

## Прыжковая фотопроводимость и ее долговременная кинетика в гетеросистеме с квантовыми точками Ge в Si

Н. П. Степина<sup>1)</sup>, А. И. Якимов, А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, А. И. Никифоров

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 7 октября 2003 г.

Исследовано влияние освещения, вызывающего межзонные переходы, на прыжковую проводимость дырок вдоль двумерного массива квантовых точек Ge в Si. Обнаружено, что фотопроводимость имеет положительный либо отрицательный знак в зависимости от исходного заполнения квантовых точек дырками. Как при освещении образца, так и после выключения света наблюдается долговременная кинетика фотопроводимости ( $10^2 - 10^4$  с при  $T = 4.2$  К). Результаты обсуждаются в рамках модели, основанной на пространственном разделении неравновесных электронов и дырок из-за формирования потенциально рельефа положительно заряженными точками. В качестве дополнительного фактора для объяснения явления остаточной проводимости предлагается эффект выравнивания высот потенциальных барьеров, создаваемых заряженными квантовыми точками, за счет захвата в них фотодырок в процессе освещения и релаксации.

PACS: 73.20.Mf, 73.50.Pz

**Введение.** Особенностью квантовых точек (КТ) II типа, к которым относится система Ge/Si, является то, что большой разрыв валентных зон Ge и Si ( $\sim 0.7$  эВ) вызывает формирование в Ge потенциальной ямы только для дырок, в то время как для электронов в Ge имеется потенциальный барьер. Если плотность КТ достаточно велика ( $\sim 2 - 4 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>), то при низких ( $< 20$  К) температурах в такой системе наблюдается прыжковая проводимость дырок [1], причем при температуре  $\sim 10$  К происходит переход от активированной фононами прыжковой проводимости к бесфононному переносу заряда, доминирующую роль в процессе которого играет кулоновское взаимодействие. Авторы [2] утверждают, что выведение неупорядоченной системы из равновесия всегда повышает величину прыжковой проводимости, а характер релаксации к равновесию определяет именно крупномасштабное кулоновское взаимодействие [3]. Отличительной характеристикой ансамбля КТ по сравнению с другими неупорядоченными структурами является осциллирующая зависимость прыжковой проводимости от заполнения точек носителями заряда [1], которая способна коренным образом изменить поведение системы в неравновесных условиях. В частности, можно ожидать разного знака межзонной фотопроводимости для разного фактора заполнения Ge КТ дырками. Более того, положительно заряженные КТ создают кулоновский потенциал, являющийся притягивающим для электронов и отталкивающим для дырок. Как известно [4], нали-

чие в системе коллективных макроскопических потенциальных барьеров, связанных с различного рода неоднородностями, в большинстве случаев приводит к неэкспоненциальной кинетике фотоэлектрических возбуждений, проявляющейся аномально большими временами релаксации фотоотклика при включении и выключении света. Наличие кулоновского потенциала, диктующего разную скорость захвата неравновесных электронов и дырок в гетероструктурах Ge/Si с КТ при температурах, при которых доминирующим является прыжковый транспорт, дает основание ожидать аномальной динамики процессов переноса в таких системах.

В [5] утверждается, что долговременные релаксации прыжковой проводимости свидетельствуют о неэргодичности системы, которая заключается в неравенстве средних по времени значений физических величин, характеризующих систему, средним статистическим значениям. Неэргодический характер релаксации прыжковой проводимости активно изучается в электронных стеклах [2, 3, 6, 7], однако несмотря на большой объем экспериментального материала, микроскопический механизм явления до сих пор не установлен. Авторы предполагают, что при возбуждении системы меняется подвижность носителей, при этом возвращение к первоначальному состоянию происходит аномально медленно. Решающая роль взаимодействия в медленной кинетике проводимости в андерсоновских изоляторах подтверждена расчетами, проведенными в [8]. Для объяснения долговременных релаксаций (ДР) фотопроводимости в полупроводниковых структурах

