

Молекулярная эпитаксия и электронные свойства гетеросистем Ge/Si с квантовыми точками

А.В. Двуреченский, А.И. Никифоров, О.П. Пчеляков, С.А. Тийс,
А.И. Якимов

*Институт физики полупроводников СО РАН
пр. Лаврентьева, 13, г. Новосибирск, 630090, Россия
E-mail: pch@isp.nsc.ru*

Статья поступила в редакцию 25 мая 2004 г.

Изложены результаты исследования процессов получения и определения электрических и оптических характеристик массивов nanoостровков Ge в Si (искусственных «атомов») с дискретным энергетическим спектром, который проявляется вплоть до комнатной температуры. Проведен краткий анализ современного состояния представлений о механизмах начальной стадии самоформирования и упорядочения ансамблей нанокластеров при гетероэпитаксии Ge на Si. Основными факторами, определяющими спектр состояний, служат размерное квантование и кулоновское взаимодействие носителей. Показано, что новым фактором, возникающим в массиве квантовых точек (КТ) и отличающим его от ситуации одиночной КТ, являются кулоновские корреляции между островками. Определены скорости испускания, сечения захвата дырок в зависимости от глубины залегания энергетических уровней. Величины сечений на несколько порядков превышают известные значения в Si. Электронный транспорт вдоль слоев КТ осуществляется с помощью прыжковой проводимости, величина которой осциллирует при изменении степени заполнения островков дырками, что может лечь в основу создания электронных цепей передачи информации на КТ. Показана возможность создания перестраиваемого под ближний и средний ИК диапазон фотодетектора с Ge квантовыми точками.

Викладено результати дослідження процесів одержання та визначення електричних і оптичних характеристик масивів nanoострівців Ge у Si (штучних «атомів») з дискретним енергетичним спектром, що виявляється аж до кімнатної температури. Проведено короткий аналіз сучасного стану представлень про механізми початкової стадії самоформування й упорядкування ансамблів нанокластерів при гетероепітаксії Ge на Si. Основними факторами, що визначають спектр станів, служать розмірне квантування і кулонівська взаємодія носіїв. Показано, що новим фактором, що виникає в масиві квантових точок (КТ) і відрізняє його від ситуації одиночної КТ, є кулонівські кореляції між острівцями. Визначено швидкості випускнення, перетину захоплення дірок у залежності від глибини залягання енергетичних рівнів. Величини перетинів на кілька порядків перевищують відомі значення в Si. Електронний транспорт уздовж шарів КТ здійснюється за допомогою прыжкової провідності, величина якої осцилює при зміні ступеня заповнення острівців дірками, що може лягти в основу створення електронних ланцюгів передачі інформації на КТ. Показано можливість створення фотодетектора з Ge квантовими точками, що перебудовується під ближній і середній ІЧ діапазон.

PACS: 61.14.-x, 61.30.Hn, 61.46.+w, 73.22.f, 73.23.Hk, 73.63.Kv

Введение

В последнее время активно ведутся исследования электронных свойств полупроводниковых квантовых точек (КТ), представляющих предельный случай систем с пониженной размерностью: нульмер-

ные системы, состоящие из массива наноразмерных атомных кластеров в полупроводниковой матрице [1,2]. Дискретный спектр энергетических состояний в таких кластерах позволяет отнести их к искусственным аналогам атомов, несмотря на то что класте-

ры содержат большое количество частиц. Изменяя размеры квантовых точек, их форму и состав с помощью контролируемых технологических приемов, можно получать аналоги практически всех природных элементов.

Наноразмерный масштаб атомных кластеров сильно ограничивает возможности применения традиционных способов приготовления структур, связанных с литографическими процессами, и требует развития новых подходов. 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 Странского—Крастанова оказалась весьма плодотворной. 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 [3]. В дальнейшем этот метод создания искусственных «атомов» получил название «самоорганизации», поскольку необходимо было объяснить результаты по формированию достаточно однородного по размеру массива нанокластеров.

Интерес к нанокластерам Ge в Si связан с рядом обстоятельств: 1) успехи в разработке технологии получения достаточно однородного по размеру массива нанокластеров Ge, что важно, если рассматривать их как искусственные атомы для легирования полупроводников; 2) размеры нанокластеров удалось уменьшить до значений, обеспечивающих проявление эффектов размерного квантования и электрон-электронного взаимодействия вплоть до комнатной температуры; 3) совместимость разработанных методов с существующей кремниевой технологией изготовления дискретных приборов и схем.

Исследования электронных свойств структур Ge/Si проведены с помощью электронной туннельной спектроскопии, емкостной спектроскопии, спектроскопии проводимости, изучения прыжковой проводимости и эффекта поля. Система Ge/Si относится к гетероструктурам второго типа, в которой островки Ge являются потенциальными ямами для дырок. Этим обстоятельством обусловлен выбор типа проводимости исследуемых систем.

1. Рост и особенности упорядочения ансамблей Ge нанокластеров

В гетеросистемах Ge-Si экспериментально наблюдают несколько стадий эволюции островков в процессе увеличения эффективной толщины пленки. Эти стадии различны для подложек с ориентацией поверхности (001) и (111). С точки зрения

создания квантовых объектов, поверхность (001) является уникальной, потому что только на ней были обнаружены компактные трехмерные бездислокационные островки размером 10–100 нм (рис. 1) [11]. Появление таких островков наблюдается после образования сплошной пленки Ge, сверхструктурные домены которой хорошо различаются между островками.

Процесс упорядочения вызывает появление в системе островков предпочтительных значений их характеристик: размеров, формы, расстояний между островками и их взаимного расположения. Это результат минимизации суммарной свободной энергии системы. Наличие избранных характеристик должно проявляться в спектрах рассеяния и дифракции электронов и рентгеновских лучей при взаимодействии с поверхностью, содержащей наноструктуры, а также в электронных и оптических спектрах. Распределению островков Ge по размерам в литературе уделяется большое внимание, так как этот параметр системы квантовых точек чрезвычайно важен для практических применений. По данным [4], более узкие распределения наблюдаются для островков типа «dome» со средними размерами 50–100 нм. Более узкие распределения для «dome»-кластеров объясняются тем, что рост упругой деформации в подложке и в основании кластера с увеличением размера последнего уменьшает скорость его роста (в противоположность развитию кластеров по механизму оствальдовского созревания). Для «hut»-кластеров, получаемых методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), обнаружена аналогичная закономерность: скорость роста «hut»-кластера Ge уменьшалась с ростом его размера (подробно этот эффект исследован в работе [5]). С появлением квантовых наноструктур (особенно структур с квантовыми точками) традиционные и хорошо технологически разработанные, однако не прямозонные, полупроводники Si и Ge получили перспективу перейти в класс оптических материалов. Этим можно объяснить устойчивый рост интереса к квантовым структурам на

