Письма в ЖЭТФ, том 86, вып. 7, с. 549 – 552 © 2007 г. 10 октября

Связывающее состояние дырки в двойных квантовых точках Ge/Si

А. И. Якимов[1)], *А. И. Никифоров, А. В. Двуреченский*

Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 16 августа 2007 г.

Методом спектроскопии комплексной проводимости (адмиттанса) исследована эмиссия дырок из связывающего состояния двухатомных искусственных молекул, образованных вертикально сопряженными квантовыми точками Ge/Si(001). Обнаружено, что при толщине барьерного слоя Si между квантовыми точками Ge больше 2.5 нм энергия связи дырки в искусственной молекуле становится меньше энергии ионизации одиночной квантовой точки, что противоречит результатам квантовомеханической модели молекулярных связей и свидетельствует об определяющей роли механических напряжений в формировании связывающей орбитали в системе упруго напряженных квантовых точек.

PACS: 73.20.Mf, 73.50.Pz

Пары туннельно связанных квантовых точек (КТ), способные обмениваться внутри себя элементарным зарядом либо спином, рассматриваются в настоящее время в качестве возможного квантового бита информации при реализации квантовых вычислений [1 – 4]. С точки зрения электронной структуры туннельная связь означает формирование обобществленной между КТ орбитали – аналога ковалентной связи в природных молекулах. Из принципа неопределенности следует ожидать, что энергия связи электрона в основном состоянии двойной КТ (в искусственной молекуле) всегда больше энергии электрона в изолированных квантовых точках, и по этой причине такое стабильное состояние называют связывающим (bonding). По мере удаления КТ друг от друга энергия связи должна монотонно уменьшаться, асимптотически приближаясь к энергии электрона в одиночной яме [5].

Наиболее перспективными с точки зрения практического применения являются КТ, полученные в результате самоорганизации полупроводниковых наноструктур в процессе гетероэпитаксиального роста материалов с большим несоответствием параметров решетки. Достоинство таких систем заключается в малом размере ($\sim$ 10 нм) КТ, в результате чего эффекты размерного квантования проявляются вплоть до температур вблизи комнатной. В работе [6] было проведено численное моделирование пространственной конфигурации основного состояния и энергии связи дырки в "двухатомных" искусственных молекулах, образованной вертикально сопряженными самоорганизующимися квантовыми точками Ge/Si(001). Было обнаружено, что в отличие от ожидаемого поведения, вытекающего из традиционной квантовомеханической модели, связывающее состояние дырки в двойных КТ Ge/Si характеризуется рядом особенностей. Во-первых, на зависимости энергии дырки в связывающем состоянии ($E_{\rm QDM}$) от толщины барьерного слоя Si между КТ Ge ($t_{\rm Si}$) существует локальный минимум. Во-вторых, при увеличении $t_{\rm Si}$ величина $E_{\rm QDM}$ в системе из двух точек становится меньше энергии ионизации одиночной КТ. И хотя физическая причина предсказанных аномалий была понята (она обусловлена релаксацией упругих деформаций и уменьшением глубины потенциальной ямы для дырок, возникших при сопряжении КТ), экспериментального доказательства такого необычного поведения получено не было. В настоящей работе сообщается о результатах измерений энергии связи дырки в двойных КТ Ge/Si. Полученные экспериментальные данные подтвердили теоретические предсказания.

Для определения энергий связи дырок в одиночной и двойных КТ Ge/Si и проверки выдвинутых представлений нами была применена методика спектроскопии адмиттанса [7]. Первоначально в эксперименте проводились измерения температурных зависимостей проводимости G диодов Шоттки со встроенными в базовую область слоями КТ на различных частотах зондирующего сигнала f и при различных значениях обратного смещения U_b. На основе этих данных с помощью процедуры, описанной в [8], восстанавливаются температурные зависимости темпа эмиссии дырок из связанных в КТ Ge состояний в валентную зону Si (рис.1a). Далее находится энергия активации темпа эмиссии дырок при различном положении уровня Ферми (контролируется величиной приложенного обратного смещения U_b), пред-