<sup>1)</sup>e-mail: stepina@isp.nsc.ru

типа AlGaAs, AlGaN, часто прибегают к модели так называемых DX и AX-центров [9, 10], энергетическое положение уровней которых в запрещенной зоне меняется при освещении и сопровождается большими решеточными релаксациями, предотвращающими обратный переход. Остаточную фотопроводимость (ОФП), которая практически всегда сопутствует ДР, наблюдают также в магнитных материалах и связывают с ростом размеров ферромагнитных включений в диамагнитной матрице. Изменение размеров включений увеличивает степень их перекрытия и, соответственно, проводимость системы. Наконец, большой набор экспериментальных данных пытаются объяснить с помощью так называемой барьерной модели [4], в которой предполагается, что электрические поля барьеров, вызванных, как правило, неоднородностями в образце, приводят к пространственному разделению неравновесных носителей, затрудняя их рекомбинацию.

Несмотря на внушительный багаж экспериментальных фактов, физическая природа явления ДР остается неочевидной. Более того, неоднородности, определяющие долговременные процессы в известных полупроводниковых структурах, случайны, поэтому экспериментальные характеристики меняются от образца к образцу. В гетеросистемах с КТ Ge в Si величина потенциального барьера может контролироваться меняться за счет вариации зарядового состояния КТ, что позволяет создать модельную систему с воспроизводимым характером динамики.

В данной работе для выяснения механизма долговременных релаксаций фотопроводимости в двумерном массиве КТ Ge/Si будут исследованы закономерности кинетики фотопроводимости при облучении системы межзонным светом в зависимости от заполнения точек дырками, интенсивности подсветки, температуры измерения.

**Экспериментальные детали.** Структуры выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на высокоомных подложках Si(001), легированных бором до концентрации  $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$ . Германиевый слой толщиной 8 монослоев вводился в середину 400 нм эпитаксиальной пленки p-Si (концентрация бора составляла величину порядка  $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ). Контролируемое заполнение островков Ge дырками в структурах осуществлялось введением в образцы  $\delta$ -легированного бором слоя Si на расстоянии 5 нм ниже слоя КТ. Поскольку энергия ионизации примесей бора в кремнии составляет всего 45 мэВ, а энергии залегания первых десяти уровней дырок в германиевых пирамидах таких размеров, отсчитанные от потолка валентной зоны Si, 200–400 мэВ [11], то при низких температурах дырки, уходя с примесей,

заселяют уровни в КТ. Концентрация бора в различных образцах варьировалась от  $2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  до  $2.25 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ , что позволяло менять среднее число дырок  $p$ , приходящихся на одну КТ Ge, в интервале от  $p = 0.5$  до  $p = 6.5$ . Для предотвращения влияния поверхностных эффектов омические контакты создавались напылением Al в предварительно вытравленные канавки с последующим нагревом при температуре 400 °С в атмосфере азота. Глубина травления выбиралась таким образом, чтобы после прогрева формировались электрические контакты к захороненному слою германия. Для выделения эффектов, связанных с КТ, параллельно выращивались тестовые образцы без слоя германия. Средние размеры основания формирующихся нанокластеров Ge в плоскости роста, оцененные по данным ТЕМ и STM, составляли 10 нм, высота  $\sim 1$  нм, слоевая плотность нанокластеров  $\sim 4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  (детали приготовления образцов можно найти в [1]). Измерения тока проводились при напряжении 100 мВ, что соответствовало омическому участку вольт-амперных характеристик во всем исследованном интервале температур. В качестве источника межзонного освещения использовался GaAs светодиод с максимумом излучения на длине волны  $\sim 0.9$  мкм. Все измерения кинетики фотопроводимости проводились на образцах, которые несколько часов выдерживались при температуре измерения без подачи напряжения.

