

РАМАНОВСКИЙ $E_1, E_1 + \Delta_1$ -РЕЗОНАНС В СИСТЕМЕ НЕНАПРЯЖЕННЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК ГЕРМАНИЯ

А. Б. Талочкин, С. А. Тийс, С. П. Супрун*

*Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 11 октября 2005 г.

Исследованы положение и форма рамановского $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса оптических фононов в зависимости от размера ненапряженных квантовых точек германия. Квантовые точки были выращены в структурах GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe на подложках GaAs ориентации (111) с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии. Наблюдался сдвиг положений E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов, достигающий 0.3 эВ. Показано, что этот сдвиг хорошо описывается в цилиндрической модели с помощью квантования спектра объемных электрон-дырочных состояний германия, образующих экситон в двумерной критической точке. Впервые наблюдалось раздельное проявление пиков E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов, связанное с трансформацией межзонной плотности состояний в дельта-функцию из-за квантования спектра. Показано, что увеличение амплитуды резонанса в квантовых точках по сравнению с объемным случаем определяется кратностью вырождения экситонного состояния в направлении (111).

PACS: 73.21.La

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследованию электронных состояний квантовых точек в полупроводниках за последнее время посвящено значительное число работ (см., например, [1, 2]). Основное внимание уделялось электрон-дырочным состояниям экстремумов валентной зоны и зоны проводимости вблизи края собственного поглощения. Влияние пространственной локализации на них описывается с помощью метода огибающих волновых функций в приближении эффективной массы [3]. Было сделано значительно меньше попыток изучения состояний, которые образуют критические точки в межзонной плотности состояний с энергией вдали от фундаментального края поглощения. Примером такого типа является двумерная критическая точка германия, с которой связан наблюдаемый в германии [4] и в системе квантовых точек германия [5–8] рамановский $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанс. Этот резонанс исследовался ранее в системе квантовых точек германия, полученных различными методами [5–7]. Наблюдался сдвиг энергии $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса в квантовых точках относительно объемного значения [6–8],

величина которого зависит от размеров квантовых точек и соответствует энергии квантования основного состояния двумерного экситона [7] или частицы в квантовом ящике [6]. Однако системы квантовых точек, использованные в экспериментах [5–8], обладали рядом недостатков, не позволяющих детально исследовать природу наблюдаемого резонанса. Так, квантовые точки, полученные с помощью ионной имплантации германия в SiO₂ с последующим отжигом, имеют достаточно большой разброс по размерам, что приводит к дополнительному уширению резонанса [7]. Квантовые точки германия, полученные в матрице кремния в процессе самосогласованного роста при молекулярно-лучевой эпитаксии, сильно напряжены. Механические напряжения, приводящие к искажению спектра электронных состояний кристалла, существенно неоднородны в таких квантовых точках германия [9–11]. Это затрудняет анализ поведения и природы наблюдаемого резонанса. Кроме того, рассмотренные модели квантования спектра электрон-дырочных состояний германия [6, 7] описывают положение резонанса в зависимости от размера квантовой точки, но не объясняют аномально высокой амплитуды резонанса и связи его формы с параметрами массива

*E-mail: tal@thermo.isp.nsc.ru

квантовых точек. В данной работе исследован рамановский $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанс в ненапряженных квантовых точках германия, полученных в структурах GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe с помощью молекулярно-лучевой эпитаксии. В этой системе массив квантовых точек имеет достаточно узкую полуширину функции распределения по размерам (10%), а отсутствие механических напряжений определяется близостью параметров решетки материалов (рассогласование меньше чем 0.3%). Это позволило исследовать положение и форму $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса в квантовых точках различного размера, наблюдать новые особенности резонанса, проясняющие его природу, и использовать спектр электронных состояний объемного германия для анализа экспериментальных результатов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Структуры GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe с квантовыми точками германия были получены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на установке с давлением остаточных газов около 10^{-8} Па. Камера роста была оборудована дифрактометром быстрых электронов для наблюдения структуры поверхности. Пластины GaAs с ориентацией (111) использовались в качестве подложек. Подложки проходили стандартную химическую обработку, после чего крепились на молибденовом носителе с использованием индий-галлиевой эвтектики. Источниками германия и селенида цинка служили термические испарители, причем селенид цинка выращивался из соединения. В процессе термической очистки подложки GaAs в высоковакуумной камере при $T = 580^\circ\text{C}$ получалась атомарно-чистая поверхность, что контролировалось с помощью дифрактометра быстрых электронов по наличию поверхностных сверхструктур. Рост эпитаксиального слоя ZnSe толщиной 100–500 Å проводился при $T = 230^\circ\text{C}$, что обеспечивало получение поверхности со сверхструктурой (2×1) , стабилизированной селеном. После этого проводилось осаждение слоя германия с эффективной толщиной от 5 до 50 Å при $T \approx 100^\circ\text{C}$. Далее германий закрывался тонким слоем ZnSe (20–40 Å) при той же температуре. После этого температура подложки поднималась до 230°C и выращивался защитный слой ZnSe толщиной около 500 Å.

