

СПЕКТР ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК ГЕРМАНИЯ

А.Б.Талочкин¹⁾, В.А.Марков, А.И.Никифоров, С.А.Тийс

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 1 июля 1999 г.

В спектрах комбинационного рассеяния света на оптических фононах квантовых точек германия обнаружены дополнительные линии, смещенные в обе стороны относительно частоты объемного фонона Ge. Показано, что наблюдаемые фононные моды связаны с деформацией квантовых точек, возникающей из-за рассогласования постоянных решетки матриц Ge и Si. Обнаруженные сдвиги частот с учетом эффектов локализации оптических фононов позволили определить размер областей квантовых точек, различающихся деформационным состоянием.

PACS: 72.15.Rn

Получение полупроводниковых квантовых точек (КТ) с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) основано на использовании самосогласованного роста по механизму Странского – Крастанова [1, 2]. Он возникает, когда в результате механических напряжений, связанных с рассогласованием постоянных решетки материалов КТ и подложки, двумерная пленка распадается, а далее продолжается самосогласованный рост трехмерных островков. Эта система островков обычно закрывается материалом подложки. Квантовые точки, полученные в таком процессе, оказываются сильно напряженными. Деформация КТ InAs, выращенных в GaAs, достигает 7% [2], а для КТ Ge в Si составляет 4% [1]. Столь высокие значения деформации приводят к сильным сдвигам спектра электронных состояний КТ, а также к изменению других параметров [3]. Теоретические расчеты [3], проведенные для КТ InAs в GaAs, предсказывают неоднородное распределение деформации в КТ. В результате действия двух силовых составляющих – со стороны подложки и покрывающей КТ матрицы – величина деформации зависит от расстояния до основания КТ и на некоторой высоте обращается в нуль и меняет знак [3]. Эксперименты по исследованию деформационного состояния КТ нам не известны. В данной работе методом комбинационного рассеяния света (КРС) исследован спектр оптических фононов КТ Ge, полученных с помощью МЛЭ в матрице Si. В силу того, что в данной системе (Ge/Si) оптические фононы сильно локализованы, а их частота линейно зависит от деформации, это позволило по наблюдаемым частотным сдвигам восстановить деформационное состояние КТ Ge.

Исследованные образцы представляли собой Si/Ge/Si структуры с КТ Ge и были получены с помощью МЛЭ. Использовались подложки Si марки КЭФ-0.01 с ориентацией (001). Слой КТ выращивался на Si буфере толщиной 1000 Å при температуре подложки 150–200 °С. Относительно низкая температура роста Ge обеспечивает размер КТ в плоскости роста ~ 100 Å и идеально резкую границу раздела Ge/Si [4]. При эффективной толщине Ge $d < 4$ моноатомных слоев (ml) ($1 \text{ ml} = 1.3 \text{ Å}$) происходит двумерный рост. Далее, при $4 < d < 12 \text{ ml}$ Ge растет в виде островков

¹⁾ e-mail: tal@thermo.isp.nsc.ru

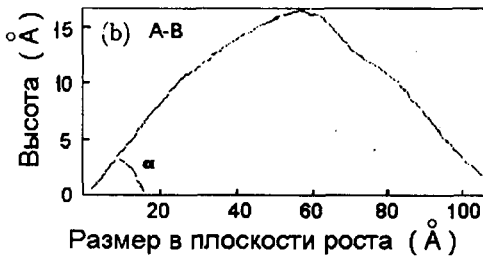
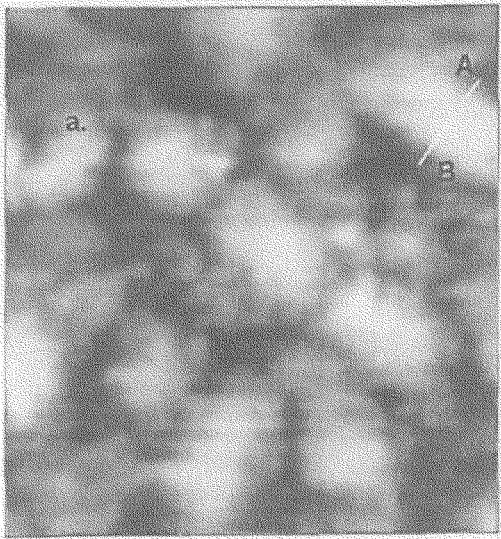


Рис.1. Изображение при помощи сканирующего туннельного микроскопа поверхности ($500 \times 500 \text{ \AA}$) образца с квантовыми точками Ge - а, b - поперечный профиль, полученный вдоль линии A - B