[1)] e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

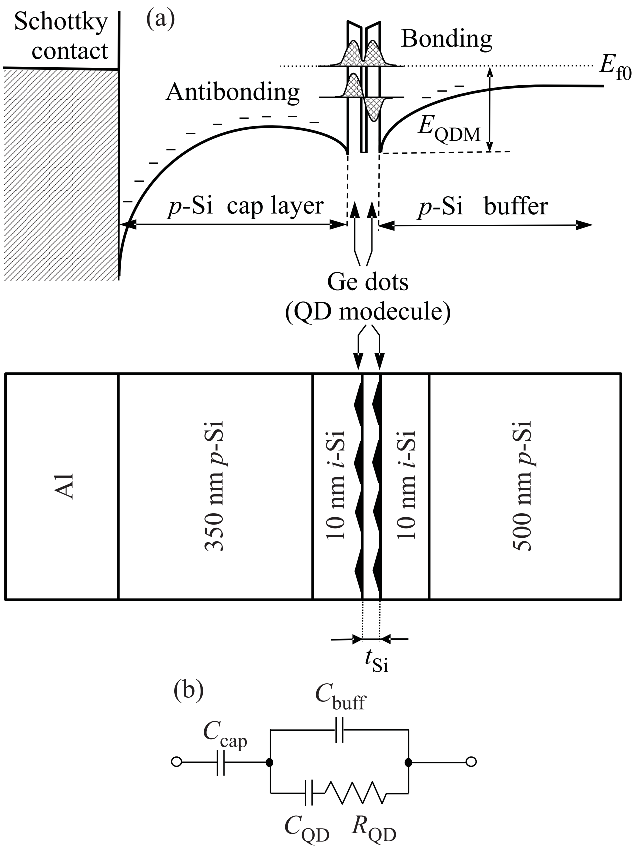

Рис.1. (a) Схематическое изображение профиля валентной зоны и поперечного сечения исследуемых структур. (b) Эквивалентная электрическая схема отклика диода Шоттки с квантовыми точками на переменное электрическое поле

ставляющая собой энергию связи дырки в слое/слоях квантовых точек. Для дальнейшего анализа экспериментальных данных и корректного сравнения их с результатами моделирования необходимо знать, какому числу дырок в КТ соответствует измеренная энергия $E_{\rm QDM}$. При фиксированной плотности КТ в массиве $n_{\rm QD}$ (она эквивалентна плотности искусственных молекул в двухслойной структуре) можно ввести фактор заполнения ν молекул дырками, эквивалентный среднему числу дырок, приходящихся на одну двойную КТ. Он определяется положением уровня Ферми в системе, а следовательно, и величиной приложенного обратного смещения U_b:

$$\nu(U_b) = p_{\rm QD}(U_b)/n_{\rm QD}; \qquad (1)$$

здесь $p_{\rm QD}(U_b)$ – плотность дырок в массиве "двухатомных" искусственных молекул. Как правило, профили распределения заряда в структурах находят из вольт-фарадных характеристик. Однако в случае гетероструктуры с резкими гетерограницами этот метод оказывается неприменим в стандартной его формулировке в силу ограничений, накладываемых дебаевской длиной экранирования на пространственное разрешение метода [9]. Поэтому для вычисления фактора заполнения мы использовали иной подход. Равновесная при данном смещении U_b концентрация дырок в массиве пар КТ определяется, исходя из дифференциальной емкости $C_{\rm QD}$ слоя двойных КТ следующим выражением:

$$p_{\rm QD}(U_b) = \frac{1}{qA}\int_{u_0}^{u} C_{\rm QD}(u)du, \qquad (2)$$

где A – площадь контакта Шоттки, u является величиной электростатического потенциала, создаваемого зарядом дырок в нанокластерах при данном смещении U_b, u_0 соответствует величине смещения, при котором все КТ нейтральны (дырочные уровни пусты) и $C_{\rm QD}(u_0) = 0$. Значение u_0 может быть найдено, исходя из известного уровня легирования по формулам, описанным в работе [10]. Для определения емкости $C_{\rm QD}$ необходимо построить эквивалентную электрическую схему, моделирующую отклик массива КТ на внешнее переменное электрическое поле. Для простоты мы рассматривали только такие смещения, при которых области пространственного заряда от контакта металл – полупроводник и от заряженного слоя нанокластеров сомкнуты друг с другом. Измерения вольт-фарадных характеристик в исследуемых гетероструктурах показали, что это условие выполняется при $U_b > (0-1)$ В в зависимости от конкретного образца. Согласно работе [11], массив КТ на переменном токе может рассматриваться как конденсатор с потерями с постоянной времени $\tau = R_{\rm QD}C_{\rm QD}$. Тогда эквивалентная схема структуры будет состоять из емкости $C_{\rm cap}$ обедненного покрывающего слоя p-Si, включенной последовательно с параллельно соединенными емкостью C_{buff} обедненной части буферного слоя p-Si и последовательной RC-цепочкой с емкостью $C_{\rm QD}$ и постоянной времени τ (рис.1b). Емкость C_{cap} предполагается не зависящей от U_b, частоты $\omega = 2\pi f$ и температуры T и при известной площади контакта A и толщине покрывающего слоя L вычисляется как $C_{cap} = \epsilon\epsilon_0 A/L$, где ϵ – относительная диэлектрическая проницаемость кремния, ϵ_0 – абсолютная диэлектрическая проницаемость вакуума. В этом случае соотношение между потенциалом u и приложенным смещением U_b будет определяться следующим выражением [12]:

$$u(U_b) - u_0 = -\int_{U_{b0}}^{U_b}\left[1 - \frac{C_0(U_b')}{C_{cap}}\right]dU_b', \qquad (3)$$

где U_{b0} – обратное смещение, при котором КТ электрически нейтральны, C_0 – емкость образца в пределе низких частот ($\omega\tau \ll 1$). При этом вклад в емкость от состояний в КТ может быть найден из вольт-фарадных характеристик, измеренных в пределах $\omega\tau \ll 1$ и $\omega\tau \gg 1$:

$$C_{\rm QD}(U_b) = \left(\frac{1}{C_0(U_b)} - \frac{1}{C_{\rm cap}}\right)^{-1} - \left(\frac{1}{C_\infty(U_b)} - \frac{1}{C_{\rm cap}}\right)^{-1}, \qquad (4)$$

где $C_\infty(U_b)$ – емкость диодов в пределе высоких частот, когда уровни дырок в нанокластерах не успевают перезаряжаться вслед за приложенным переменным напряжением. Проведенный таким образом с использованием соотношений (1)–(4) анализ вольт-фарадных характеристик позволяет найти зависимость среднего фактора заполнения массива КТ дырками от приложенного обратного смещения.