Кристаллы GaAs, ZnSe и Ge имеют близкие значения постоянной решетки (рассогласование не превышает 0.3%). Механические напряжения в полученных структурах пренебрежимо малы. Механизм роста квантовых точек германия в данном слу-

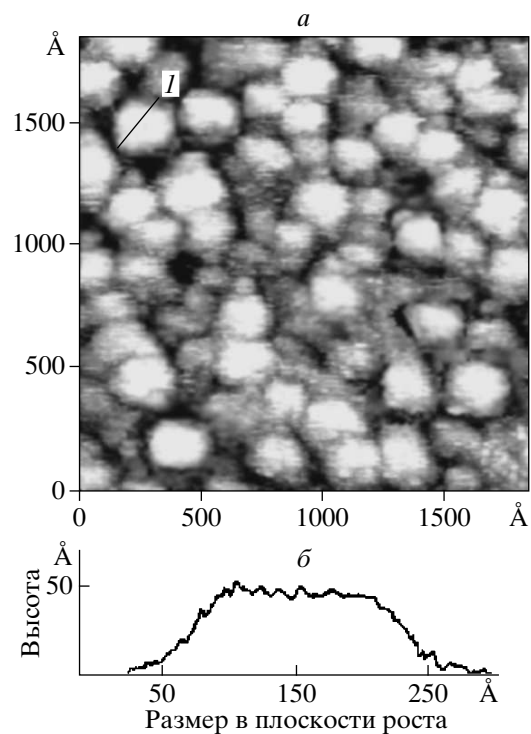


Рис. 1. СТМ-изображение поверхности размера $1800 \times 1800 \text{ \AA}^2$ образца с квантовыми точками германия (а) и поперечное сечение, полученное вдоль линии 1 (б)

чае существенно отличается от механизма Странско-Крастанова, который реализуется в напряженных системах (Ge-Si и др. [12]). При характерных скоростях осаждения германия около $1 \text{ \AA}/\text{мин}$ для температуры подложки $T < 90^\circ\text{C}$ наблюдается рост аморфной пленки германия. Для $T > 130^\circ\text{C}$ германий растет в виде кристаллической двумерной пленки. В диапазоне температур $90\text{--}130^\circ\text{C}$ возникает островковый механизм роста. Островки германия, формирующиеся на начальных стадиях эпитаксии, увеличиваются в размерах по мере роста эффективной толщины покрытия вплоть до смыкания их в сплошной слой. Варьирование толщины германия позволяет изменять размер квантовых точек в плоскости роста в диапазоне от 50 до 300 \AA .

Размеры и форма квантовых точек измерялись с помощью сканирующего туннельного микроскопа (СТМ) RIBER-OMICRON на образцах, которые специально не покрывались слоем ZnSe. На рис. 1а показано СТМ-изображение поверхности ($1800 \times 1800 \text{ \AA}^2$) образца с эффективной толщиной германия $d = 34 \text{ \AA}$. Это изображение получено при туннельном токе 0.2 нА. На рис. 1б приведен про-

филь, измеренный вдоль линии 1. Островки германия имеют каплеобразную форму с плоской вершиной. Из рис. 1б видно, что характерный размер островков германия в плоскости роста составляет 200 Å, а высота — 50 Å. Статистический анализ, проведенный с фрагментами СТМ-изображений, включающих до 10^3 квантовых точек, показал, что полуширина функции распределения по размерам $((\Delta D/D) \cdot 100\%)$, D — размер островков в плоскости роста, ΔD — полуширина функции распределения) для наиболее однородных массивов квантовых точек не превышает 10%.

Спектры рамановского рассеяния на оптических фонах в полученных структурах исследовались при комнатной температуре в геометрии почти обратного рассеяния. Спектры возбуждались дискретными линиями Ar-лазера и регистрировались с помощью спектрометра ДФС-52. Резонансные зависимости рассеяния на оптических фонах измерялись с помощью лазера на красителе (Spectra-Physics, model-375), накачиваемого Ar⁺-лазером (мощность 10 Вт). Для получения возбуждающего света с энергией в диапазоне 2.0–2.4 эВ использовались красители родамин 6G, родамин 110 и кумарин 510. В диапазоне энергий 2.4–2.7 эВ использовались дискретные линии Ar⁺-лазера. Интенсивность наблюдаемого фоновый пика германия нормировалась на спектральную чувствительность спектрометра, которая измерялась по интенсивности фоновых линий CaF₂. Для случая объемного германия резонансная зависимость также нормировалась на спектральную зависимость коэффициента поглощения германия.