пирамидальной формы, изолированных друг от друга. При $d = 12 \text{ ml}$ КТ смыкаются основаниями в сплошной слой, а при $d = 15 \text{ ml}$ начинается релаксация механических напряжений, связанная с образованием на границе раздела дислокаций несоответствия. Подробно о получении этих структур смотри в [5, 6]. Размеры и форма КТ измерялись с помощью сканирующего туннельного микроскопа фирмы RIBER-OMICRON на образцах, которые специально не покрывались слоем Si. На рис.1а. показано изображение площади ($500 \times 500 \text{ \AA}$) образца с эффективной толщиной Ge 8 ml , полученное с помощью сканирующего туннельного микроскопа при туннельном токе 0.2 нА . В нижней части рис.1b приведен профиль, измеренный вдоль линии A - B. Видно, что характерная высота КТ Ge составляет 15 \AA , а размер основания пирамиды в плоскости роста $\sim 100 \text{ \AA}$. Угол между основанием и боковыми гранями составляет $\alpha = 17^\circ$.

Спектры КРС на оптических фонах возбуждались линиями Ar-лазера при температурах образца 300 и 77 К и регистрировались с помощью спектрометра ДФС-52. На рис.2 приведены спектры, измеренные в геометрии обратного рассеяния на образце с эффективной толщиной слоя Ge, равной 8 ml при $T = 300 \text{ К}$. Спектры получены в двух поляризационных геометриях: $z(x+y, x+y)z$ и $z(x, x)z$, где $z - (001)$, $x - (100)$

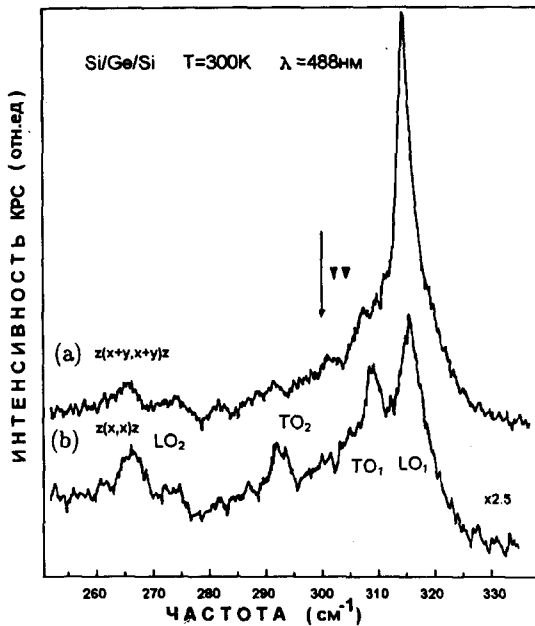


Рис.2. Спектры КРС на оптических фоновых КТ Ge, полученные при $T = 300$ К с $\lambda = 488$ нм в двух поляризационных геометриях. Стрелкой обозначено положение частоты объемного фона Ge, треугольниками – положения LO и TO фононов с учетом деформации области 2 КТ

и $y - (010)$. В соответствии с поляризационными правилами отбора для рассеяния на оптических фоновых Ge, которые определяются видом тензора КРС, при отражении от поверхности с ориентацией (001) в геометрии $z(x+y, x+y)z$ активны только LO фононы [7]. Рассеяние на TO фононах запрещено. Из рис.2а видно, что в разрешенной геометрии проявляется интенсивный пик LO фона КТ Ge. Его интенсивность испытывает усиление при возбуждении спектра вблизи E_0 резонанса КТ (2.4-2.6 эВ), который связан с прямыми оптическими переходами между Γ_2 и Γ_{25} состояниями КТ Ge, а его энергия определяется размером КТ [6]. Высокая интенсивность LO пика в разрешенной геометрии маскирует слабые линии остальных фононных мод, которые удается наблюдать в запрещенной геометрии $z(x, x)z$ (рис.2б). Из рис.2б видно, что в этой геометрии интенсивность LO фона падает в 5 раз и наблюдаются дополнительные линии с частотами 266, 292 и 309 см^{-1} . На рис.2 стрелкой показано положение объемного фона Ge. Два пика (LO_1 и TO_1) смещены относительно него в высокочастотную область, а другие два (LO_2 и TO_2) – в сторону низких частот.

