Письма в ЖЭТФ, том 104, вып. 12, с. 845 – 848

Усиление фотолюминесценции в гетероструктурах Ge/Si с двойными квантовыми точками

А. Ф. Зиновьева[a1)], *В. А. Зиновьев*[a], *А. И. Никифоров*[a], *В. А. Тимофеев*[a], *А. В. Мудрый*[b], *А. В. Ненашев*[a,c], *А. В. Двуреченский*[a,c]

[a]*Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[b]*НПЦ НАН Беларуси по материаловедению, 220072 Минск, Беларусь*

[c]*Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 14 октября 2016 г.
После переработки 3 ноября 2016 г.

Исследована фотолюминесценция структур с двойными квантовыми точками (КТ), представляющими собой два вертикально-совмещенных Ge-нанокластера, в зависимости от толщины Si-слоя, разделяющего эти нанокластеры. Для структуры с оптимальной толщиной Si-слоя $d = 2$ нм наблюдалось семикратное увеличение интегральной интенсивности фотолюминесценции по сравнению со структурами с большей толщиной d. Наблюдаемый эффект объясняется увеличением интеграла перекрытия волновых функций электрона и дырки в структуре с оптимальной толщиной спейсера. Увеличение интеграла перекрытия обеспечивается двумя факторами. Первый заключается в том, что электроны в данной структуре локализованы вблизи ребер оснований Ge-нанокластеров, и их волновые функции строятся из состояний Δ долин, ориентированных в k-пространстве перпендикулярно направлению роста [001]. Это приводит к увеличению вероятности проникновения электронов в Ge-области, служащие барьером для электронов. Вторым фактором является неоднородное распределение КТ в плоскости массива (001) – квантовые точки собираются в плотные группы из нескольких КТ. Сильная туннельная связь между точками в группе увеличивает вероятность нахождения дырки на краю квантовой точки, что также способствует увеличению вероятности излучательной рекомбинации.

DOI: 10.7868/S0370274X16240012

В настоящее время в мире существует значительный интерес к поиску возможных путей создания светоизлучательных приборов на основе кремниевой технологии. Эффективность излучательной рекомбинации в кремнии затруднена из-за его непрямозонной природы, однако, если удастся найти способ ее увеличения, то это может решить проблему интеграции приборов оптоэлектроники и современной микроэлектроники на кремниевой подложке. На сегодня предпринято довольно много попыток решения этой проблемы. Наиболее положительные результаты связаны с использованием эрбия [1–3], коротко-периодных решеток Si/Ge [4, 5], Si нанокристаллов [6, 7], пористого кремния [8, 9], и дефектов (дислокаций) в Si [10, 11]. Предполагалось, что одним из возможных решений будет использование наноразмерных структур с Ge/Si квантовыми точками (КТ), где из-за пространственного квантования снимается запрет на прямые оптические переходы в k-пространстве [12–14]. Однако существующие на сегодня результаты показывают, что в структурах с Ge/Si квантовыми точками, созданными на основе молекулярно-лучевой эпитаксии, заметного увеличения темпа излучательной рекомбинации не происходит. Одной из причин этого может быть то, что данный тип квантовых точек относится к гетероструктурам II типа, где электрон и дырка локализуются по разные стороны от гетерограницы: дырка локализуется внутри Ge квантовой точки, а электрон – в потенциальной яме, формирующейся за счет деформаций в Si-слое вблизи КТ. Это приводит к малому интегралу перекрытия волновых функций электрона и дырки и, соответственно, малой вероятности излучательной рекомбинации. Недавно полученные результаты по исследованию двойных вертикально совмещенных Ge/Si квантовых точек показали, что эта система может быть использована для увеличения интеграла перекрытия. Согласно теоретическим расчетам, сила осциллятора может быть увеличена многократно (до пяти раз) при оптимальных параметрах структур (расстояние между квантовыми точками и их размер) [15]. Однако до сих пор прямого доказательства этих предсказаний нет.

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

В настоящей работе получено семикратное увеличение интегральной интенсивности фотолюминесценции для структур с двойными слоями вертикально совмещенных квантовых точек при оптимальном расстоянии между слоями КТ $d = 2$ нм. Малое расстояние между слоями квантовых точек обеспечивает достаточно большую туннельную связь между точками по вертикали и позволяет рассматривать данный объект как молекулу из искусственных атомов.