3. РАМАНОВСКИЙ $E_1, E_1 + \Delta_1$ -РЕЗОНАНС В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ ГЕРМАНИЯ

Нами исследованы рамановские спектры рассеяния на оптических фонах структур GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe с квантовыми точками германия. Образцы представляли собой ступенчатые структуры, в которых эффективная толщина d слоя германия варьировалась в диапазоне 5–60 Å. В данном диапазоне толщин при указанных выше условиях роста происходит зарождение островков германия и увеличение их размеров до смыкания в сплошной слой. Схема структуры GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe, выращенной на поверхности с ориентацией (111), приведена на вставке к рис. 2. Области 1, 2 и 3 содержат массив изолированных друг от друга островков германия. Эффективная толщина d слоя германия составляет соответственно

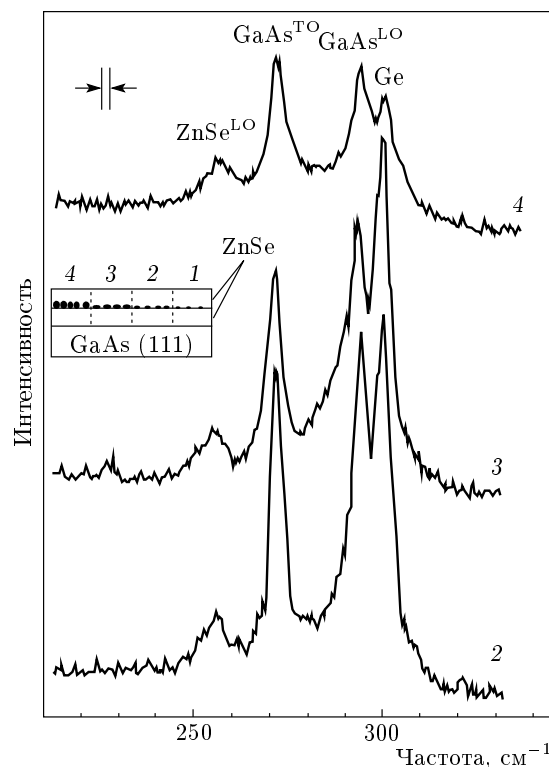


Рис. 2. Рамановские спектры структуры GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe, схема которой показана на вставке. Спектры 2 и 3 получены от областей структуры с квантовыми точками (эффективная толщина d слоя германия составляет соответственно 15 Å и 34 Å). Спектр 4 получен от области со сплошным слоем германия ($d = 56$ Å); $T = 300$ К

6, 15 и 34 Å. В области 4 ($d = 56$ Å) островки германия смыкаются в сплошной слой. СТМ-измерения показали, что при $d = 6$ Å образуются островки с характерным размером $D \approx 60$ Å в основании и высотой $h \approx 20$ Å. Для $d = 15$ Å эти параметры составляют $D \approx 120$ Å, $h \approx 37$ Å, а для $d = 34$ Å — $D \approx 200$ Å, $h \approx 50$ Å.

На рис. 2 показаны рамановские спектры, полученные для трех областей при $T = 300$ К с использованием линии Ar-лазера с длиной волны $\lambda = 488$ нм. В спектрах наблюдаются линии оптических фононов матрицы ZnSe (LO, 255 см⁻¹), подложки GaAs (TO, 273 см⁻¹; LO, 294 см⁻¹) и Ge (TO + LO, 300 см⁻¹). Погрешность определения частоты фоновой линии германия в наших спектрах не превышает ± 0.15 см⁻¹ при ее полуширине 3 см⁻¹, которая совпадает с объемным значением. Используя ангармонические постоянные германия [13], можно найти, что частотный сдвиг, равный погрешности из-

мерения (0.3 см^{-1}), может быть вызван двухосным давлением величиной 1.1 кбар, действующим в плоскости роста [10]. Энергии исследуемых переходов в германии (E_1 и $E_1 + \Delta_1$) линейно зависят от величины этого давления. Используя наклон этих зависимостей, определенный в эксперименте [14], можно найти, что изменение энергии рассматриваемых резонансов не превышает 6 мэВ. Наблюдаемые сдвиги энергий $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонансов в квантовых точках существенно больше, и эта величина (6 мэВ) не превышает погрешности определения их положений (15 мэВ). Поэтому влиянием возможных механических напряжений в исследуемых квантовых точках германия можно пренебречь.

Интенсивность фоновый пика германия в квантовых точках имеет аномально высокое значение (рис. 2, спектры 2 и 3), в пять раз превышающее интенсивность фоновый пика объемного германия для данной длины волны возбуждения. Как только островки германия смыкаются в сплошной слой, интенсивность этого пика резко уменьшается до объемного значения (рис. 2, спектр 3). Это связано с изменением энергии $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса в квантовых точках по сравнению с объемным германием. Значительная разница фоновых частот германия и матрицы ZnSe (45 см^{-1}) приводит к тому, что оптические фононы сильно локализованы в квантовых точках, что позволяет исследовать электронные состояния квантовых точек, используя резонансное рассеяние на оптических фононах.

Отметим, что, как видно из рис. 2, интенсивность фоновых линий подложки GaAs уменьшается с ростом толщины слоя германия из-за поглощения в нем возбуждающего и рассеянного света. Это позволяет оценить коэффициент поглощения α_1 слоя с квантовыми точками. Поскольку ZnSe прозрачен в рассматриваемом диапазоне длин волн, наблюдаемую интенсивность фоновых линий подложки можно записать как

$$I = I_0 \exp(-2\alpha_1 d),$$

где I_0 — интенсивность, измеренная от структуры без слоя германия. Наши измерения показали, что величина α_1 совпадает с объемным значением с точностью $\pm 10\%$. Несмотря на значительную модификацию межзонной плотности состояний и изменение энергии $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса в квантовых точках, которые будут рассмотрены далее, коэффициент поглощения изменяется несущественно. Это объясняется тем, что основной вклад в поглощение дают прямые переходы, не связанные с данным резонансом.