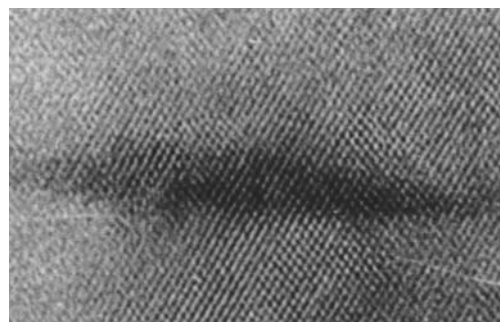


Рис. 1. Изображение ТЕМ прямого разрешения «hut»-кластера Ge в матрице Si.

их основе. Физические эффекты, наблюдаемые в таких структурах в последние годы, становятся основой создания новой элементной базы для СВЧ-электроники гигагерцевого и терагерцевого диапазонов, оптоэлектронных устройств и квантовой вычислительной техники. В связи с этим приобретает особую актуальность поиск путей получения наноструктур с ультрамалыми (< 5 нм) квантовыми точками Ge в Si.

Проявление эффекта упорядочения в массивах островков нанометровых размеров в гетеросистемах Ge-Si позволило получать бездефектные квантовые точки относительно малых размеров (10–100 нм) с плотностью 10^{10} – 10^{11} см $^{-2}$ и привело к более четкому проявлению атомоподобных характеристик в электронных и оптических спектрах этих объектов. Именно в этой системе для выявления одноэлектронных эффектов впервые были использованы массивы нанокластеров [3]. Для прогресса в применении структур с нанокластерами германия в кремнии очень важен поиск путей снижения их размеров, увеличения плотности распределения по поверхности и степени упорядочения.

Анализ современного состояния представлений о механизмах начальной стадии самоформирования и упорядочения ансамблей нанокластеров при гетероэпитаксии Ge на Si проведен в большом количестве обзорных работ (см., например, [6–8]). На примере гетеросистемы германий на кремнии подробно изучен переход от послойного роста пленки к образованию трехмерных (3D) островков. Показано, что при относительно низких температурах синтеза ($< 500^\circ\text{C}$) процессом взаимной диффузии материалов островков и подложки можно пренебречь [4,9]. Такие островки не содержат дислокаций несоответствия даже после существенного превышения ими критических толщин, что впервые было показано в работе [6]. Кроме различия внутренних и поверхностных энергий, параметров решеток и упругих деформаций в эпитаксиальных пленках и трехмерных островках Ge на Si, ключевыми факторами, влияющими на особенности протекания начальной стадии гетероэпитаксии, являются энергия границы раздела пленка – подложка, а также определяющие ее величину структура и состав поверхности подложки кремния.

Эти факторы обуславливают не только морфологическую устойчивость сплошного псевдоморфного (смачивающего) слоя Ge, на поверхности которого на более поздних стадиях роста самоформируется островковая пленка (механизм Странского – Крастанова). Они влияют на форму, размер и пространственное распределение нанокластеров германия в первых атомных слоях, коалесценция которых приводит к образованию смачивающего слоя.

Несмотря на очень большое количество экспериментальных исследований и подробные аналитические обзоры, до недавнего времени [10] не было указаний на возможность получения системы упорядоченных нанокластеров в процессе формирования псевдоморфного смачивающего слоя. В случае гомоэпитаксии, когда механические напряжения в пленке минимальны, на достаточно чистой поверхности практически для всех полупроводников объемные островки не образуются, а рост пленок идет либо за счет движения ступеней (ступенчато-слоевой рост), либо путем формирования и срастания двумерных островков или нанокластеров. На самых начальных стадиях гетероэпитаксии в развитии двумерных островков механические напряжения так же, как и при гомоэпитаксии, не играют существенной роли. Более важным фактором становится состояние поверхности подложки. Это и приводит к сходству морфологических особенностей роста первых монослоев на атомарно-чистых поверхностях при гомо- и гетероэпитаксии. В этой связи можно сделать вывод, что процесс самоформирования нанокластеров предельно малых размеров можно наблюдать на начальной стадии роста псевдоморфного смачивающего слоя германия по двумерно-островковому механизму. Их формой и распределением можно управлять, меняя структурное состояние поверхностного слоя кремния.

Экспериментальные подтверждения этому выводу получены в работах [10–12], где было продемонстрировано влияние сверхструктурной перестройки поверхности Si (111)7×7 на формирование нанокластеров Ge, имеющих размеры менее 5 нм (рис. 2). Установлено, что образование зародышей германия происходит преимущественно внутри половины эле-

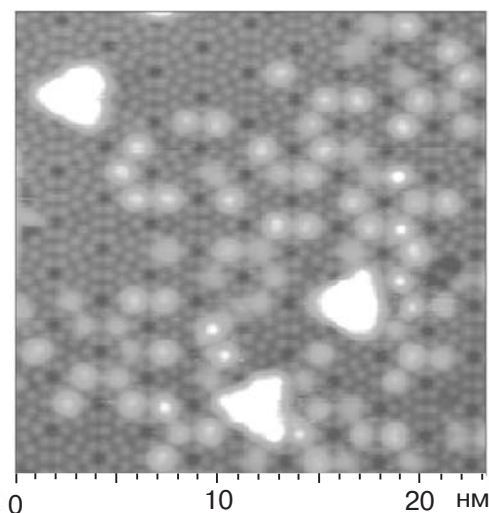


Рис. 2. СТМ изображение нанокластеров Ge на поверхности Si (111)7×7.

ментарной ячейки 7×7 , находящейся в позиции дефекта упаковки. Такие кластеры обладают значительной температурной устойчивостью. Даже после отжига при 350°C в течение 2 часов на поверхности кремния между островками германия относительно больших размеров остаются фрагменты нанокластеров. Для управления характером упорядочения системы нанокластеров представляется возможным использование примесных сверхструктур, имеющих различные размеры и структуру элементарных ячеек. Такие сверхструктуры на поверхности кремния образуют, в частности, примеси металлов. Эти предпосылки не имеют в настоящий момент удовлетворительного экспериментального подтверждения и стимулируют проведение дальнейших детальных исследований механизмов упорядочения ансамблей полупроводниковых нанокластеров путем модификации поверхностных сверхструктур.