Обнаруженная серия линий наблюдается в образцах, в которых КТ изолированы друг от друга ($4 \text{ нм} < d < 12 \text{ нм}$) или смыкаются в сплошной слой ($d = 12 \text{ нм}$) без изменения напряженного состояния Ge [4]. В образцах, в которых начинается релаксация механических напряжений ($d = 15 \text{ нм}$), основной фононный пик (LO_1) смещается в сторону объемного положения и уширяется, а остальные линии уже не проявляются в спектрах. В результате наблюдаемый спектр фононов может быть связан с распределением механических напряжений в КТ Ge.

Рассмотрим деформации КТ Ge и их влияние на спектр оптических фононов. Несоответствие постоянных решетки Ge и Si $\Delta a/a = 0.04$. В результате тонкая пленка Ge, полученная псевдоморфно к Si подложке (то есть с идеально резкой границей раздела без введения дефектов и взаимного перемешивания материалов) двусосно деформирована в плоскости роста (001). Компоненты тензора деформации составляют $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -0.04$. Из граничного условия для свободной поверхности пленки $\sigma_{zz} = 0$

(σ_{zz} – компонента тензора напряжений) можно найти $\epsilon_{zz} = -(2c_{12}/c_{11}) = 0.03$, где c_{12} и c_{11} – компоненты тензора упругости Ge. Двуосная деформация сжатия в плоскости (xy) приводит к растяжению Ge в направлении z . Такое напряженное состояние вызывает сдвиг и расщепление частот фононов LO и TO , которые в объемном Ge при $k = 0$ вырождены. Изменения частот фононов LO и TO под действием деформации определяются выражениями [8]

$$\Delta\omega^L = [p\epsilon_{zz} + q(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})]/2\omega_0^2, \quad (1)$$

$$\Delta\omega^T = [p\epsilon_{xx} + q(\epsilon_{zz} + \epsilon_{yy})]/2\omega_0^2, \quad (2)$$

где ω_0 – частота оптических фононов Ge при $k = 0$, p и q – компоненты тензора ангармонических постоянных Ge; $p = -0.73(2\omega_0^2)$, $q = -0.96(2\omega_0^2)$. Выражения (1) и (2) для деформации псевдоморфной пленки Ge приводят к частотным сдвигам $\Delta\omega_1^L = 16.5 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\omega_1^T = 11 \text{ см}^{-1}$. Наблюдаемые сдвиги линий LO_1 и TO_1 относительно объемной частоты Ge составляют 16 и 9 см^{-1} (рис.2б), соответственно. Эти значения вполне согласуются с расчетными с учетом того, что экспериментальное положение TO_1 линии несколько смещено в область низких частот из-за присутствия близкорасположенной линии (LO_1) большей интенсивности. В результате линии КРС LO_1 и TO_1 связаны с рассеянием на фононах, локализованных в области КТ вблизи Si подложки, деформация которой не отличается от состояния псевдоморфной пленки Ge. Остальные две – LO_2 и TO_2 , смещенные в область низких частот (рис.2б), связаны с фононами, локализованными вблизи вершин КТ.

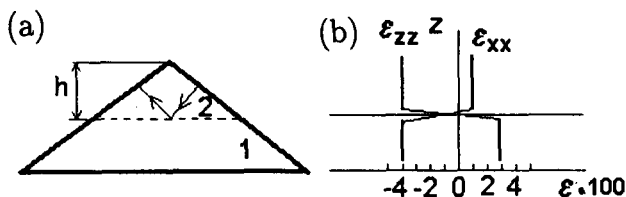


Рис.3. Схема поперечного сечения квантовой точки Ge, а, б – зависимости усредненных (в областях 1 и 2) компонент тензора деформации ϵ_{xx} и ϵ_{zz} от координаты z

На рис.3а приведена схема сечения КТ, которое разделено штриховой линией на две области – 1 и 2. В первой усредненное значение деформации, определяющее фононные частоты, аналогично псевдоморфной пленке Ge. В области 2 высотой h компоненты тензора деформации по сравнению с областью 1 меняют знак из-за того, что матрица Si, покрывающая Ge, сжимает КТ в направлении z . При увеличении расстояния от подложки эта силовая составляющая растет, а составляющая сжатия в плоскости роста со стороны подложки падает. В результате деформация обращается в нуль в плоскости, отмеченной на рис.3а штриховой линией, а далее в области 2 меняет знак. На рис.3б показаны зависимости усредненных значений (в областях 1 и 2) компонент тензора деформации ϵ_{xx} и ϵ_{zz} от координаты z . Приведенная схема поясняет результаты численного расчета, выполненного для КТ InAs в GaAs [3].