**Экспериментальные результаты.** На рис.1 приведена зависимость проводимости в единицах

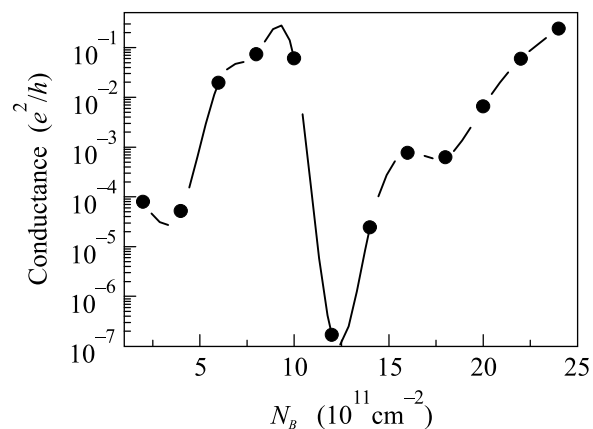


Рис.1. Зависимость проводимости при  $T = 4$  К в единицах  $e^2/h$  от уровня легирования  $\delta$ -слоя Si

$e^2/h$  от концентрации бора в  $\delta$ -слое Si. Видно, что величина проводимости осциллирует при изменении уровня  $\delta$ -легирования, а следовательно, заполнения КТ дырками. Поскольку заполнение основного состояния КТ происходит, когда число дырок  $p$  в точке равно 2, а возбужденного — шести [12], то именно при

этих значениях  $p$  и должны наблюдаться минимумы проводимости. Тогда первый минимум, проявляющийся при концентрации бора  $N_B \sim 1.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ , должен соответствовать 2 дыркам в точке. Однако при реальной плотности точек  $\sim 4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  данное легирование должно приводить к  $p = 3$ . Полученное расхождение может быть связано с ошибкой в определении уровня легирования в  $\delta$ -слое Si, который вычислялся косвенным образом, а также плотности КТ.

При облучении данных структур межзонным светом наблюдаются сложные переходные характеристики фотопроводимости, описывающие достижение стационарного состояния в процессе освещения и после выключения света. Типичные временные зависимости фотопроводимости для двух образцов с разным уровнем  $\delta$ -легирования показаны на рис. 2а. В от-

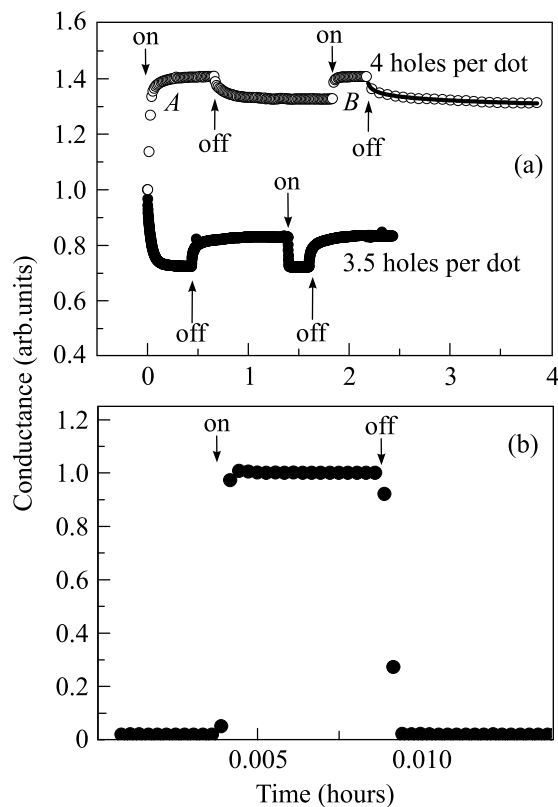


Рис.2. (а) Кинетика фотопроводимости, нормированной на исходное значение  $G$  в темноте, для образцов с разной концентрацией дырок в КТ. Сплошной линией показан результат аппроксимации экспериментальных данных с помощью логарифмической зависимости, (б) фотопроводимость образца без КТ

личие от тестовых структур без КТ, в которых фотопроводимость всегда положительна, для образцов

с германием фотопроводимость может иметь противоположный знак в зависимости от исходного числа дырок в точках. Так, образец с целым числом дырок в КТ характеризуется положительной фотопроводимостью, тогда как при дробном заполнении уровня дырками наблюдается отрицательная фотопроводимость. Изменение знака фотопроводимости при освещении служит, по нашему мнению, доказательством прыжковой, а не зонной природы фотопроводимости. Как освещение образца, так и выключение света приводят к аномально медленной кинетике фотопроводимости, причем даже через  $\sim 5000$  с после выключения света система не возвращается к своему равновесному значению проводимости и отличается на  $\sim 10\%$  от ее исходного значения после выключения света. Такое поведение характерно для эффекта остаточной фотопроводимости, наблюдаемого в кулоновских стеклах, магнитных материалах и в различных полупроводниковых системах [13–15]. Необходимо отметить, что в тестовых образцах без КТ долговременная кинетика фотопроводимости не наблюдалась (рис.2б). На рис.3 приведены зависимости положи-

