиве квантовых точек

Спектры фотоиндуцированного поглощения при различных интенсивностях оптической инжекции показаны на рис. 9. Температура измерений комнатная. В области энергий 70–90 мэВ (15–18 мкм) наблюдается максимум поглощения, соответствующий переходу дырки из основного в возбужденное состояние квантовых точек. Примерно такое же расстояние между первыми двумя уровнями в квантовых точках Ge (примерно 75 мэВ) наблюдалось ранее в экспериментах по резонансному туннелированию в структурах с одиночным слоем островков [3]. Тот факт, что поглощение фотонов осуществляется при нормальном падении света, свидетельствует о латеральной поляризации дырочных состо-

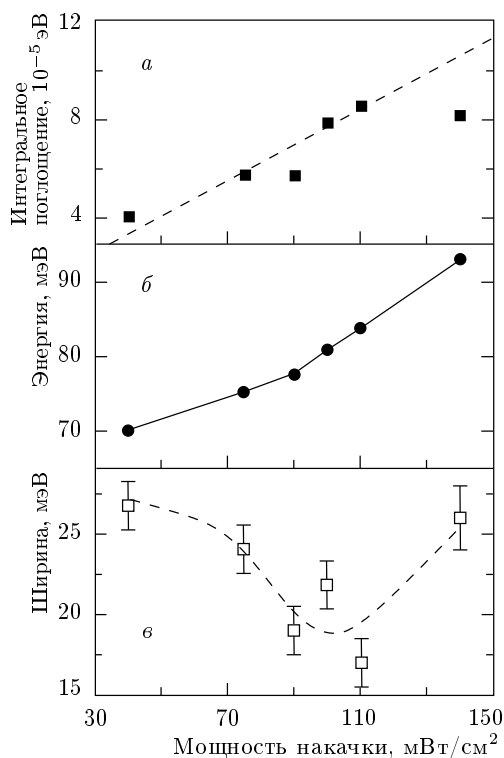


Рис. 10. Зависимости интегрального поглощения (а), энергии межуровневого резонанса (б) и его полной ширины на полувысоте (в) от мощности оптической накачки

яний в квантовых точках. При максимальной подсветке (140 мВт/см²) в спектре появляется «подножие», растущее в длинноволновую сторону и обусловленное, по-видимому, поглощением на свободных носителях в Si, не захваченных на квантовые точки. Интегральное поглощение (площадь под пиком) пропорционально мощности подсветки для $P < 140$ мВт/см² (рис. 10а), что указывает на линейный режим рекомбинации неравновесных носителей и означает, что концентрация инжектированных в квантовые точки дырок является линейной функцией интенсивности оптической накачки. При $P \approx 140$ мВт/см² основное состояние заселяется полностью и рост интенсивности поглощения прекращается.

При малой концентрации дырок в островках пик поглощения имеет ярко выраженную асимметричную форму: поглощение резко убывает при малых энергиях и имеет протяженный «хвост» в сторону больших по отношению к максимуму энергий. Описать асимметричную форму линии можно в рамках следующей простой модели. В отсутствие коллектив-

ных эффектов межуровневый резонанс испытывает неоднородное уширение за счет флуктуаций размера островков в массиве. Сделаем очевидное предположение, что распределение островков по размерам L описывается функцией Гаусса (это выполняется с хорошей точностью во всех известных нам экспериментальных ситуациях):

$$D(L) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(L - L_0)^2}{2\sigma^2}\right], \quad (3)$$