Считая, что в области 2 компоненты тензора деформации составляют $\epsilon_{zz} = -0.04$, $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -(c_{12}/[c_{11} + c_{12}])$, $\epsilon_{zz} = 0.011$, из выражений (1) и (2) можно найти частотные сдвиги фононов LO и TO : $\Delta\omega_2^T = 4.8 \text{ см}^{-1}$, $\Delta\omega_2^L = 2.5 \text{ см}^{-1}$. Положения линий КРС, соответствующие этим сдвигам, показаны на рис.2б треугольниками.

Различие частот оптических фононов областей 1 и 2, вызванное разницей механических напряжений в них, приводит к локализации фононов (то есть фононы упруго отражаются от границы раздела в результате того, что амплитуда оптических колебаний резко затухает в соседней области). Из рис.2b видно, что линии LO_2 и TO_2 фононов области 2 смещены на 37 и 13 см, соответственно, в сторону низких частот относительно положений, определяемых деформацией.

Наблюдаемое низкочастотное смещение линий LO_2 и TO_2 мы связываем с размерным квантованием фононного спектра в области 2 КТ. Две грани пирамиды и граница раздела областей 1 и 2, от которых упруго отражаются фононы, образуют резонатор (рис.3а). Минимальный волновой вектор q возбуждаемых в нем фононов, которые регистрируются в КРС, определяется условием существования стоячей волны $2h \cos \alpha = \pi/q$. Резонансная траектория фононов показана в области 2 стрелками (рис.3а), которые перпендикулярны боковым граням. Используя объемные дисперсионные зависимости фононов [9, 10], можно найти, что наблюдаемые частотные сдвиги как для LO_2 (37 см), так и для TO_2 (13 см) фононов соответствуют волновому вектору $q = 0.7/a$, где a – постоянная решетки Ge. Отсюда, высота области 2 составляет $h = 4 \text{ \AA}$. В результате сил сжатия, действующих на КТ Ge со стороны Si матрицы, КТ состоит из двух областей высотой 4 и 11 \AA , различающихся деформационным состоянием.

Отметим, что для КТ InAs смена знака деформации происходит на полувысоте пирамиды [3], а в нашем случае соотношение высот областей $\sim 1 : 3$. Это связано с различной формой КТ: угол при основании КТ InAs составляет 45° [3], а для КТ Ge $\alpha = 17^\circ$. В результате в нашем случае силовая составляющая сжатия со стороны подложки удерживает большую высоту Ge в псевдоморфном состоянии, а смена знака компонент тензора деформации происходит дальше от основания КТ по сравнению с КТ InAs.

Таким образом, исследованный фононный спектр КТ Ge объясняется тем, что КТ состоит из двух областей с различным деформационным состоянием. Одна область вблизи Si подложки деформирована аналогично псевдоморфной пленке, а во второй – компоненты тензора деформации меняют знак. Наблюдаемое низкочастотное смещение линий фононов LO и TO во второй области, обусловленное размерным квантованием фононов, позволило определить характерные размеры областей КТ, различающихся деформационным состоянием.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант #98-02-16984).

-
1. Mo, D.E. Savage, B.S.Swartzentruber, and M.G.Lagally, Phys. Rev. Lett. **65**, 1020 (1990).
 2. H.Drexler, D.Leonard, W.Hansen et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 2252 (1994).
 3. M.Grundman, O.Stier, and D.Bimberg, Phys. Rev. **B52**, 11969 (1995).
 4. А.В.Талочкин, А.В.Ефанов, В.А.Марков, А.И.Никифоров, Известия АН, сер.физ. **63**, 290 (1999).
 5. V.A.Markov, A.I.Nikiforov, and O.P.Pchelyakov, J. Cryst. Growth **157**, 260 (1997).
 6. А.В.Талочкин, В.А.Марков, С.П.Супрун, А.И.Никифоров, Письма в ЖЭТФ **64**, 203 (1996).
 7. М.Кардона, Г.Гюнтеродт, *Рассеяние света в твердых телах*, ч.2, М.: Мир, 1984 (*Light Scattering in Solids 11*, Eds. M.Cardona, G.Gunterodt, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1982).
 8. F.Cerdeira, C.J.Buchenauer, F.H.Pollak, and M.Cardona, Phys. Rev. **B5**, 580 (1972).
 9. E.Friess, K.Eberl, U.Menczigar, and G.Abstreiter, Solid. St. Commun. **73**, 203 (1990).
 10. Weber, Phys. Rev. **B15**, 4789 (1977).