Минимальные размеры островков германия, самоформирующихся при росте на чистой поверхности кремния после образования смачивающего слоя, составляют 15 нм. Для их уменьшения и увеличения плотности можно проводить рост германия на атомарно чистой окисленной поверхности, которая подготавливается непосредственно в установке МЛЭ. Возможность создания окисного слоя на поверхности кремния в условиях сверхвысокого вакуума известна достаточно давно. Впервые в работе [13] было продемонстрировано, что в зависимости от давления кислорода и температуры можно подобрать режимы травления и роста окисной пленки. Рост островков германия на предварительно окисленной поверхности кремния позволяет существенно уменьшить размеры и увеличить плотность островков. В работах [14,15] показано, что в случае роста островков на окисленной поверхности Si(111) их латеральные размеры не превышают 10 нм, а плотность выше 10^{12} см^{-2} . Авторы работы [14] предположили, что при этом происходит локальное травление окиси кремния германием (реакция диспропорционирования), сопровождающееся десорбцией монооксида германия. В этих местах зарождаются наноструктуры германия, когерентно сопряженные с кремнием. Однако данных о деформации островков и ее релаксации в гетеросистеме германий—окись кремния практически нет.

В нашей работе окисление осуществлялось в установке МЛЭ при напуске кислорода до 10^{-4} Па и температуре подложки $400\text{--}500^\circ\text{C}$ [16]. После откачки кислорода проводили напыление германия. Процесс роста пленки Ge контролировали по картине дифракции быстрых электронов (ДБЭ) путем регистрации как качественных изменений структуры и морфологии растущей поверхности пленки, так и

количественной информации об упругой деформации элементарной поверхностной ячейки. Для анализа начальной стадии роста пленки германия на окисленной поверхности кремния проводилась регистрация изменения интенсивности зеркального рефлекса и рефлекса трехмерной дифракции (3D-рефлекс). Эти величины очень чувствительны к изменению шероховатости поверхности, а возникновение 3D-рефлекса указывает на наличие трехмерных объектов на исследуемой поверхности.

Наличие осцилляций интенсивности зеркального рефлекса в случае роста на чистой поверхности, его погасание и появление 3D-рефлекса при толщинах пленки германия более четырех монослоев указывает на послойный рост смачивающего слоя с последующим образованием трехмерных островков. В случае же роста пленки Ge на окисленной поверхности интенсивность этих рефлексов изменяется уже после напыления одного монослоя и осцилляций интенсивности зеркального рефлекса не наблюдается. Это свидетельствует об отсутствии такой стадии роста, как образование смачивающего слоя.

Во время напыления первого монослоя на поверхности SiO_2 образуется адсорбционный слой германия, который со второго монослоя трансформируется в трехмерные островки. Таким образом, в отличие от механизма роста Странского—Крастанова, который реализуется на чистой поверхности кремния, на поверхности окисленного кремния рост пленки германия протекает по механизму Фольмера—Вебера. Для анализа деформаций решетки германия измеряли изменение параметра элементарной поверхностной двумерной ячейки $a_{||}$. Для этого регистрировали изменение расстояния между рефлексами дифракционной картины, которое соответствует параметру $a_{||}$. Рост сопровождается существенным изменением поверхностной ячейки решетки Ge относительно этого параметра для Si, остающегося постоянным. Это изменение достигает 7%, как это наблюдалось и в случае роста на чистой поверхности Si(100) [16]. Вначале происходит рост упруго напряженных островков, затем значение $a_{||}$ уменьшается до величины объемного германия, что свидетельствует о полной пластической релаксации островков. Характер изменения параметра $a_{||}$ аналогичен тому, что наблюдается в процессе гетероэпитаксии германия на чистой поверхности Si(100), но область существования напряженных островков Ge значительно меньше и появившиеся трехмерные островки уже после напыления одного монослоя германия имеют максимальное значение параметра двумерной поверхностной ячейки. В зависимости от толщины напыленного германия островки имеют различные размеры и плотность. При толщине плен-

ки до пяти монослоев размеры островков в основании менее 10 нм с плотностью более $2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$. На рис. 3 показано СТМ (сканирующая туннельная микроскопия) изображение массива островков Ge на поверхности окиси кремния, полученного после напыления трех монослоев германия при температуре подложки 650 °С. Увеличение эффективной толщины осажденного германия приводит к образованию наряду с островками малого размера островков с размерами на порядок больше и существенно меньшей плотностью. Такое бимодальное распределение островков по их размерам и плотности наблюдается на окисленной поверхности Si(100) при толщине пленки германия более 1 нм, что подтверждается также и электронно-микроскопическими исследованиями.

2. Электрические свойства

2.1. Электронная туннельная спектроскопия

Исследуемая структура представляла собой два параллельных электрода (сильно легированные бором слои $\text{Ge}_{0,3}\text{Si}_{0,7}$), между которыми через туннельные барьеры (прослойки Si) был заключен слой нанокристаллов Ge [17]. Длина основания КТ составляла 15 нм, высота 1,5 нм. Плотность островков в массиве $3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$. При совпадении уровня

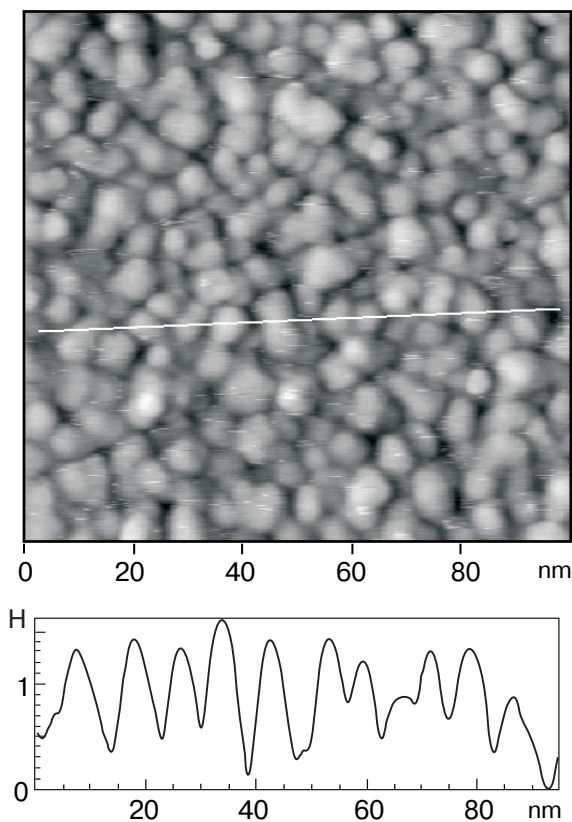


Рис. 3. СТМ изображение островков Ge на SiO_2 : $T_s = 650^\circ\text{C}$, $d_{\text{Ge}} = 3 \text{ ML}$, $N = 2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$.