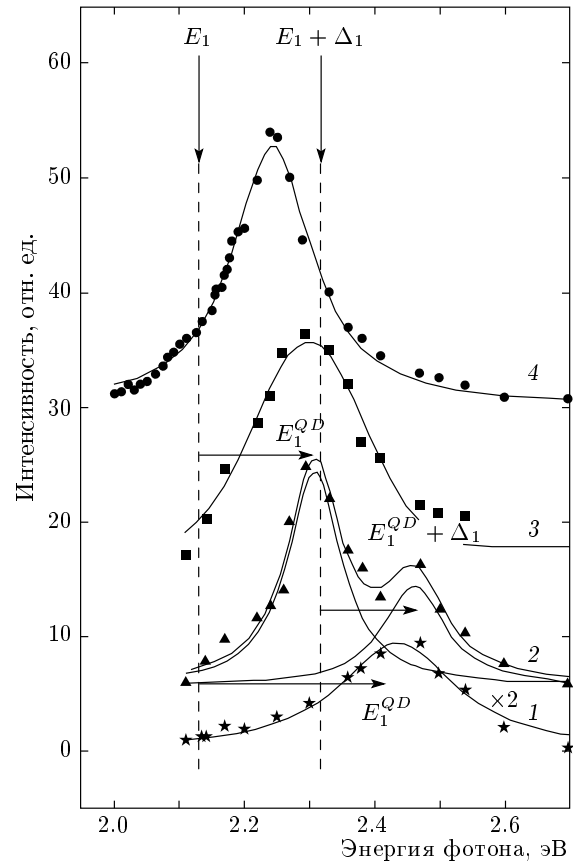


Рис. 3. Резонансные зависимости рамановского рассеяния на оптических фононах германия с квантовыми точками (1 — $d = 6 \text{ \AA}$, 2 — $d = 15 \text{ \AA}$, 3 — $d = 34 \text{ \AA}$) и объемного германия (4). Символы — экспериментальные точки, сплошные линии — наилучшая аппроксимация экспериментальных зависимостей лоренцевским контуром, горизонтальные стрелками показаны сдвиги энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов в квантовых точках; $T = 300 \text{ K}$

Интенсивность рассеяния на фононах зависит от плотности электрон-дырочных состояний при энергии возбуждающего света. Природу наблюдаемого аномального поведения интенсивностей фоновых линий квантовых точек германия (рис. 2, спектры 2 и 3) можно прояснить, исследуя зависимости интенсивности рассеяния от энергии возбуждающего света. Это — так называемые резонансные зависимости. Резонансные зависимости рамановского рассеяния на оптических фононах в объемном германии и в структуре с квантовыми точками германия, измеренные при $T = 300 \text{ K}$ в диапазоне энергий возбуждающего света 2.0–2.7 эВ, приведены на рис. 3. Кривая 4 получена для объемного германия с ориентацией поверхности (111). Она совпадает с

результатами, полученными ранее в работе [4]. Положение энергии E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -переходов в германии показано на рис. 3 вертикальными стрелками. Резонансные кривые 1, 2 и 3 получены от областей структуры GaAs/ZnSe/Ge/ZnSe (111) с квантовыми точками германия, показанной на вставке к рис. 2. Эффективная толщина германия для этих областей составляет соответственно 6, 15 и 34 Å. Приведенные на рис. 3 резонансные зависимости измерены при одной и той же чувствительности системы регистрации и геометрии рассеяния. Это позволяет сравнить положение и интенсивность резонансов в квантовых точках с объемным случаем. Поскольку интенсивность пропорциональна рассеиваемому объему, наблюдаемую амплитуду резонансов в квантовых точках следует умножить на величину L/d ($L = (2\alpha)^{-1} = 100 \text{ \AA}$ — эффективная глубина проникновения света в кристалл, α — коэффициент поглощения германия). Можно получить, что амплитуды резонансов в квантовых точках больше объемного значения для кривых 1, 2 и 3 соответственно в 2,9, 6,6 и 4 раза. Из рис. 3 видно, что в достаточно крупных квантовых точках ($D \approx 200 \text{ \AA}$, $h \approx 50 \text{ \AA}$, рис. 3, спектр 3) резонансная кривая смещена относительно объемной в высокочастотную область на 50 мэВ. Данный сдвиг мы связываем с изменением энергии E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов на эту величину. Для массива менее крупных квантовых точек ($D \approx 120 \text{ \AA}$, $h \approx 37 \text{ \AA}$, рис. 3, спектр 2) резонансная зависимость состоит из двух пиков, связанных с отдельным проявлением E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов. Величина сдвига их энергий показана на рис. 3 (кривая 2) горизонтальными стрелками. Для квантовых точек минимального размера ($D \approx 60 \text{ \AA}$, $h \approx 20 \text{ \AA}$) наблюдается один пик E_1 -резонанса (рис. 3, спектр 1), сдвинутый на 0,3 эВ относительно объемного положения. Таким образом, в системе ненапряженных квантовых точек, полученных в матрице ZnSe, наблюдаются усиление сечения рассеяния на фонах, сдвиг энергии E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов, а также независимое друг от друга проявление этих резонансов.