где L_0 — средний размер островка. Распределение расстояний между энергетическими уровнями в квантовых точках, $D(E)$, связано с распределением размеров островков соотношением $D(E) \propto D(L)(dE/dL)^{-1}$. В случае, когда энергия размерного квантования уменьшается с увеличением размера квантовой точки по степенному закону $1/L^\gamma$, имеем

$$D(E) \propto D(L)/E^{(1+\gamma)/\gamma}. \quad (4)$$

Если пренебречь зависимостью силы осциллятора от энергии, то распределение (4) должно описывать форму линии поглощения. Результат аппроксимации пика, измеренного при $P = 40$ мВт/см², с помощью выражения (4) показан на рис. 9 крестиками. Подгоночными параметрами служили положение максимума, интенсивность линии и параметр асимметрии γ . Видно, что форма резонанса полностью воспроизводится при $\gamma = 1.25$. Полученный результат указывает на то, что расстояние между уровнями зависит от размера квантовых точек слабее, чем $1/L^2$. На этот факт ранее неоднократно обращалось внимание при расчетах электронного спектра в нанокластерах пирамидальной и линзообразной формы [38–40].

С увеличением концентрации дырок в основном состоянии квантовых точек максимум поглощения смещается в сторону больших энергий, он сужается и становится более симметричным (рис. 10). (При $P > 110$ мВт/см² линия начинает опять уширяться вследствие экранирования взаимодействия между точками свободными носителями заряда.) Все эти черты свидетельствуют о наличии коллективных возбуждений электронной плотности, поляризованных в латеральном направлении. Необходимо отметить, что в электронной квантовой точке с параболической формой потенциала положение пиков межуровневого поглощения не зависит ни от числа электронов в яме, ни от кулоновского взаимодействия между ними (обобщенная теорема Кона [41]). Причиной является возможность разделения движе-

ния центра масс и относительного движения электронов. Однако в непараболических системах, а также в квантовых точках с дырками теорема Кона может нарушаться [42], и в этом случае при увеличении числа носителей на каком-либо уровне их энергия увеличивается благодаря электростатическому кулоновскому взаимодействию. Таким образом, если наблюдаемый нами сдвиг связан с взаимодействием дырок, то энергия перехода из основного состояния в возбужденное должна уменьшаться на величину E_{hh} при заполнении основного состояния. Однако это противоречит нашим результатам. Поэтому обнаруженный коротковолновый сдвиг не может являться следствием электростатической зарядки квантовых точек дырками.

В режиме коллективной электронной моды «индивидуальность» квантовых точек в массиве исчезает благодаря многочастичным эффектам. При этом ширина межуровневого резонанса должна определяться только временем жизни носителя в возбужденном состоянии, а не флуктуациями размеров островков. В этом случае энергетическая зависимость вероятности поглощения определяется функцией Лоренца:

$$\alpha = \frac{f N n e^2 \hbar}{2 m_0 \Gamma n_r c \epsilon_0} \frac{1}{1 + [(E - E_0)/\Gamma]^2}, \quad (5)$$

где $N = 10$ — число слоев квантовых точек, Γ — скорость релаксации возбужденного носителя в основное состояние (определяется механизмом рассеяния), n_r — показатель преломления. Аппроксимация экспериментальной линии поглощения для $P = 110$ мВт/см² с помощью выражения (5) (штриховая линия на рис. 9) позволила определить полную ширину резонанса на полувысоте $2\Gamma = 17$ мэВ и силу осциллятора $f = 0.95$. Значение $2\Gamma = 17$ мэВ соответствует времени жизни дырки в возбужденном состоянии $\tau_{ex} = \hbar/\Gamma = 0.8 \cdot 10^{-13}$ с, являющемуся типичной величиной и для двумерных систем [43]. Наличие эффективной релаксации свидетельствует о том, что эффект «бутылочного горла» в квантовых точках не играет заметной роли при межуровневых переходах. Аналогичный вывод был сделан ранее при анализе экситонных переходов InAs/GaAs в квантовых точках [2]. Причиной в данном конкретном случае может являться близость энергии межуровневого резонанса (~ 80 мэВ) к удвоенной энергии LO-фонона в Ge (≈ 40 мэВ), что должно стимулировать двухфононные процессы рассеяния.