Ферми в эмиттере с разрешенным уровнем носителя в КТ должно наблюдаться резонансное увеличение туннельного тока. Изменяя энергию инжектированного носителя путем изменения напряжения, можно получить информацию об энергетическом спектре КТ. Впервые этот метод спектроскопии по отношению к массивам самоорганизующихся КТ был применен в работе [3]. На зависимости дифференциальной проводимости от напряжения наблюдаются отчетливые осцилляции туннельной проводимости структур, свидетельствующие о существовании хорошо разрешенного дискретного спектра в островках Ge. Причем осцилляции вблизи нулевого смещения сопровождаются появлением области отрицательной дифференциальной проводимости, являющейся характерной чертой резонансного туннелирования. В случае симметричной конфигурации барьеров осцилляции проводимости почти симметричны относительно нуля и имеют характерный период $\sim 150 \text{ мВ}$, что позволяет оценить расстояние между уровнями размерного квантования в островках как $\sim 150/2 = 75 \text{ мВ}$. В асимметричной структуре в области отрицательного смещения происходит расщепление пиков проводимости на серию осцилляций с меньшим периодом. При такой полярности напряжения ввиду сильной разницы коэффициентов прохождения левого и правого барьеров происходит накопление дырок в островках, и существенными становятся процессы кулоновских корреляций носителей, обусловленные их взаимодействием. Кулоновское взаимодействие «снимает» вырождение одночастичных уровней размерного квантования, поскольку дырке требуется преодолевать энергию электростатического отталкивания носителей, уже находящихся в КТ. Подобный эффект, наблюдавшийся ранее в туннельных переходах через металлические гранулы в виде ступенчатых вольт-амперных характеристик, получил название «кулоновской лестницы» [18]. По расстоянию между пиками проводимости можно оценить корреляционную энергию дырок в островках: $E_C \approx 36 \text{ мэВ}$ в основном и $\approx 18 \text{ мэВ}$ в первом возбужденном состояниях.

2.2. Емкостная туннельная спектроскопия

В основе емкостной спектроскопии КТ лежит тот факт, что заряд в нульмерных системах может меняться только дискретным образом на величину $\delta Q = eN$, где e — заряд электрона, N — число точек в образце [19]. Структуры представляли следующую последовательность слоев, начиная от подложки: 1) p^+ -подложка кремния с ориентацией (100), служащая нижним электрическим контактом; 2) слой $\text{Si}_{0,8}\text{Ge}_{0,2}$ толщиной $L = 10 \text{ нм}$, обеспечивающий резкую гетерограницу последующего туннель-

ного барьера Si; 3) туннельно прозрачный барьер Si, $p = 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$, $L = 7 \text{ нм}$; 4) слой нанокристаллов Ge; 5) блокирующий слой Si, $p = 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$, $L = 50 \text{ нм}$; 6) управляющий заполнением островков электрод Al, формирующий на границе с кремнием барьер Шоттки; площадь алюминиевой площадки составляла $\approx 8 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2$, по размеру которой вытравливалась цилиндрическая мезоструктура на глубину порядка 5 мкм. В исследованных структурах с барьером Шоттки изменяли толщину выращиваемого слоя Ge, которую измеряли в монослоях (ML), что в условиях формирования островков соответствует эффективной толщине слоя d_{eff} [20].

Внешнее напряжение V_g на управляющем электроде, смещая потенциал в островках относительно уровня Ферми в контакте, отделенном от островкового слоя туннельно прозрачным барьером, стимулирует либо захват носителей из контакта на уровне КТ, либо опустошение этих уровней в зависимости от полярности V_g . При совпадении уровня Ферми в контакте с энергией связанного состояния в КТ дифференциальная емкость $C(V_g) = dQ/dV_g$ должна иметь пик, свидетельствующий о наличии дискретного уровня энергии. Полная емкость структуры представляет собой сумму двух вкладов: первый обусловлен наличием области пространственного заряда в окружающем островки материале (в данном случае это кремний), второй вклад (C_{QD}) связан с зарядкой квантовых точек. Поскольку величина C_{QD} пропорциональна плотности состояний в КТ: $C_{QD} = e(d\mu/dV_g)(dN/d\mu)$, где μ — химический потенциал, то вольт-фарадная характеристика позволяет восстановить величину $dN/d\mu$. Вольт-фарадные характеристики структур без слоя Ge имели обычный вид для обедненного слоя Si p -типа (рис. 4). В случае $d_{\text{eff}} = 2 \text{ ML}$ на характеристиках

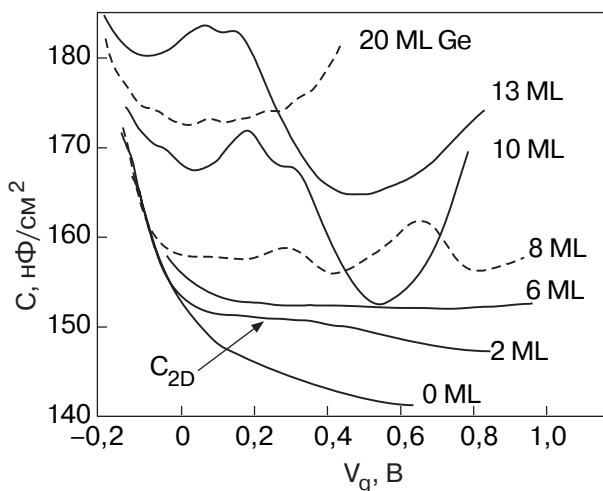


Рис. 4. Вольт-фарадные характеристики структур с различной толщиной слоя Ge.