Идея увеличения интенсивности вероятности излучательной рекомбинации в структурах с двойными слоями квантовых точек основана на увеличении интеграла перекрытия волновых функций электрона и дырки за счет распределения плотности вероятности нахождения дырки между двумя квантовыми точками в молекуле. При малых толщинах слоя Si (спейсера), разделяющего слои квантовых точек, волновая функция дырки распределяется между квантовыми точками практически в равной степени, что приводит к довольно высокой вероятности нахождения дырки в Si-слое. Если электрон будет локализован в этом слое, то это должно будет привести к возрастанию вероятности излучательной рекомбинации. Однако результаты расчетов, проведенных для квантовых точек с латеральным размером $l \sim 10{-}20$ нм, показывают, что при малой толщине Si-спейсера ($d = 2$ нм) электрон предпочитает локализоваться в потенциальной яме вблизи вершины верхней квантовой точки [15]. Для локализации электрона в Si-слое между квантовыми точками необходимо раздвинуть квантовые точки вплоть до $d = 3$ нм. В этом случае вероятность нахождения дырки в Si-спейсере падает, и максимальный эффект увеличения вероятности излучательной рекомбинации теряется.

Ситуация меняется, если рассмотреть квантовые точки с большим латеральным размером $l \geq 30$ нм. Помимо основного места локализации вблизи вершины квантовой точки, в экспериментах проявляется еще одно место локализации электронов – на краю квантовой точки. В структурах с двойными КТ при толщине Si-спейсера $d = 2$ нм распределение деформаций меняется таким образом, что электронам выгоднее локализоваться влизи центра ребра основания Ge-нанокластера. Такая локализация подтверждается проведенными исследованиями методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), а именно, особой угловой зависимостью g-фактора, характерной для электронов на краю Ge нанокластеров [16]. Согласно теоретическим расчетам максимум вероятности нахождения электронов находится в Si-слое между КТ даже при малых толщинах спейсера $d = 2$ нм. Этот результат позволяет ожидать увеличения интеграла перекрытия волновых функций для таких структур. Однако эффект может быть не столь ярко выражен вследствие пространственного разделения максимумов волновых функций электрона и дырки (электрон локализован на краю Ge-нанокластера, а дырка – в центре Ge-нанокластера).

Недавно в экспериментах по исследованию двойных квантовых точек методом ЭПР [16] было получено косвенное подтверждение возрастания интеграла перекрытия волновых функций электрона и дырки для структур с толщиной спейсера $d = 2$ нм. При освещении образца светом ширина ЭПР линии возрастала с $\Delta H = 1.8$ Гс до $\Delta H = 2.2$ Гс. Авторы работы предположили, что уширение ЭПР линии связано с уменьшением времени спиновой релаксации электронов из-за обменного взаимодействия с дырками. Дырки, локализованные внутри квантовой точки, имеют более короткое время спиновой релаксации из-за большой константы спин-орбитального взаимодействия в Ge. Обменное взаимодействие с быстро релаксирующим спином дырки стимулирует релаксацию электронного спина, что приводит к возрастанию ширины ЭПР-линии ($\Delta H \sim 1/T_2$, где T_2 – время релаксации поперечной компоненты спина).

В настоящей работе были исследованы люминесцентные свойства аналогичных структур с двойными квантовыми точками. Образцы были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках Si(001) с удельным сопротивлением ~ 1000 Ом$\cdot$см. Было выращено 5 слоев двойных квантовых точек, разделенных между собой слоями кремния толщиной 30 нм. Для проверки оптимальности выбранных условий для локализации электрона в Si-спейсере, разделяющем квантовые точки в двойном слое, было выращено 3 структуры с разной толщиной спейсера $d = 2$; 3; 4 нм (рис. 1).