Как уже отмечалось, кроме силы осциллятора и времени жизни оптические переходы часто характеризуются эквивалентным сечением поглощения. С

учетом амплитуды максимума поглощения, равной $4 \cdot 10^{-3}$ для десяти слоев точек, и концентрации носителей в каждом из слоев порядка $5 \cdot 10^{11}$ см⁻² (см. разд. 3.2) получаем сечение поглощения, которое равно $8 \cdot 10^{-16}$ см². Заметно меньшая величина ($1.6 \cdot 10^{-16}$ см²) была определена ранее для межуровневых дырочных переходов в квантовых точках InAs/GaAs [8].

Найденная в эксперименте сила осциллятора $f = 0.95$ соответствует дипольной длине перехода $\langle x \rangle = \sqrt{\hbar^2 f / 2 m_0 (E_1 - E_0)} = 0.7$ нм в плоскости образца для $E_1 - E_0 \approx 70$ мэВ. Теоретический анализ поляризационных правил отбора для основного межуровневого перехода был выполнен нами в приближении сильной связи с использованием атомных $sp^3d^5s^*$ -орбиталей. При расчетах оптических переходов также, как и ранее, учитывалось пространственное распределение упругих деформаций в структуре [28]. Оказалось, что переход дырки из основного состояния в возбужденное имеет отличный от нуля матричный элемент только в латеральном направлении и характеризуется силой осциллятора $f = 0.7$ и длиной диполя $\langle x \rangle \approx 0.9$ нм, что согласуется с экспериментальными данными.

3.4. Фотопроводимость в области межуровневых переходов

Для исследования фотопроводимости многослойная структура с восьмью слоями квантовых точек выращивалась на сильнолегированной подложке p^+ -Si, служащей нижним электрическим контактом. Верхний контакт формировался путем осаждения 50 нм p^+ -Si с концентрацией бора $\approx 10^{19}$ см⁻³. Толщина областей Si между соседними слоями Ge составляла 110 нм. На расстоянии 10 нм от каждого слоя Ge проводилось дельта-легирование Si бором со слоевой концентрацией $6 \cdot 10^{11}$ см⁻², что обеспечивало практически полное заселение основного состояния дырками в островках. Измерения проводились в вертикальной геометрии. Температурная зависимость темновой проводимости в таких структурах на омическом участке ВАХ следует активационному закону с энергией активации, близкой к глубине залегания основного энергетического уровня дырки (~ 400 мэВ). При увеличении напряжения свыше 0.1 В наблюдалась квадратичная зависимость тока от напряжения, связанная с инжекцией дырок в первое возбужденное состояние. В этом режиме энергия активации проводимости уменьшается до величины ~ 300 мэВ, что действительно близко к энер-

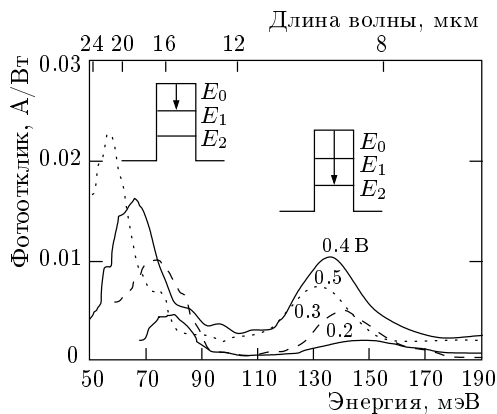


Рис. 11. Спектры фотопроводимости в вертикальной геометрии при различном приложенном напряжении. В результате дельта-легирования основное состояние в точках заполнено дырками. При напряжениях больше 0.1 В происходит инжекция дырок в возбужденные состояния. В верхней части рисунка показаны оптические переходы дырок в валентной зоне, соответствующие наблюдаемым максимумам фототока

гии ионизации возбужденного состояния в заряженной квантовой точке Ge [44].