появляется плато, характерное для двумерного (2D) газа носителей. В области эффективных толщин $Ge \ 8 \text{ ML} \leq d_{\text{eff}} \leq 13 \text{ ML}$ на C - V -кривых появляются пики, расстояние между которыми, их ширина и положение на шкале напряжения (энергетической шкале) зависят от d_{eff} : с ростом d_{eff} пики становятся уже и уменьшается энергетический зазор между ними. Энергетическое расстояние между уровнями, соответствующими двум пикам емкости, находится из соотношения $\Delta E = \Delta V_g b/L$ [21], где ΔV_g — расстояние между пиками на C - V -характеристике, b — расстояние между КТ и нижним электродом, L — расстояние между верхним и нижним электродами. Расчеты дают $\Delta E = 87 \text{ мэВ}$ (для 8 ML), 36 мэВ (10 ML) и 32 мэВ (13 ML) [20]. Величина $\Delta E = 36 \text{ мэВ}$ для образца с количеством Ge 10 ML согласуется с энергией зарядки КТ (E_C) в основном состоянии, найденной в экспериментах по резонансному туннелированию. Поэтому природа расщепления пиков была объяснена электростатическим кулоновским взаимодействием.

Появление осцилляций емкости мы связываем с формированием достаточно однородного по размерам массива нанокристаллов Ge, в котором плотность дырочных состояний является δ -образной функцией энергии. При большом количестве осажденного Ge (20 ML) происходит релаксация упругих напряжений и формируются крупные островки с дислокациями. Это проявляется в исчезновении пиков емкости на вольт-фарадных характеристиках. С появлением прорастающих дислокаций и пробоем области пространственного заряда, по-видимому, связано и сильное возрастание емкости, сопровождаемое резким увеличением активной части проводимости при толщинах более 20 ML. Площадь под каждым пиком на C - V -характеристике, деленная на заряд электрона, оказалась с хорошей точностью равной поверхностной концентрации островков Ge ($2n_{QD} \approx 6 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$). Это означает, что во-первых, все островки Ge вовлечены в процесс перезарядки системы, и, во-вторых, вырождение по энергии снимается за счет кулоновского взаимодействия. Экспериментальное подтверждение кулоновской природы расщепления было найдено в измерениях вольт-фарадных характеристик с двумя слоями островков Ge одинакового размера [22]. В этом случае расщепление между пиками, обусловленное кулоновским взаимодействием, увеличивается.

2.3. Эффект поля

Осцилляции прыжковой проводимости в условиях эффекта поля были обнаружены в МДП-транзисторах с эффективной толщиной Ge более 6 ML и содержащих до 10^9 островков Ge [23]. Подложкой

служила высокоомная пластина Si *n*-типа. Изменение проводимости МДП-транзисторов, в которых проводящий канал включает слой нанокристаллов Ge, оказалось достаточно информативным для изучения эффектов электронных корреляций и размерного квантования [23]. Последовательное заполнение островков носителями осуществлялось приложением потенциала к затвору транзистора. При используемых плотностях островков Ge существенными становятся туннельные переходы между состояниями, локализованными в различных островках. Вероятность «перескоков» дырки между квантовыми точками определяется 1) перекрытием волновых функций заполненного и незанятого состояния и 2) степенью заполнения данной дырочной оболочки. Если соответствующий уровень заполнен точно наполовину, то проводимость должна быть максимальной, а энергия активации переходов должна определяться электростатической энергией взаимодействия данной дырки со всеми зарядами в нанокристаллах. При полном заполнении уровня носитель в процессе туннелирования вынужден переходить на возбужденные состояния следующей оболочки. При этом энергия активации возрастает на величину, равную энергии размерного квантования, а проводимость уменьшается. При дальнейшем заполнении возбужденного состояния энергия активации, требуемая для помещения носителя на данный уровень в других точках, уменьшается и снова начинает определяться электрон-электронным взаимодействием, что приводит к росту величины прыжковой проводимости и так далее.

Таким образом, величина прыжковой проводимости при фиксированной температуре, а также энергия активации проводимости должны осциллировать при изменении затворного напряжения, отражая тем самым структуру спектра состояний. Такие осцилляции присущи лишь нульмерным системам, в которых электронный спектр носит дискретный (атомоподобный) характер. В области низких температур ($T < K$) на зависимостях проводимости канала от затворного напряжения были обнаружены осцилляции, соответствующие заполнению основного и возбужденного состояний в КТ (рис. 5). Полученная степень вырождения состояний (2 для основного и 4 для возбужденного) согласуется с результатами, полученными методами туннельной, емкостной спектроскопии. Найденные при анализе периода осцилляций основные энергетические характеристики (корреляционная энергия в основном состоянии $E_C = 28$ мэВ, в возбужденном $E_C \approx 11$ мэВ, энергия размерного квантования ≈ 86 мэВ — все эти цифры приведены для $d_{\text{eff}} = 10$ ML) также согласуются с результатами, полученными другими методами. В

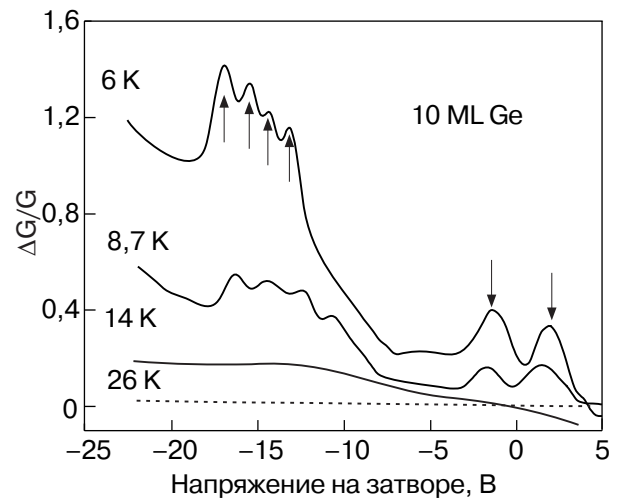


Рис. 5. Относительное изменение проводимости канала полевого транзистора, содержащего 10^9 квантовых точек, как функция напряжения на затворе при различных температурах.