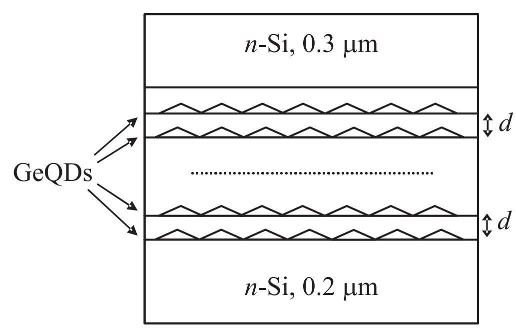

Рис. 1. Схематическое изображение структур с двойными слоями квантовых точек. Толщина Si-слоя, разделяющего двойные слои квантовых точек, меняется от структуры к структуре, $d = 2; 3; 4$ нм

Каждый слой квантовых точек был сформирован путем осаждения 5 монослоев Ge при температуре

500 °C. Двойные слои квантовых точек были закрыты слоем Si толщиной 0.3 мкм, легированным сурьмой с концентрацией $n \sim 5 \cdot 10^{16}$ см$^{-3}$. Под слоями КТ был сформирован аналогичный слой Si, легированный Sb. Поперечный срез структуры, полученный методом просвечивающей туннельной микроскопии (ПЭМ), показал отсутствие дислокаций и вертикальное совмещение нанокластеров в двойных слоях КТ. Исследования методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) тестовой структуры без последнего закрывающего Si-слоя показали, что островки Ge представляют собой *hut*-кластеры, вытянутые в одном направлении с размером наибольшей стороны основания, достигающим 40 нм. Размер короткой стороны основания *hut*-кластера составляет 10–15 нм, а высота 1–1.5 нм. Плотность *hut*-кластеров составляет $8 \cdot 10^{10}$ см$^{-2}$. Островки образуют группы, состоящие из нескольких близколежащих нанокластеров. В группах в большинстве случаев нанокластеры расположены в плоскости параллельно друг другу, сонаправлены вдоль длинных ребер оснований. Такое расположение нанокластеров, как показали расчеты [16], усиливает локализацию электронов вблизи ребер основания Ge-нанокластеров.

Измерения фотолюминесценции проводились при температуре жидкого гелия $T = 4.2$ K. Для возбуждения люминесценции использовался диодный лазерный модуль, работающий на длине волны 405 нм. Плотность мощности лазерного излучения составляла 4 Вт/см^2. Спектры фотолюминесценции регистрировались с помощью InGaAs p-i-n фотодиода (фирма "Hamamatsu", Japan).

На рис. 2 показаны спектры фотолюминесценции от исследуемых структур с двойными квантовыми

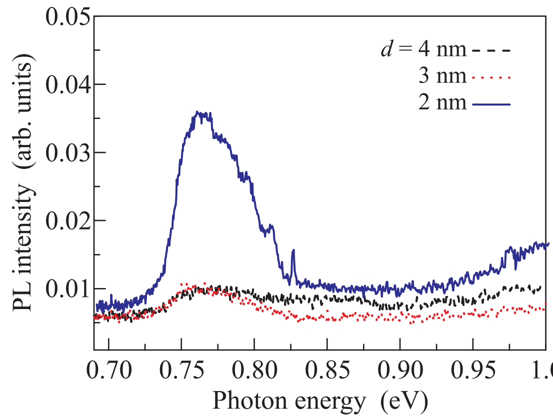

Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры фотолюминесценции, снятые при гелиевой температуре $T = 4.2$ K для структур с разной толщиной Si-спейсера $d = 2; 3; 4$ нм

точками. Спектры представляют собой широкие полосы в диапазоне 0.72–0.82 эВ с пиком интенсивности излучения 0.76 эВ. Подобные спектры с пиком излучения в диапазоне 0.7–0.8 эВ были получены ранее и другими научными группами, исследующими структуры с Ge/Si квантовыми точками [17–19]. Наблюдаемый пик фотолюминесценции при 0.76 эВ связан с оптическими переходами между состояниями дырок, локализованными в Ge квантовых точках, и электронными состояниями в Si-слоях вблизи квантовых точек. На рис. 2 ясно видно резкое различие между спектрами фотолюминесценции для структур с $d = 2$ нм и с $d = 3$; 4 нм. Интегральная интенсивность сигнала фотолюминесценции для структуры с $d = 2$ нм в диапазоне $0.72-0.82$ эВ более чем в семь раз превышает интегральную интенсивность сигналов фотолюминесценции для структур с большими толщинами Si-спейсеров.