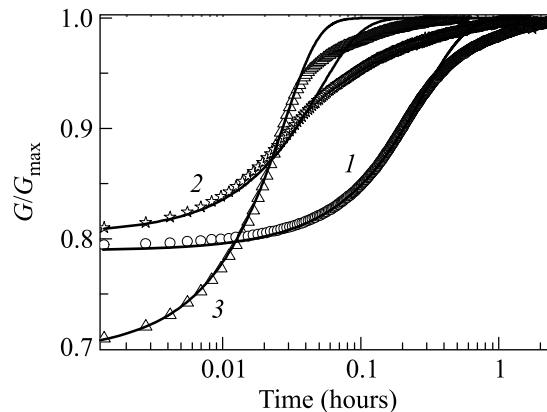


Рис.3. Зависимость кинетики фотопроводимости от интенсивности возбуждающего света. Сплошными линиями показан результат подгонки экспериментальных данных численным решением уравнения (2). Интенсивность света для кривых 2 и 3 составляет соответственно  $3I_0$  и  $7I_0$ , где  $I_0$ -интенсивность света для кривой 1

тельной фотопроводимости от времени для трех интенсивностей подсветки при первоначальном включении света из состояния термодинамического равновесия. Поскольку характер динамики отрицательной фотопроводимости с точностью до знака аналогичен таковому для положительной фотопроводимости, все дальнейшие экспериментальные данные приведены только для образцов, в которых наблюдалась

положительная фотопроводимость. Видно, что в начальный момент времени после освещения происходит быстрое возрастание проводимости  $G(t)$ , в дальнейшем ее рост существенно замедляется. Важно отметить, что при повторном включении света после примерно двухчасовой релаксации в темноте изменение проводимости происходит значительно быстрее, чем при первоначальном включении для равных исходных значений  $G$  (точки  $A$  и  $B$  на рис.2а). Температурная зависимость релаксации фотопроводимости после выключения освещения  $G_{PPC}$  продемонстрирована на рис.4. Все кривые нормированы в соответствии с  $G_{PPC}(t) = (G(t) - G_d)/(G(0) - G_d)$ ,

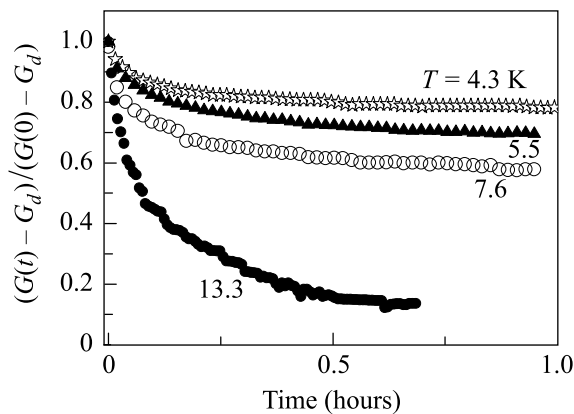


Рис.4. Релаксация фотопроводимости, нормированной в соответствии с  $G_{PPC}(t) = (G(t) - G_d)/(G(0) - G_d)$  при разных температурах

где  $G(0)$  – значение проводимости сразу после выключения света,  $G_d$  – исходная проводимость в темноте. Видно, что при повышении температуры наблюдается заметный эффект подавления остаточной фотопроводимости.