4. КВАНТОВАНИЕ СПЕКТРА ЭЛЕКТРОН-ДЫРОЧНЫХ СОСТОЯНИЙ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК

Рассмотрим наблюдаемый сдвиг энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов в системе квантовых точек германия, используя спектр электронных состояний объемного германия. На рис. 4а показана дисперсия электронных и дырочных состояний германия вдоль направления (111), рассчитанная с помощью

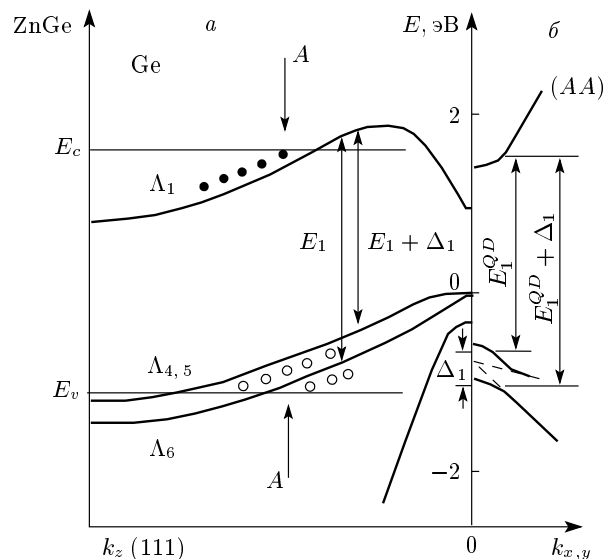


Рис. 4. а) Зонный спектр объемного германия, рассчитанный в работе [13] для направления (111). Горизонтальные линии E_c и E_v показывают положение краев запрещенной зоны ZnSe относительно состояний германия. б) Дисперсия электронной и дырочных зон германия в плоскости $k_x k_y$, перпендикулярной направлению (111), проведенной через стрелки А

k - p -метода [15]. В направлении (111) зоны электронов (Λ_1) и дырок ($\Lambda_{4,5}, \Lambda_6$) параллельны в большей части зоны Бриллюэна. Этим обусловлено существование двумерной критической точки в межзонной плотности состояний, с которой связан рамановский $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанс (вертикальные стрелки), наблюдаемый в объемном германии [4]. Горизонтальными прямыми на рис. 4а отмечены положения дна зоны проводимости E_c и потолка валентной зоны E_v для ZnSe относительно состояний германия [16]. Электронные и дырочные состояния квантовых точек германия, расположенные в запрещенной зоне ZnSe (между E_c и E_v , рис. 4а), оказываются локализованными. Дисперсия состояний в плоскости $k_x k_y$, перпендикулярной направлению (111) и проведенной через стрелки А, показана в правой части рис. 4б. Она описывается при $k_{x,y} \approx 0$ в приближении эффективной массы. Эффективные массы E_1 и $E_1 + \Delta_1$ -переходов в этом направлении составляют $m_{\perp} = 0.045m_0$ [17], где m_0 — масса свободного электрона. Дисперсия дырочных состояний вблизи $k_{x,y} \approx 0$ без учета спин-орбитального взаимодействия показана на рис. 4б штриховыми линиями, а с учетом его — сплошными линиями.

Размеры квантовых точек в плоскости роста

сравнимы с боровским радиусом межзонного экситона, который составляет $\hbar^2\epsilon/m_{\perp}e^2 \approx 180 \text{ \AA}$ ($\epsilon = 15.8$ — диэлектрическая проницаемость германия, e — заряд электрона) [18]. Поэтому влияние локализирующего потенциала, связанного с ZnSe, следует рассматривать с учетом кулоновского взаимодействия электронов и дырок. Спектр носителей вдоль направления (111) не описывается с помощью простейшего приближения — метода эффективной массы, и влияние локализации не столь очевидно, как для перпендикулярного направления. В то же время вид спектра позволяет упростить задачу. Так, при рассмотрении экситонных эффектов для случая седловой критической точки в работе Кейна [18] было показано, что для $m_{\parallel} \gg m_{\perp}$ (m_{\parallel} — приведенная эффективная масса электронов и дырок в направлении (111)) адиабатическое приближение позволяет разделить переменные z и x, y в уравнении Шредингера, записанном для огибающей экситонной волновой функции. В результате эта функция для направления (111) может быть выбрана в виде плоской волны $\exp(ik_z z)$, где k_z — волновой вектор экситона. Реальная каплеобразная форма квантовых точек (см. рис. 1б) может быть аппроксимирована цилиндром с осью вдоль направления (111) высотой h и радиусом основания r в плоскости роста. Легко видеть, что для данной модели квантовых точек граничным условиям удовлетворяют экситонные состояния с огибающими в виде стоячих волн с $k_z = \pi n/2h$, где n — целое число. В результате непрерывный спектр экситонов германия превращается для квантовых точек в набор дискретных состояний. Состояния экситонов с минимальным волновым вектором ($k_z = \pi/2h$) дают основной вклад в межзонную плотность состояний из-за сохранения импульса. Локализация экситонов в этом направлении не изменяет энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов из-за большой эффективной массы ($m_{\parallel} > 50m_{\perp}$), как отмечено в работе [7]. Локализованные состояния электронов и дырок, которые происходят из отдельных зон ($\Lambda_1, \Lambda_{4,5}$ и Λ_6) и попарно связаны в экситоны, условно показаны кружками на рис. 4а вдоль объемных дисперсионных зависимостей.