Образцы выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках p^+-Si с ориентацией (001) и удельным сопротивлением 0.005 Ом·см, легированных бором до концентрации $\sim 10^{19}$ см$^{-3}$. Активная область структуры состояла из двух номинально чистых слоев Ge, сформированных при температуре 500 °C и разделенных тонкой кремниевой прослойкой с толщиной $t_{\rm Si}$ (рис.1a). Величина $t_{\rm Si}$ варьировалась в эксперименте от 1.5 до 5 нм. Для выделения вклада от вертикально-сопряженных КТ в аналогичных условиях выращивался контрольный образец, содержащий только один слой нанокластеров Ge. По данным спектроскопии комбинационного рассеяния света содержание Ge в КТ составляло около 90%. Для исследования морфологии островков применялась сканирующая туннельная микроскопия (СТМ) образцов без покрывающего кремниевого слоя. На рис.2a и b приведены СТМ-изображения верхнего слоя нанокластеров для образца с одним и с двумя слоями квантовых точек, а также соответствующие гистограммы распределения КТ по размерам. Видно, что структурные характеристики массива нанокластеров Ge для образцов с одним и с двумя слоями Ge примерно одинаковы, квантовые точки имеют форму "hut"-кластеров с боковыми гранями $\{105\}$ и преимущественно квадратным основанием со сторонами, ориентированными вдоль направлений $\langle 100\rangle$. Средний размер нанокластеров составляет $\langle l\rangle \simeq 11$ нм, их поверхностная концентрация $n_{\rm QD} = 1.5\cdot 10^{11}$ см$^{-2}$. На рис.2e показано изображение поперечного среза структуры с двумя слоями КТ, разделенными Si толщиной $t_{\rm Si} = 3.5$ нм, полученное методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Хорошо видны двойные КТ, сопряженные в вертикальном направлении. Формирование диодов Шоттки завершалось напылением в вакууме пленки Al на поверхность образцов. Площадь алюминиевого контакта составляла $A = 8\cdot 10^{-3}$ см^2. Измерения проводимости и емкости структур осуществлялись с помощью программируемого RCL-измерителя Fluke PM6306 в диапазоне частот от 100 Гц до 1 МГц и температур $100-300$ К. Внешнее смещение подавалось на образцы с помощью системы Keithley 6430 Sub-Femtoamp Remote SourceMeter.

Рис.2. (a,b) СТМ-изображение участка поверхности размером 400×400 нм^2 и (c,d) гистограммы распределения квантовых точек по размерам в структуре с одним (a,c) и двумя (b,d) слоями нанокластеров Ge (расстояние между слоями Ge $t_{\rm Si} = 3$ нм). Стороны изображения ориентированы вдоль кристаллографического направления [100]. (e) ПЭМ-изображения поперечного среза структуры с парами вертикально-сопряженных квантовых точек (указаны стрелками), разделенные слоем Si толщиной $t_{\rm Si} = 3.5$ нм

Экспериментальная зависимость энергии связи дырки от фактора заполнения представлена на рис.3. Видно, что при $t_{\rm Si} > 2.5$ нм и $\nu > 0.3$ энергия $E_{\rm QDM}$ становится меньше энергии дырки в одиночной КТ. Здесь представляется важным провести количественное сравнение результатов моделирования и эксперимента. Для этого ограничимся случаем одночастичных дырочных состояний, определяющих электронную структуру молекулы Ge/Si, связанной

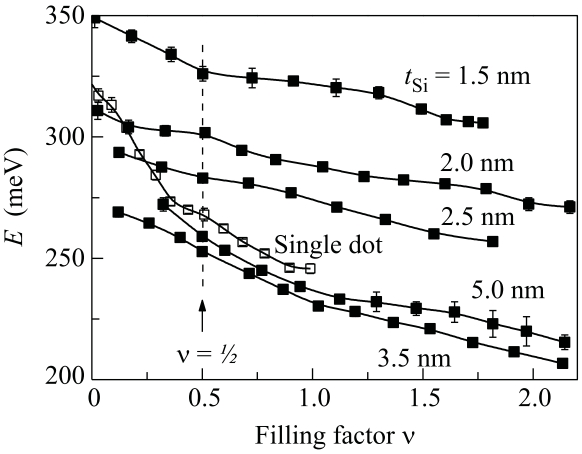

Рис.3. Зависимости энергии активации темпа эмиссии дырок из квантовых точек Ge в валентную зону Si от фактора заполнения КТ для образцов с различным расстоянием t_{Si} между квантовыми точками в парах