**Обсуждение результатов.** При освещении межзонным светом в образце формируется электрон-дырочная пара. Электрон легко захватывается положительно заряженными КТ, отталкивающий потенциал которых затрудняет захват дырок. Рекомбинация электрона с равновесной дыркой в КТ понижает барьер для захвата неравновесных дырок. Таким образом, при освещении захват дырок идет в условиях непрерывного понижения высоты потенциального барьера. Стационарное состояние наступает, когда потоки электронов и дырок в точки станут равны между собой. Изменение концентрации дырок в точках может быть описано следующим уравнением:

$$\frac{dp}{dt} = -J_e - C_{em} + C_{cap} \exp\left(\frac{-V}{kT}\right), \quad (1)$$

где  $J_e$  – поток электронов в точки,  $V$  – высота барьера,  $C_{em}$  и  $C_{cap}$  – скорость эмиссии и захвата. По-

скольку за время эксперимента невозможно достичь равновесного состояния, при котором скорости захвата и эмиссии равны, эмиссионным членом в уравнении (1) можно пренебречь. При малой концентрации неравновесных дырок  $\Delta p$  высоту барьера и проводимость можно положить пропорциональными  $\Delta p$ . Тогда уравнение для проводимости будет иметь вид

$$dG/dt = AI + B \exp(-\gamma G), \quad (2)$$

где  $I$  – интенсивность света,  $A$ ,  $B$  и  $\gamma$  – константы. Поскольку проводимость является осциллирующей функцией от заполнения точек дырками, то изменение концентрации дырок при освещении может приводить как к увеличению, так и к уменьшению проводимости. Так, положительная фотопроводимость должна наблюдаться при уменьшении числа дырок в точках в образцах с полным заполнением, тогда как отрицательная – при дробном заполнении квантового уровня дырками. Такую ситуацию мы и наблюдаем в эксперименте. Сплошными линиями на рис.3 показана аппроксимация экспериментальных данных с помощью численного решения уравнения (2). Начальные участки зависимости фотопроводимости от времени достаточно хорошо описываются расчетными кривыми, тогда как ее дальнейший рост становится медленнее, чем расчетный. На рис.5 приведена производная экспериментальной зависимости фо-

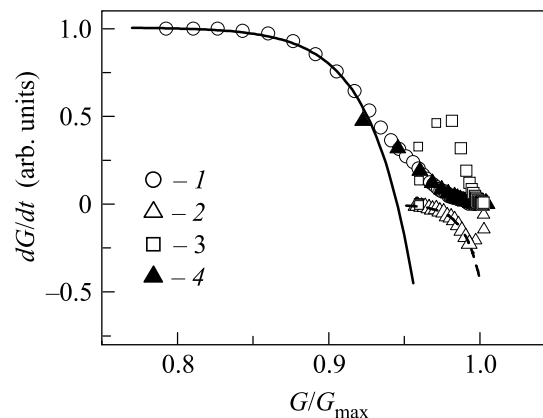


Рис.5. Производная экспериментальной кривой кинетики фотопроводимости в зависимости от величины фотопроводимости: 1 – первоначальное включение света, 2 – выключение света, 3 – второе включение света, 4 – второе включение света (кривая растянута в сторону меньших величин барьеров). Сплошной и штриховой линиями показаны расчетные зависимости, описываемые уравнением (2) и (3), соответственно

топроводимости от времени как функция проводимости. Видно, что экспоненциальный характер изменения проводимости, описываемый уравнением (2)

(сплошная линия), действительно нарушается, когда проводимость достигает значения  $G \approx 0.93G_{max}$ . Наблюдаемое отличие экспериментальных данных от расчетных обусловлено, по нашему мнению, выравниванием высот потенциальных барьеров, создаваемых заряженными КТ, в процессе захвата дырок в точки при освещении. Исходная неоднородность размеров нанокластеров, а значит, и числа дырок в них, приводит к разбросу высот барьеров вокруг германиевых островков, при этом эффективная высота барьера  $V$ , характеризующая захват дырок в соответствие с уравнением (1), будет равна минимальному значению из всех существующих. Дырки при освещении захватываются в точки с наименьшим положительным зарядом, что приводит к выравниванию их числа по всему массиву КТ. В результате эффективная высота барьера становится выше, чем для равновесного случая при равном среднем заполнении точек дырками. Увеличение высоты потенциального барьера будет способствовать замедлению роста проводимости со временем, что и наблюдается в эксперименте. После выключения света дырки продолжают захватываться в КТ, при этом высота барьера постоянно растет. В этом случае изменение проводимости подчиняется следующему уравнению:

$$\frac{dG}{dt} = B \exp(-\gamma G), \quad (3)$$

которое имеет аналитическое решение:  $G(t) = G_0 - C \ln(t_0 - t)$ , где  $G_0$ ,  $C$  и  $t_0$  – константы. Как видно на рис.2а (сплошная линия), экспериментальный спад проводимости хорошо описывается логарифмическим законом, а соответствующая зависимость  $dG/dt$  от  $G$  действительно аппроксимируется экспонентой, изображенной штриховой линией на рис.5. Поскольку состояние, к которому приходит система в результате релаксации после выключения света, формируется при низких температурах, когда захват дырок в точки сильно затруднен, оно существенно отличается по величине проводимости от исходного равновесного состояния. Кроме разницы в абсолютном числе дырок в точках, состояние с ОФП характеризуется более однородным распределением дырок. Поэтому для равных значений проводимости при первом и втором включении света (точки  $A$  и  $B$  на рис.2а) эффективная высота барьера во втором случае будет меньше. Если это так, мы должны получить совпадение производных от проводимости для первого и второго включений света путем растяжения второй кривой в сторону величин, соответствующих меньшим барьерам. Мы видим, что после такого преобразования (темные треугольники на рис.5) кривые действительно совпадают. Если предлагае-

мая нами модель верна, то увеличение температуры измерения должно приводить к повышению эффективности захвата дырок, а следовательно, к подавлению эффекта остаточной фотопроводимости. Мы видим, что уже при температуре  $\sim 13$  К величина ОФП отличается не более чем на 15% от исходного равновесного значения проводимости.

Таким образом, в гетероструктурах Ge/Si с двумерным слоем КТ удалось обнаружить долговременную неэкспоненциальную кинетику фотопроводимости и эффект остаточной фотопроводимости. Два основных предположения легли в основу модели, описывающей экспериментальные результаты: зависимость сечения захвата дырок в КТ от степени их заполнения и выравнивание числа дырок в ансамбле КТ при возбуждении и релаксации фотопроводимости. Изменение знака фотопроводимости в зависимости от исходного числа дырок в ансамбле КТ объяснено осциллирующим характером прыжковой проводимости.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 01-02-17329), Государственной программы “Поверхностные атомные структуры” (грант # 40.012.1.1.1153) и Лаврентьевского фонда молодежных проектов (грант # 27).

1. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, А. И. Никифоров, and А. А. Блошкин, Письма в ЖЭТФ **77**, 445 (2003).
2. M. Ben-Chorin, Z. Ovadyahu, and M. Pollak, Phys. Rev. **B48**, 15025 (1993).
3. A. Vaknin, Z. Ovadyahu, and M. Pollak, Phys. Rev. Lett. **81**, 669 (1998).
4. М. К. Шейнкман, А. Я. Шик, ФТП **10**, 209 (1976).
5. M. Pollak, Phil. Mag. **50**, 265 (1984).
6. A. Vaknin, Z. Ovadyahu, and M. Pollak, Phys. Stat. Sol. (b) **205**, 395 (1998).
7. Z. Ovadyahu and M. Pollak, Phys. Rev. Lett. **79**, 459 (1997).
8. C. C. Yu, Phys. Rev. Lett. **82**, 4074 (1999).
9. T. N. Theis and P. M. Mooney, Matter. Res. Soc. Symp. Proc. **163**, 729 (1990).
10. H. J. Queisser, Phys. Rev. Lett. **54**, 234 (1985).
11. A. V. Dvurechenskii, A. V. Nenashev, and A. I. Yakimov, Nanotechnology **13**, 75 (2002).
12. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, A. I. Nikiforov, and O. P. Pchelyakov, Thin Solid Films **336**, 332 (1998).
13. J. Z. Li, J. Y. Lin, H. X. Jiang et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 1899 (1999).
14. J. C. Fan, J. C. Wang, and Y. F. Chen, Appl. Phys. Lett. **75**, 2978 (1999).
15. Hirota Oshima, Masao Nakamura, and Kenjiro Myano, Phys. Rev. **B63**, 075111 (2001).