На рисунке 11 показаны спектры ампер-ваттной чувствительности структуры при различных напряжениях. Наблюдаются два пика фотопроводимости. Низкоэнергетичный пик связан с переходом дырки из основного в первое возбужденное состояние, максимум при больших энергиях обусловлен, по-видимому, переходом на третий уровень в квантовой точке. Положения соответствующих максимумов согласуются с расстоянием между первым и вторым, первым и третьим уровнями в квантовой точке Ge, определенными ранее с помощью резонансной туннельной спектроскопии [3]. Возникновение фотопроводимости в вертикальной геометрии измерения обусловлено двумя процессами. Первый — фотогенерация дырки в возбужденное состояние. Второй — термическая ионизация возбужденного уровня, в результате которого дырка попадает в зону делокализованных состояний и дает вклад в фототок. Амплитуда пиков фотопроводимости как функция напряжения приведена на рис. 12. В области напряжений > 0.4 В интенсивность линий начинает уменьшаться, поскольку дырки накапливаются в возбужденных состояниях и оптические переходы блокируются. Комбинируя эти данные с измерениями токового шума, мы получили максимальную обнаружительную способность структуры как фотоприемника, равную $1.7 \cdot 10^8$ см·Гц^{1/2}/Вт на длине

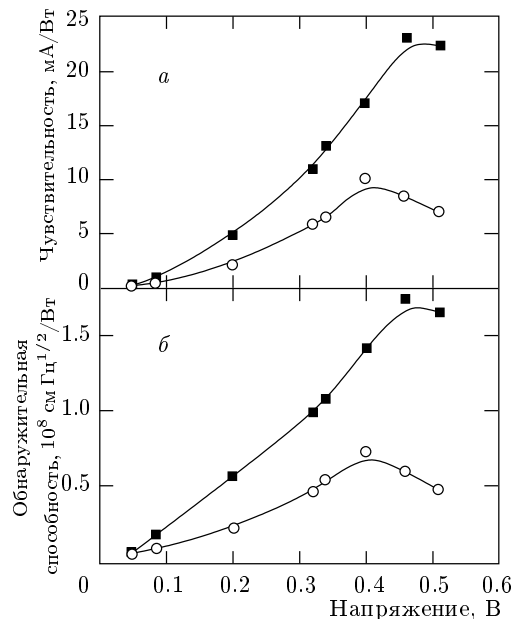


Рис. 12. Амплитуда пиков фотопроводимости (а) и обнаружительная способность (б) как функции приложенного напряжения. Черные квадраты соответствуют низкоэнергетическому максимуму, светлые — высокоэнергетическому

волны 20 мкм и $0.7 \cdot 10^8$ см·Гц^{1/2}/Вт на 10 мкм при $T = 300$ К при квантовой эффективности около 0.1%. Следует отметить, что даже в отсутствие оптимизации параметров структуры полученные значения выше достигнутых в настоящее время для гетероструктур InAs/GaAs, содержащих квантовые точки [45].

С фундаментальной точки зрения важным результатом является обнаружение смещения пиков фотопроводимости в длинноволновую область спектра при увеличении напряжения, причем это явление не зависит от полярности напряжения. «Красный» сдвиг межподзонного резонанса при инжекции носителей в возбужденные подзоны наблюдался ранее в двумерных системах [46] и является следствием подавления эффекта деполяризации [47]. Мы полагаем, что подобное явление должно наблюдаться и в массивах квантовых точек. При низких напряжениях (в отсутствие инжекции) межуровневый резонанс смещен в сторону больших, чем энергия размерного квантования, вследствие эффекта деполяризации. Принцип Паули приводит к тому, что при заполнении возбужденного уровня вероятность межуровневых переходов уменьшается и коллективное возбуждение распадается. В результате резонанс

должен возвратиться в исходное, не возмущенное коллективным взаимодействием, положение. Аналогичное поведение должно наблюдаться и в спектрах фотоиндуцированного поглощения при больших интенсивностях оптической накачки (разд. 3.3). Однако сильное поглощение свободными носителями в этих условиях не позволяет увидеть подобное явление.