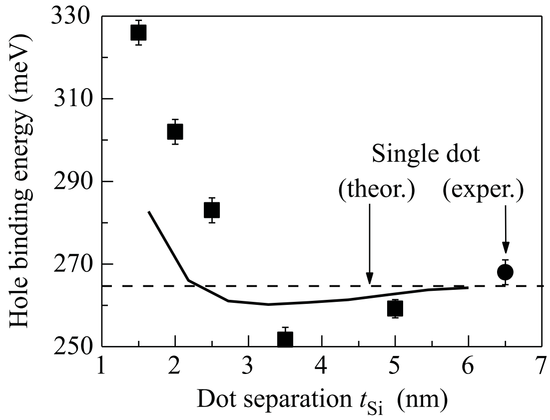

Рис.4. Энергия связи дырки в основном состоянии “двухатомной” молекулы как функция толщины барьерного слоя Si между квантовыми точками Ge t_{Si} для фактора заполнения $\nu = 1/2$. Черные квадраты – экспериментальные данные, сплошная линия – теоретическая кривая. Штриховой линией показан расчетный энергетический уровень дырки в одиночной квантовой точке. Круглая точка – результат измерений для структуры с одним слоем нанокластеров Ge

только одной дыркой. Как известно, основным фактором, определяющим неоднородное уширение пика плотности состояний (ПС) в массивах самоорганизующихся КТ является разброс размеров нанокластеров. ПС имеет максимум при энергии, соответствующей среднему размеру КТ в массиве. С другой стороны, в ансамблях квантовых точек ПС как функция фактора заполнения осциллирует и достигает максимумов при полуцелых значениях ν [13], что является следствием внутрицентрового кулоновского взаимодействия. Поэтому для количественной характеристики связывающего состояния дырки в двойных КТ, содержащих только одну дырку, необходимо брать энергию связи при $\nu = 1/2$. Полученная таким образом экспериментальная зависимость E_{QDM} от t_{Si} показана на рис.4 черными квадратами. Теоретическая кривая была рассчитана на основе подхода, изложенного в работе [6], за тем исключением, что в данном случае мы учли тот факт, что состав Ge в КТ равен 90%. Остальные 10% принадлежат атомам Si. Латеральный размер нанокластеров Ge был взят равным 11 нм. Расчет деформаций выполнялся в рамках модели поля валентных сил с использованием межатомного потенциала Китинга. Энергия связи вычислялась в приближении сильной связи с использованием базиса sp^3. Теоретическая зависимость показана на рис.4 сплошной линией. Наблюдается хорошее (с точностью до 10%) согласие теоретических и экспериментальных данных. И в теории и в эксперименте получено одно и то же значение энергии в одиночной КТ (~ 265 мэВ). Кроме того, экспериментальная зависимость E_{QDM} от t_{Si} для двойных КТ адекватно воспроизводит аномальное поведение, предсказанное в расчетах.

Авторы благодарны Г.Ю. Михалеву за помощь в проведении моделирования. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 06-02-16143). А.И.Я. благодарит Фонд содействия отечественной науке.

1. D. Loss and D. P. DiVincenzo, Phys. Rev. A **57**, 120 (1998).
2. A. Barenco, D. Deutsch, and A. Ekert, Phys. Rev. Lett. **74**, 4083 (1995).
3. P. Zanardi and F. Rossi, Phys. Rev. Lett. **81**, 4751 (1998).
4. Xin-Qi Li and Y. Arakawa, Phys. Rev. A **63**, 012302 (2000).
5. M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer et al., Science **291**, 451 (2001).
6. А. И. Якимов, Г. Ю. Михалёв, А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, Письма в ЖЭТФ **85**, 527 (2007).
7. D. V. Lang, J. Appl. Phys. **45**, 3023 (1974).
8. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, V. A. Volodin et al., Phys. Rev. B **72**, 115318 (2005).
9. H. Kroemer, Wu-Yi Chien, J. S. Harris et al., Appl. Phys. Lett. **36**, 295 (1980).
10. В. Я. Алешкин, Н. А. Бекин, М. Н. Буянова и др., ФТП **33**, 1246 (1999).
11. S. Anand, N. Carlsson, M.-E. Pistol et al., J. Appl. Phys. **84**, 3747 (1998).
12. С. Зи, *Физика полупроводников приборов*, М.: Мир, 1984.
13. J. Zhang and B. I. Shklovskii, Phys. Rev. B **70**, 115317 (2004).