Такой ярко выраженный эффект объясняется пространственным распределением волновых функций электронов и дырок между квантовыми точками в двойных слоях структуры (рис. 3). Формирование

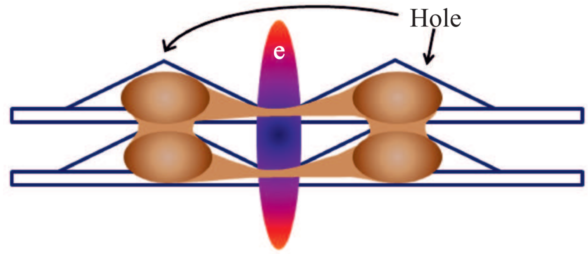

Рис. 3. (Цветной онлайн) Схематическое изображение двух близко расположенных вертикальных молекул из квантовых точек. Облако в центральной части рисунка представляет собой волновую функцию электрона, локализованного на краю квантовой точки. Облака внутри Ge квантовых точек символизируют волновую функцию дырки, распределенную по всем квантовым точкам в рассмотренной группе

групп, близко расположенных в плоскости квантовых точек, является одним из определяющих факторов, ответственных за эффект увеличения вероятности излучательной рекомбинации. Волновая функция дырки перераспределяется между близко расположенными в плоскости квантовыми точками. Такое взаимодействие квантовых точек в плоскости, помимо взаимодействия по вертикали, способствует увеличению интеграла перекрытия волновых функций электрона и дырки. Вторым фактором, ответственным за возрастание интенсивности фотолюминесценции, является возрастание вероятности проникновения электрона под Ge-барьер, $\eta \sim \int \psi_e^2(\mathrm{Ge})dV$. Можно легко показать (в приближении потенциальной ямы с конечными стенками), что $\eta \sim 1/(\sqrt{m_{\mathrm{eff}}})^3$, где m_{eff} – эффективная масса электрона, находящегося под барьером. Волновая функция электрона, локализованного вблизи ребра основания Ge-нанокластера, строится из состояний Δ^{100} ($\Delta^{\bar{1}00}$) и Δ^{010} ($\Delta^{0\bar{1}0}$) долин. В этом случае вероятность проникновения под барьер зависит от поперечной эффективной массы электрона: $\eta \sim 1/(\sqrt{m_\perp})^3 = 1/(\sqrt{0.29m_0})^3$. Для сравнения, дадим вероятность проникновения под барьер для электрона, локализованного на вершине квантовой точки, в структурах с $d = 3$ нм. В этом случае электронное состояние есть линейная комбинация состояний Δ^{001} ($\Delta^{00\bar{1}}$) долин, и вероятность проникновения электрона под барьер определяется продольной эффективной массой $\eta \sim 1/(\sqrt{m_\parallel})^3 = 1/(\sqrt{1.35m_0})^3$; значения масс взяты из [20]. Таким образом, электрон, локализованный вблизи ребра основания Ge-нанокластера, имеет на порядок большую вероятность проникновения под Ge-барьер, что, скорее всего, является основной причиной наблюдаемого различия спектров фотолюминесценции от структур с $d = 2$; 3; 4 нм.

Таким образом, для структур с двойными квантовыми точками Ge в Si при оптимальной толщине спейсера $d = 2$ нм было обнаружено семикратное увеличение интегральной интенсивности фотолюминесценции по сравнению с обычными структурами с квантовыми точками. Полученные результаты подтвердили теоретические предсказания о том, что определенная конфигурация молекулы (размер квантовых точек и расстояние между ними) может обеспечить увеличение интенсивности фотолюминесценции. Главным фактором, обеспечивающим наблюдение такого эффекта является то, что электронные состояния, локализованные вблизи ребер оснований Ge-нанокластеров, строятся из состояний Δ долин, ориентированных в k-пространстве перпендикулярно направлению роста [001]. Это обеспечивает высокую вероятность проникновения электронов под Ge-барьер, и соответственно увеличение интеграла перекрытия волновых функций электрона и дырки. Второй особенностью исследуемых структур, ответственной за наблюдаемый эффект, является образование в плоскости массива плотных групп квантовых точек. Сильная туннельная связь между точками в группе увеличивает вероятность нахождения дырки на краю Ge-нанокластера, что также способствует увеличению вероятности излучательной рекомбинации. Итак, мы продемонстрировали, что, варьируя параметры структуры с квантовыми точками, можно изменять распределение деформаций в структуре и, соответственно, место локализации электрона, тем самым улучшая светоизлучающие свойства Ge/Si структур с квантовыми точками. Полученные результаты открывают новые возможности на пути создания оптоэлектроники, основанной на Si.