4. ВЫВОДЫ

Проведенные в работе исследования оптических свойств гетероструктур Ge/Si с квантовыми точками позволяют сформулировать следующие выводы.

1. Изучены свойства непрямых в пространстве экситонов, связанных вблизи квантовых точек Ge. Показано, что энергия связи таких экситонов превышает энергию связи свободных экситонов как в Si, так и в Ge, что является следствием пространственного ограничения движения дырки в нанокристаллах Ge и подбарьерного проникновения электрона в область локализации дырки. Обнаружены сдвиги энергии экситонного поглощения в коротковолновую область спектра при образовании комплексов экситон-дырка и экситон-экситон в заряженных квантовых точках. Полученный результат объясняется пространственным разделением компонент экситона, благодаря которому кулоновское взаимодействие между двумя дырками в квантовой точке, а также между двумя электронами, локализованными в кремнии вблизи нее, доминирует над взаимодействием между электроном и дыркой.

Проведенный теоретический анализ в приближении самосогласованного поля с учетом неоднородного распределения упругих деформаций в структуре показал, что при возбуждении одного экситона электрон локализуется в Si в окрестности вершины Ge-пирамиды (область максимальных напряжений Si), а дырка сосредоточена вблизи основания пирамиды. В комплексе, состоящем из двух экситонов, расталкивание электронов приводит к их пространственному разделению, в результате которого второй электрон находится в Si под основанием пирамиды Ge.

2. Исследованы ИК-поглощение света и фотопроводимость при нормальном падении излучения в области энергий фотонов, равных 60–100 мэВ. На спектральных зависимостях обнаружены максимумы, соответствующие переходам дырок между первыми двумя уровнями размерного квантования в нанокристаллах Ge. Показано, что асимметричная

форма линии поглощения при низкой степени заполнения основного состояния в квантовых точках соответствует гауссовскому распределению размеров нанокристаллов с дисперсией 20%.

Обнаружен сдвиг линии поглощения в коротковолновую область, сужение линии и изменение ее формы от асимметричной к симметричной при увеличении концентрации дырок в основном состоянии квантовых точек. Результаты объяснены на основе представлений о возбуждении самоподдерживающихся коллективных колебаний плотности дырок в латеральном направлении, обусловленных дальнедействующим динамическим электрон-электронным взаимодействием (эффект латеральной деполяризации).

Установлено, что инжекция дырок в возбужденное состояние приводит к длинноволновому сдвигу максимума фотопроводимости вследствие распада коллективного возбуждения и подавления эффекта деполяризации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 99-02-17019), межвузовской научной программы «Университеты России — фундаментальные исследования» (проект 015.01.01.34) и программы «Поверхностные атомные структуры» (проект 1.14.99), а также частично финансировалась в рамках совместного проекта РФФИ-ГФЕН (проект 99-02-39051 ГФЕН).

ЛИТЕРАТУРА

1. A. I. Yakimov, V. A. Markov, A. V. Dvurechenskii, and O. P. Pchelyakov, *Phil. Mag.* **65**, 701 (1992).
2. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Шукин и др., *ФТП* **32**, 385 (1998).
3. А. В. Двуреченский, А. И. Якимов, *Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники* **4**, 4 (1999).
4. A. I. Yakimov, V. A. Markov, A. V. Dvurechenskii, and O. P. Pchelyakov, *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 2573 (1994).
5. Ж. И. Алферов, *ФТП* **32**, 3 (1998).
6. U. Bockelman and G. Bastard, *Phys. Rev. B* **42**, 8947 (1990).
7. H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2252 (1994).