МДП-транзисторе со слоем КТ, сформированном на структуре кремний-на-изоляторе (SIMOX), удается минимизировать токи утечки через нижележащие слои Si, в результате осцилляции проводимости наблюдаются вплоть до температур ~ 150 K. Температурная зависимости проводимости оказалась активационной, что отличает происходящие процессы от резонансного туннелирования и свидетельствует в пользу прыжкового механизма переноса заряда по КТ. В общем случае температурная зависимость прыжковой проводимости описывается выражением $G(T) = G_0 \exp[-(T_0/T)^x]$. Аппроксимация этой формулой экспериментальных данных для всех наблюдаемых пиков привело к значению $x \approx 1/2$, которое свидетельствует о том, что энергия активации прыжковой проводимости в массиве КТ определяется кулоновским взаимодействием между ними [24]. В этом случае $T_0 = 6,2e^2/\epsilon\ell$ [25], где ϵ — диэлектрическая проницаемость, ℓ — радиус локализации носителей в КТ. Из экспериментальных значений параметра T_0 был найден характерный размер волновых функций дырок в КТ $\ell \approx 15\text{--}20$ нм. Величина энергии активации $W = 0,5k(T_0T)^{1/2} \approx 11$ мэВ в области относительно высоких температур (~ 100 K), когда «прыжки» дырок происходят по ближайшим соседям, является мерой вклада взаимодействия между точками в полную корреляционную энергию E_C (21 мэВ). Оставшаяся часть (≈ 10 мэВ) связана со взаимодействием дырок внутри КТ.

2.4. Спектроскопия проводимости

Измерения комплексной проводимости кремниевых барьеров Шоттки с захороненным слоем КТ Ge позволили получить дополнительную информацию

о структуре энергетического спектра КТ и параметрах дырочных состояний [26]. Отклик от КТ в данном случае представляется как отклик от конденсатора с потерями [27] и характеризуется постоянной времени $\tau = R_{QD}C_{QD}$. При увеличении обратного смещения обедненная область проникает в глубь Si, приводя к опустошению дырочных уровней в КТ. Пусть смещение таково, что энергетический уровень в КТ совпадает с уровнем Ферми в нижнем контакте p^+ -Si. Тогда переменная составляющая приложенного к образцу напряжения (V_{ac}) должна стимулировать эмиссию дырок в валентную зону и захват их обратно на связанные в островках состояния, приводя к появлению проводимости на переменном токе. Если частота изменения напряжения ($\omega = 2\pi f$) достаточно велика ($\omega\tau \gg 1$), то заселенность уровней не успевает отслеживать изменение напряжения и КТ не вносят вклад в измеряемую емкость (C_{eff}) и проводимость (G_{eff}) структуры. В обратном случае ($\omega\tau \ll 1$) эффективная емкость содержит вклад дырок, аккумулярованных в слое островков, и не зависит от частоты. Поскольку этот вклад имеет чисто электростатический характер, низкочастотная проводимость на переменном токе мала. Очевидно, что, когда эффективная скорость эмиссии τ_i^{-1} с данного i -го уровня совпадает с частотой приложенного напряжения ($2\pi f\tau_i = 1$), проводимость должна иметь максимум. Это обстоятельство позволяет определить времена эмиссии, энергии активации и сечения захвата на соответствующие уровни в КТ [28]. На зависимости активной части проводимости, нормированной на частоту переменного сигнала, от напряжения смещения наблюдаются два пика при 0,1 и 0,6 В. Амплитуда этих пиков не зависит от частоты в диапазоне 10–100 кГц и, по-видимому, пики связаны с перезарядкой смачивающего слоя. В образце с КТ наблюдаются четыре дополнительных пика, наличие которых было приписано перезарядке четырехкратно вырожденного первого возбужденного состояния в нанокристаллах Ge [26]. Времена эмиссии при температуре 90 К оказались равными (мкс): $\tau_1 = 5,1 \pm 0,1$, $\tau_2 = 3,0 \pm 0,1$, $\tau_3 = 0,39 \pm 0,01$ и $\tau_4 = 0,29 \pm 0,01$. Температурные зависимости времен эмиссии позволили определить энергии активации (глубину залегания уровней, мэВ) $E_1 = 201 \pm 7$, $E_2 = 228 \pm 7$, $E_3 = 267 \pm 12$, $E_4 = 288 \pm 10$, а также сечения захвата (рис. 6). Расстояние между уровнями 29 ± 16 мэВ (энергия зарядки КТ) хорошо коррелирует с данными, полученными другими методами. Полученные сечения захвата носителей на квантовые точки увеличиваются с ростом глубины залегания уровней и на много порядков превышают известные величины для глубоких уровней в Si. Возможное объяснение заключается в том, что про-

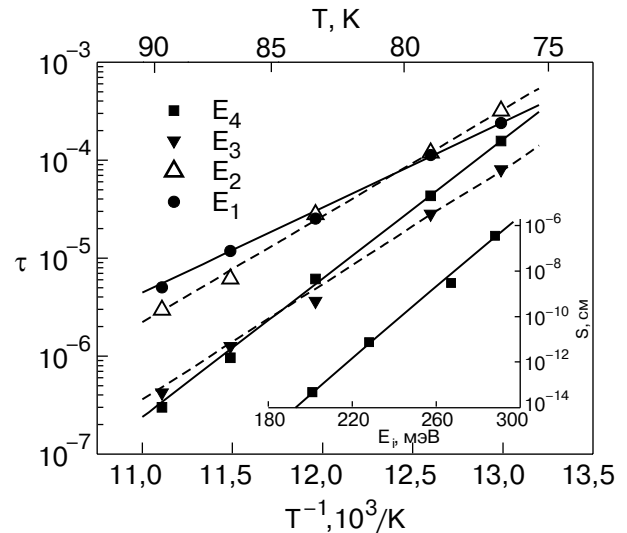


Рис. 6. Температурная зависимость времени эмиссии дырок с возбужденного состояния в квантовые точки. На вставке — зависимость сечения захвата на уровни в квантовых точках от энергии залегания уровней.

цесс захвата носителей вначале осуществляется на уровни с малой глубиной залегания тонкого сплошного слоя Ge, на котором находятся островки Ge (смачивающий слой) и который имеет размеры, сравнимые с размером структуры. Далее происходит последовательная их релаксация на глубокие уровни КТ с испусканием фононов.

3. Оптические свойства

Интерес к исследованию оптических свойств КТ обусловлен ярко выраженной практической направленностью и рядом преимуществ таких объектов по сравнению с двумерными квантовыми долинами. Особенностью КТ является, во-первых, возможность управления спектральной полосой фотоотклика путем предварительного заселения дискретных состояний с требуемой энергией переходов; во-вторых, наличие латерального квантования в нульмерных системах снимает запрет на оптические переходы, поляризованные в плоскости фотоприемника, а значит, предоставляет возможность осуществить поглощение света при нормальном падении фотонов; в-третьих, в КТ ожидается сильное увеличение времени жизни фотовозбужденных носителей вследствие так называемого эффекта «узкого фононного горла» (phonon bottleneck effect [28]).