Авторы признательны А. К. Гутаковскому за проведение исследований методом ПЭМ, С.А. Тийсу за проведение исследований методом СТМ. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 16-29-14031 и # 16-52-00160) и Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект # Ф16Р-061).

1. G. Franzò, F. Priolo, S. Coffa, A. Polman, and A. Camera, Appl. Phys. Lett. **64**, 2235 (1994).
2. A. J. Kenyon, Semicond. Sci. Technol. **20**, R65 (2005).
3. K. E. Kudryavtsev, V. B. Shmagin, D. V. Shengurov, and Z. F. Krasilnik, Semicond. Sci. Technol. **24**, 065009 (2009).
4. J. Engvall, J. Olajos, H. G. Grimmeiss, H. Presting, H. Kibbel, and E. Kasper, Appl. Phys. Lett. **63**, 491 (1993).
5. M. Virgilio, G. Pizzi, and G. Grosso, Appl. Phys. Lett. **110**, 083105 (2011).
6. L. Pavesi, L. Dal Negro, C. Mazzoleni, G. Franzó, and F. Priolo, Nature **408**, 440 (2000).
7. B. M. Monroy, O. Crégut, M. Gallart, B. Honerlage, and P. Gilliot, Appl. Phys. Lett. **98**, 261108 (2011).
8. P. M. Fauchet, J. of Luminescence **70**, 294 (1996).
9. S. Azimi, J. Song, Z. Y. Dang, and M. B. H. Breese, J. Appl. Phys. **114**, 053517 (2013).
10. V. Kveder, M. Badylevich, E. Steinman, A. Izotov, M. Seibt, and W. Schröter, Appl. Phys. Lett. **84**, 2106 (2004).
11. A. A. Shklyaev, Y. Nakamura, F. N. Dultsev, and M. Ichikawa, J. Appl. Phys. **105**, 063513 (2009).
12. M. Stoffel, U. Denker, and O. G. Schmidt, Appl. Phys. Lett. **82**, 3236 (2003).
13. N. D. Zakharov, V. G. Talalaev, P. Werner, A. A. Tonkikh, and G. E. Cirlin, Appl. Phys. Lett. **83**, 3084 (2003).
14. Z. F. Krasilnik, A. V. Novikov, D. N. Lobanov, K. E. Kudryavtsev, A. V. Antonov, S. V. Obolenskiy, N. D. Zakharov and P. Werner, Semicond. Sci. Technol. **26**, 014029 (2011).
15. A. I. Yakimov, A. A. Bloshkin, and A. V. Dvurechenskii, JETP Lett. **90**, 569 (2009).
16. A. F. Zinovieva, A. I. Nikiforov, V. A. Timofeev, A. V. Nenashev, A. V. Dvurechenskii, and L. V. Kulik, Phys. Rev. B **88**, 235308 (2013).
17. O. G. Schmidt, U. Denker, K. Eberl, O. Kienzle, and F. Ernst, Appl. Phys. Lett. **77**, 2509 (2000).
18. M. V. Shaleev, A. V. Novikov, A. N. Yablonskiy, Y. N. Drozdov, D. N. Lobanov, Z. F. Krasilnik, and O. A. Kuznetsov, Appl. Phys. Lett. **91**, 021916 (2007).
19. S. Das, K. Das, R. K. Singha, S. Manna, A. Dhar, S. K. Ray, and A. K. Raychaudhuri, Nanoscale Res. Lett. **6**, 416 (2011).
20. A. Dargys and J. Kundrotas, *Handbook on Physical Properties of Ge, Si, GaAs and InP*, Science and Encyclopedia Publishers, Vilnius (1994).