Локализация экситонов в плоскости xy приводит к квантованию их спектра. Энергии основных (нижних) уровней электронов и дырок показаны на рис. 4б горизонтальными прямыми. Ее изменение в зависимости от размера квантовой точки приводит к смещению положений E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов, показанных на рис. 4б вертикальными стрелками. Сдвиг энергии ΔE основного состояния частицы в цилиндрической модели находится из решения урав-

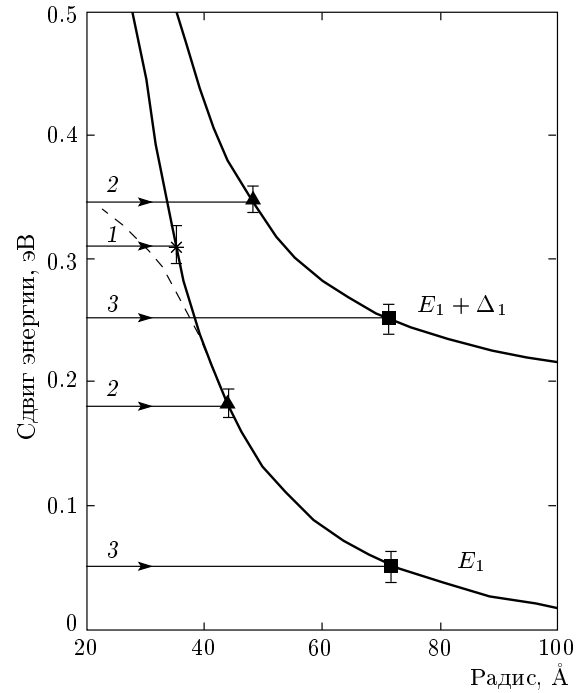


Рис. 5. Зависимости сдвигов энергии $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса от радиуса r цилиндра в плоскости роста. Сплошными линиями показаны зависимости, рассчитанные с помощью выражения (1). Символами обозначены положения резонансов, наблюдаемых в образцах с квантовыми точками германия. Горизонтальными стрелками 1, 2, 3 показаны проекции экспериментальных значений энергии резонанса на теоретические кривые. Эти значения получены из экспериментальных зависимостей, представленных на рис. 3, и обозначены теми же цифрами

нения Шредингера, записанного для огибающей волновой функции экситона, и определяется выражением [7]

$$\Delta E = \frac{\hbar^2}{2m_{\perp}} \left(\frac{2.4}{r} \right)^2 - \frac{3.51e^2}{\epsilon r}. \quad (1)$$

Первый член связан со сдвигом энергий основных состояний электронов и дырок в результате пространственного квантования, второй обусловлен кулоновским взаимодействием электрона и дырки и получен по теории возмущений [7].

Зависимости сдвига энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов от радиуса цилиндра, рассчитанные из выражения (1), приведены на рис. 5 сплошными линиями. Значения энергий резонансов, полученные в квантовых точках (см. кривые 1, 2 и 3 на рис. 3), спроектированы на теоретические зависимости (горизонтальные стрелки) и отмечены символами. Аб-

сисса этих символов определяет величину радиуса цилиндра, которая для областей 3, 2 и 1 образца с квантовыми точками составляет соответственно 72, 45 и 35 Å. Для достаточно крупных квантовых точек (2 и 3), имеющих величину сдвига энергии резонанса, не превышающую $\Delta_1 = 0.2$ эВ, использованная цилиндрическая модель определяет радиус, который на 25 % меньше радиуса квантовой точки в основании, определенного с помощью СТМ. Это несоответствие связано с тем, что радиус цилиндра, аппроксимирующего форму квантовой точки, должен быть несколько меньше, чем радиус основания квантовой точки, из-за того что огибающая волновой функции «чувствует» некоторую эффективную (усредненную) боковую поверхность квантовой точки. Из реальной формы квантовой точки (рис. 1б) видно, что радиус цилиндра, пересекающий боковую поверхность квантовой точки примерно на ее полувысоте, на 25 % меньше размера основания квантовой точки. В результате использованная модель квантовых точек, скорректированная таким образом, хорошо описывает наблюдаемые изменения энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов в зависимости от размера квантовой точки.