3.1. ИК поглощение

Поглощение фотонов ИК спектрального диапазона в многослойных гетероструктурах Ge/Si с самоорганизующихся КТ изучено в работах [29,30]. Размеры островков в обоих случаях составляли ~ 40–50 нм в основании и 2–4 нм высотой. Плот-

ность островков $\sim 10^8 \text{ см}^{-2}$. Авторы [29] использовали подлегирование островков Ge бором с тем, чтобы заселить основное состояние КТ дырками. В спектрах поглощения в области длин волн 5–6 мкм наблюдалась широкая ($\sim 100 \text{ мэВ}$) линия, амплитуда которой сильно уменьшалась при переходе к поляризации света, перпендикулярной плоскости слоев, и была объяснена переходами между двумя низшими уровнями поперечного квантования тяжелых дырок в КТ. В работе [30] для активизации оптических переходов внутри нелегированной КТ использована дополнительная световая накачка. Фотоиндуцированное поглощение, поляризованное параллельно плоскости слоев, имело асимметричный максимум в районе 4,2 мкм и связывалось с переходом дырок из основного состояния КТ в распространённые состояния валентной зоны. Необычайно высоким оказалось определенное авторами [30] значение сечения поглощения ($2 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2$), что превышает по крайней мере на порядок известные сечения фотоионизации для локальных центров в Si [31] и на три порядка аналогичную величину для КТ InAs/GaAs [32]. Эти данные свидетельствуют о перспективности системы Ge/Si для ИК-детекторов.

3.2. Фотопроводимость

Впервые о регистрации фототока, генерированного фотонами с энергией, меньшей ширины запрещенной зоны кремния, в гетероструктурах Ge/Si с самоорганизующимися КТ сообщалось в работах [33,34]. Возможность реализации фотоприемника с КТ, перестраиваемого под ближний и средний ИК диапазоны, была продемонстрирована в работе [35]. Фотоприемник представлял собой кремниевый рpn-диод, в базу которого был введен двумерный массив нанокластеров Ge. Средний латеральный размер КТ составлял 15 нм, высота 1,5 нм. Спектры фототока при различном обратном смещении показаны на рис. 7. В образце со сплошной пленкой Ge (6 ML) фотоотклик отсутствует. В структуре с КТ при энергиях, меньших края собственного поглощения в кремнии ($\sim 1,12 \text{ эВ}$), наблюдаются два максимума на длинах волн 1,7 и 2,9 мкм. Интенсивность обоих максимумов сильно зависит от величины обратного смещения, причем эти зависимости коррелируют между собой. При увеличении смещения до величины 1,4 В происходит исчезновение отклика в среднем ИК диапазоне (при 2,9 мкм, линия T_1) и появляется сигнал в ближней ИК области спектра (при 1,7 мкм, линия T_2). Значение энергии в максимуме T_1 (430 мэВ) соответствует энергии залегания основного состояния дырки в КТ [36]. Поэтому процесс T_1 был идентифицирован как переход дырки из основного состояния, локализованного в Ge КТ, в

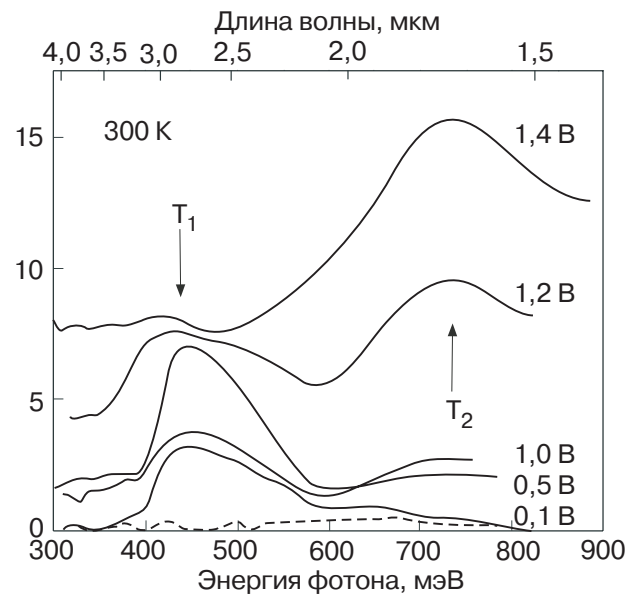


Рис. 7. Спектры фототока кремниевый рpn-диода с квантовыми точками Ge при различных обратных смещениях. Пунктирная линия демонстрирует отсутствие фототока в структуре со сплошным слоем Ge.

распространённые состояния валентной зоны. По мере увеличения обратного смещения дырочные уровни в КТ заполняются электронами. В области напряжений около 1,4 В происходит полная разрядка КТ дырками, и переход T_1 становится «запрещенным». Начиная с этого момента возникает возможность межзонных переходов электронов из валентной зоны в зону проводимости (процесс T_2). Поскольку исследуемая система относится к гетероструктурам второго рода — дырки локализуются в областях Ge, в то время как для электронов области Ge представляют собой потенциальный барьер [37], — такой оптический переход является непрямым в координатном пространстве и сопровождается перебросом электрона из Ge в Si. Энергия перехода должна определяться разницей между шириной запрещенной зоны Si (1,12 эВ) и энергией дырочного состояния в Ge КТ (0,43 эВ), т.е. равняться 700 мэВ, что согласуется с экспериментальным положением линии T_2 ($\approx 730 \text{ мэВ}$).

Заключение

Проведенные исследования процессов получения и измерения электрических и оптических характеристик массивов нанокластеров Ge в Si позволяют сделать вывод о формировании массивов искусственных «атомов», обладающих дискретным энергетическим спектром, который проявляется вплоть до комнатной температуры. Основными факторами, определяющими спектр состояний, служат размерное квантование и кулоновское взаимодействие но-

сителей. Новым фактором, возникающим в массиве КТ и отличающим его от ситуации одиночной КТ, является кулоновские корреляции между островками. Определены скорости испускания, сечения захвата дырок в зависимости от глубины залегания энергетических уровней. Величины сечений превышают на несколько порядков известные значения в Si. Электронный транспорт вдоль слоев КТ осуществляется с помощью прыжковой проводимости, величина которой осциллирует при изменении степени заполнения островков дырками, что может лечь в основу создания электронных цепей передачи информации на КТ. Показана возможность создания перестраиваемого под ближний и средний ИК диапазон фотодетектора с Ge квантовыми точками.