8. S. Sauvage, P. Boucaud, J.-M. Gérard, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. B* **58**, 10562 (1998).
9. A. Weber, O. Gauthier-Lafaye, F. H. Julien et al., *Appl. Phys. Lett.* **74**, 413 (1999).
10. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, V. V. Kirienko et al., *Phys. Rev. B* **61**, 10 868 (2000).
11. A. I. Yakimov, C. J. Adkins, R. Boucher et al., *Phys. Rev. B* **59**, 12598 (1999).
12. K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* **58**, 3507 (1998).
13. T. M. Hsu, W.-H. Chang, K. F. Tsai et al., *Phys. Rev. B* **60**, R2189 (1999).
14. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, Yu. Yu. Proskuryakov et al., *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1413 (1999).
15. A. J. Chiquito, Yu. A. Pusep, S. Mergulhão et al., *Phys. Rev. B* **61**, 5499 (2000).
16. H. Sunamura, N. Usami, Y. Shiraki, and S. Fukatsu, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3024 (1995).
17. E. Palange, G. Capellini, L. Di Gaspare, and F. Evangelisti, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2982 (1996).
18. Feng Liu and M. G. Lagally, *Surface Science* **386**, 169 (1997).
19. P. A. M. Rodrigues, F. Cerdeira, and J. C. Bean, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 145 (1999).
20. V. Ya. Aleshkin and N. A. Bekin, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 4841 (1997).
21. R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997).
22. A. Harwit and J. S. Harris, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 685 (1987).
23. C. Miesner, O. Röthig, K. Brunner, and G. Abstreiter, *Physica E* **7**, 146 (2000).
24. G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang, and L. Esaki, *Phys. Rev. B* **28**, 3241 (1983).
25. A. Wojs and P. Hawruluk, *Phys. Rev. B* **55**, 13066 (1997).
26. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, А. И. Никифоров, О. П. Пчеляков, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 125 (1998).
27. J. M. Rorison, *Phys. Rev. B* **48**, 4643 (1993).
28. А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, *ЖЭТФ* **118**, 570 (2000).
29. C. G. Van de Walle, *Phys. Rev. B* **39**, 1871 (1989).
30. M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **52**, 11 969 (1995).
31. T. Ando, A. B. Fowler, and F. Stern, *Rev. Mod. Phys.* **54**, 437 (1982).
32. M. Załuzny, *Phys. Rev. B* **49**, 2923 (1994).
33. C. Metzner and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **60**, 11005 (1999).
34. S. Fukatsu, H. Sunamura, Y. Shiraki, and S. Komiyama, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 258 (1997).
35. А. О. Шегай, К. С. Журавлев, В. А. Марков и др., *ФТП* **34**, 1363 (2000).
36. J. A. del Alamo, in *Properties of Silicon*, ed. by T. H. Ning, INSPEC, The Institute of Electrical Engineers, London and New York (1988), p. 164.
37. L. Passari and E. Susi, *J. Appl. Phys.* **54**, 3935 (1983).
38. J. Kim, Lin-Wang Wang, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **57**, R9408 (1998).
39. J. Kim, Lin-Wang Wang, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **59**, 5678 (1999).
40. T. Brunhes, P. Boucaud, S. Sauvage et al., *Phys. Rev. B* **61**, 5562 (2000).
41. L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wójs, *Quantum Dots*, Springer-Verlag, Berlin (1998), p. 196.
42. T. Darhofer, U. Rössler, and D. A. Broido, *Phys. Rev. B* **52**, R14 376 (1995).
43. B. F. Levine, *J. Appl. Phys.* **74**, R1 (1993).
44. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, A. I. Nikiforov, and O. P. Pchelyakov, *Phys. Low-Dim. Struct.* **3/4**, 99 (1999).
45. T. Cho, J.-W. Kim, J.-E. Oh, and S. Hong, *Tech. Dig. Int. Electron Devices Meet.* **1**, 441 (1998).
46. K. Craig, B. Galdrikian, J. N. Heyman et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2382 (1996).
47. M. Załuzny, *Phys. Rev. B* **47**, 3995 (1993).