Для квантовых точек меньшего размера (рис. 3, кривая 1) определенный из рис. 5 (1) радиус 35 Å оказывается несколько больше реального радиуса 30 Å. Это можно объяснить влиянием барьера конечной высоты на энергию локализованного состояния. Для больших сдвигов энергии резонанса ($\Delta E > \Delta_1$) часть электронных и дырочных состояний приближается к краям потенциального барьера ZnSe (рис. 4а, E_v и E_c), где зависимость ΔE от радиуса квантовой точки отклоняется от теоретической, полученной для бесконечного барьера (выражение (1)). Качественный вид этой зависимости показан на рис. 5 штриховой линией. Видно, что влияние барьеров конечной высоты объясняет наблюдаемое расхождение для квантовых точек малого размера. Таким образом, наблюдаемые изменения энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов в зависимости от размеров квантовых точек хорошо описываются с использованием простейшей модели квантования электрон-дырочного спектра объемного германия.

5. АМПЛИТУДА И ФОРМА РАМАНОВСКОГО РЕЗОНАНСА В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ

Особенности рамановского резонанса в квантовых точках германия, которые не наблюдались ранее [5–8], связаны с отдельным проявлением E_1 - и

$E_1 + \Delta_1$ -резонансов и с усилением амплитуды в квантовых точках по сравнению с объемным случаем. Рассмотрим эти свойства более детально. Частотная зависимость интенсивности рамановского рассеяния на фононах в германии в областях E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов для трехзонных процессов, доминирующих в данном случае, описывается выражением [4]

$$I(\omega) \propto |\chi^-(\omega) - \chi^+(\omega)|^2, \quad (2)$$

где $\chi^-(\omega)$ и $\chi^+(\omega)$ — электронные поляризуемости соответственно E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -переходов. Опуская не зависящие от частоты множители, выражение (2) можно записать в виде [19]

$$I(\omega) \propto \left| \int \left(\frac{\rho_2(\omega_1)}{\omega - \omega_1 - i\Gamma} - \frac{\rho_1(\omega_1)}{\omega - \omega_1 - i\Gamma} \right) d\omega_1 \right|^2, \quad (3)$$

где $\rho_1(\omega)$ и $\rho_2(\omega)$ — межзонные плотности состояний соответственно E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -переходов, Γ — параметр уширения электрон-дырочных состояний. Для двумерной критической точки и параболических зон в направлении, перпендикулярном (111), межзонные плотности состояний $\rho_1(\omega)$ и $\rho_2(\omega)$ представляют собой ступеньки высотой $\rho_0 = K_z m_{\perp} / \hbar^2 \pi^2$, расположенные при энергиях E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов ($K_z \approx 0.3\pi/a_0$ — протяженность критической точки в k -пространстве в направлении (111), a_0 — постоянная решетки). Резонансная кривая, рассчитанная с помощью выражения (3) для ступенек плотности состояний шириной 0.15 эВ и при $\hbar\Gamma = 50$ мэВ, приведена на рис. 6, кривая 1. Эта кривая качественно согласуется с экспериментальной зависимостью (см. рис. 3, кривая 4). Аналогичное соответствие было получено в работе [4] с использованием экспериментальных зависимостей $\chi^-(\omega)$ и $\chi^+(\omega)$. Данная модель справедлива вблизи краев собственного поглощения E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -зон (для идеальной критической точки) и дает только качественное согласие с экспериментом. Тем не менее она позволяет понять природу изменения формы резонанса и интенсивности при переходе от объемного случая к случаю квантовых точек.

Из схемы квантования спектра электрон-дырочных состояний, рассмотренной в предыдущем разделе, следует, что межзонная плотность состояний в квантовых точках трансформируется в дельта-функцию: $\eta K \delta(\hbar\omega_1 - E^{QD})$, где E^{QD} — энергия основного состояния E_1 - или $E_1 + \Delta_1$ -перехода в квантовой точке, K — кратность вырождения экситонных состояний квантовой точки в единице объема, $\eta = 4$ — фактор спин-орбитального вырожде-

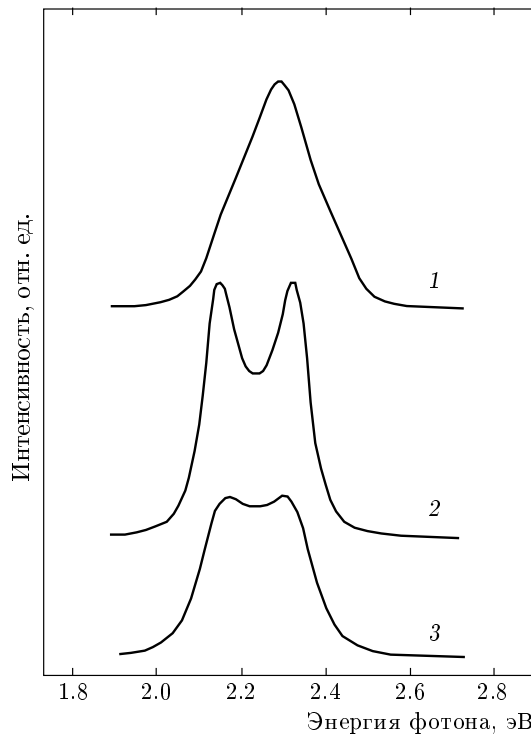


Рис. 6. Резонансные зависимости рассеяния на оптических фононах, рассчитанные для объемного германия (кривая 1) с помощью выражения (3), для отдельной квантовой точки (кривая 2) и для системы квантовых точек с учетом разброса по размерам (кривая 3) с использованием выражения (4)