Выполненные исследования поддержаны Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 99-02-17019, 03-02-16506, 03-02-16468), грантом Минпромнауки НШ-533-2003-2, проект Минпромнауки №37.029.11.0041, Межотраслевой научно-технической программой «Физика твердотельных наноструктур» (грант 98-1100) и межвузовской научной программой «Университеты России — фундаментальные исследования» (грант 4103).

1. L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wojs, *Quantum Dots*. Berlin, Springer (1998), p. 196.
2. Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов, Д. Бимберг, *ФТП*. **32**, 385 (1998).
3. A.I. Yakimov, V.A. Markov, A.V. Dvurechenskii, and O.P. Pchelyakov, *Philos. Mag.* **B65**, 701 (1992).
4. T.I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D.A.A. Ohlberg, and R. S. Williams, *J. Appl. Phys.* **85**, 1159 (1999).
5. M. Kastner and B. Voigtlander, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2745 (1999).
6. D.J. Eaglesham, M. Cerullo, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1943 (1990).
7. О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, Б. Фойхтлендер, *Известия АН, сер. физ.* **64**, с. 205 (2000).
8. K. Brunner, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 27 (2002).
9. G. Capellini, M. De Seta, and F. Evangelistib, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3 (2001).
10. О.П. Pchelyakov, Yu.B. Bolkhovityanov, A.I. Nikiforov, B.Z. Olshanetsky, L.V. Sokolov, S.A. Teys, and B. Voigtlaender, *Atomistic Aspects of Epitaxial Growth*, M. Kortla et al. (eds.), Kluwer Academic Publishers (2002), p. 371.
11. О.П. Pchelyakov, Yu.B. Bolkhovityanov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, A.I. Yakimov, B. Voigtlaender, *Thin Solid Films* **367**, 75 (2000).
12. J. Li, J. Jia, X. Liang, X. Liu, J. Wang, Q. Xue, Z. Li, J. Tse, Z. Zhang, and S. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 066101-1 (2002).
13. J.J. Landerb and L. Morrison, *J. Appl. Phys.* **33**, 2098 (1962).
14. A.A. Shklyae, M. Shibata, and M. Ichikawa, *Phys. Rev.* **B62**, 1540 (2000).
15. A. Barski, M. Derivaz, J.L. Rouviere, and D. Buttard, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3541 (2000).
16. A.I. Nikiforov, V.A. Cherepanov, O.P. Pchelyakov, A.V. Dvurechenskii, and A.I. Yakimov, *Thin Solid Films* **380**, 158 (2000).
17. A.I. Yakimov, V.A. Markov, A.V. Dvurechenskii, and O.P. Pchelyakov, *J. Phys. Condens. Matter* **6**, 2573 (1994).
18. U. Meirav and E.B. Foxman, *Semicond. Sci. Technol.* **10**, 255 (1995).
19. R.C. Ashoori, H.L. Stormer, J.S. Weiner, L.N. Pfeiffer, S.J. Pearton, K.W. Baldwin, and K.W. West, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3088 (1992).
20. А.И. Якимов, А.В. Двуреченский, А.И. Никифоров, О.П. Пчеляков, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 125 (1998).
21. G. Medeiros-Ribeiro, D. Leonard, and P.M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1767 (1995).
22. A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, and O.P. Pchelyakov, *Thin Solid Films* **336**, 332 (1998).
23. A.I. Yakimov, C.J. Adkins, R. Boucher, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov, and G. Biskupskii, *Phys. Rev.* **B59**, 12598 (1999).
24. Б.И. Шкловский, А.Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, Наука, Москва 416 (1979).
25. Нгуен Ван Лиен, *ФТП* **18**, 335 (1984).
26. A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, and O.P. Pchelyakov, *Phys. Low-Dim. Struct.* **3/4**, 99 (1999).
27. S. Anand, N. Carlsson, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and W. Seifert, *J. Appl. Phys.* **84**, 3747 (1998).
28. M. Sugawara, K. Mukai, and H. Shoji, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2791 (1997).
29. J.L. Liu, W.G. Wu, A. Balandin, G.L. Jin, and K.L. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 185 (1999).
30. P. Boucaud, V. Le Thanh, S. Sauvage, D. Debarre, and D. Bouchier, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 401 (1999).
31. Д.К. Шредер, *В кн.: Приборы с зарядовой связью*, Барба Д.Ф. (ред.) Мир, Москва (1982), с. 70.
32. S. Sauvage, P. Boucaud, J.-M. Gerard, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev.* **B58**, 10562 (1998).
33. G. Abstreiter, P. Schittenhelm, C. Engel, E. Silveira, A. Zrenner, D. Meertens, and W. Jager, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1521 (1996).
34. P. Schittenhelm, C. Engel, F. Findeis, G. Abstreiter, A.A. Darhuber, G. Bauer, A.O. Kosogov, and P. Werner, *J. Vac. Sci. Technol.* **B16**, 1575 (1998).
35. A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, Yu.Yu. Proskuryakov, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov, S.A. Teys, and A.K. Gutakovskii, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1413 (1999).
36. S.K. Zhang, H.J. Zhu, F. Lu, Z.M. Jiang, and Xun Wang, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3340 (1998).
37. В.Я. Алешкин, Н.А. Бекин, Н.Г. Калугин, З.Ф. Красильник, А.В. Новиков, В.В. Постников, Х. Сейрингер, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 46 (1998).

**Molecular beam epitaxy and electron properties of
Ge/Si heterosystems with quantum dots**

**A.V. Dvurechensky, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov,
S.A. Teys, and A.I. Yakimov**

The experimental data are reported for electrical and optical characteristics of Ge nanoislands in Si (artificial «atoms») which have a discrete energy spectrum down to room temperature. The modern ideas of the mechanisms of the initial stage of self-formation and ordering of nanoclusters ensembles under heteroepitaxy of Ge in Si are briefly considered. The main factors determining the energy spectrum are size quantization and Coulomb interaction of

carriers. It is shown that a new factor which occurs in the array of quantum dots (QD) and is different from that in the case of a single QD is Coulomb correlation between nanoislands. The emission rates and the hole capture cross-sections are determined as a function of energy level depth. The cross-section values are by several order of magnitude higher than those known for Si. The electron transport along the QD layers is realized via hopping conductivity whose value oscillates with changing the hole occupancy of islands. This may lie at the basis of productivity QD electronic circuits for data transmission. It is shown that the design of a photodetector with Ge quantum dots tunable to near and intermediate IR region is quite possible.