ния экситона. Выражение (2) для квантовых точек имеет вид

$$I^{QD}(\omega) \propto \left| \frac{1}{\hbar\omega - E_1^{QD} - i\hbar\Gamma} - \frac{1}{\hbar\omega - E_1^{QD} - \Delta_1 - i\hbar\Gamma} \right|^2 K^2. \tag{4}$$

Резонансная кривая, полученная с помощью этого выражения, показана на рис. 6, кривая 2. Видно, что пики E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов проявляются независимо один от другого. Это связано с трансформацией межзонной плотности состояний в квантовых точках в дельта-функцию. Зависимость, полученная экспериментально (рис. 3, кривая 2), обнаруживает вдвое меньшую интенсивность $E_1 + \Delta_1$ -резонанса по сравнению с интенсивностью E_1 -резонанса. Это объясняется тем, что, как видно из рис. 4, часть электрон-дырочных состояний, образующих рассматриваемую критическую точку, попадает в область непрерывного спектра матрицы ZnSe (выше прямой E_c и ниже E_v). Эти состояния являются делокализо-

ванными, и в результате распада на состояния спектра матрицы их параметр затухания Γ может существенно возрасти. Поскольку интенсивность наблюдаемого резонанса $I \propto \Gamma^{-2}$, вклад от этих состояний в рассеяние на фононах становится малым по сравнению с вкладом от локализованных состояний квантовых точек. В результате расположения дырочных зон относительно уровня E_v (см. рис. 4), количество локализованных дырочных состояний, определяющих интенсивность $E_1 + \Delta_1$ -резонанса в квантовой точке, оказывается меньше, чем ответственных за E_1 -резонанс. Для квантовых точек малого размера (рис. 3, кривая 1) наблюдается только пик E_1 -резонанса. В этом случае все состояния дырочной зоны Λ_6 и частично зоны $\Lambda_{4,5}$ оказываются вытолкнутыми в область непрерывного спектра матрицы ZnSe (делокализованными). В результате $E_1 + \Delta_1$ -резонанс не наблюдается, а интенсивность E_1 -резонанса уменьшается. Таким образом, раздельное проявление E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов в квантовых точках связано с трансформацией межзонной плотности состояний в дельта-функцию, а различие в интенсивностях резонансов объясняется влиянием матрицы на электрон-дырочные состояния квантовых точек.

Реальный массив квантовых точек имеет конечное значение разброса квантовых точек по размерам и флуктуации формы. Эти факторы, приводящие к дисперсии энергий рассматриваемых резонансов в массиве квантовых точек, влияют на форму наблюдаемых резонансных кривых. Описывая дисперсию энергии резонансов функцией

$$f(E) = \exp(-|E^{QD} - E|/\beta)$$

и используя выражение (4), можно найти результирующий резонансный контур. Кривая 3, приведенная на рис. 6, получена для $\beta = 20$ мэВ. Видно, что E_1 , $E_1 + \Delta_1$ -резонанс сливается в один пик (отдельно почти не проявляются), а резонансная кривая имеет полуширину, примерно вдвое превышающую полуширину отдельного резонанса. Этот случай наблюдается для массива достаточно крупных квантовых точек (см. рис. 3, кривая 3), которые близки к смыканию в сплошной слой германия, когда возрастают неоднородности указанного характера. Полуширина данной кривой составляет 0.22 эВ, в то время как полуширина отдельных резонансов (рис. 3, кривая 2) равна 0.1 эВ. Для данного массива квантовых точек величина $\beta = 20$ мэВ, использованная в модельном расчете, соответствует относительной полуширине функции распределения квантовых точек по размерам, равной примерно 40 %, что согласуется с

данными СТМ. Этот эффект слияния пиков E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов из-за геометрических неоднородностей в массиве квантовых точек, по-видимому, является типичным для большинства опубликованных ранее экспериментов [5–8].

Поскольку выражения (3) и (4) относятся к единичному объему, можно оценить отношение амплитуд резонансов. Интенсивность (3) в резонансе можно оценить как

$$I \sim \rho_0^2 [4\Delta_1^2 / (\Delta_1^2 + 4\Gamma^2)]^2 \approx (4\rho_0)^2.$$

Учитывая, что $K = n_z N_0$, где N_0 — количество квантовых точек в единице объема, n_z — кратность вырождения состояний в квантовых точках вдоль направления (111), имеем

$$I^{QD} / I \approx (\pi^2 n_z N_0 \hbar / K_z \Gamma m_\perp)^2. \quad (5)$$

Неизвестную величину n_z можно найти, используя экспериментальное значение отношения интенсивностей (I^{QD} / I) ~ 10 . Определенное таким образом значение $n_z \sim 10^2$. Оно определяет количество экситонных состояний с $k_z = \pi/2h$ в области данного резонанса в квантовой точке. Число состояний в квантовой точке, происходящих из отдельных зон (валентной и проводимости), не должно существенно отличаться от найденного значения (порядка 10^2). Считая, что эти уровни равномерно заполняют область критической точки, можно оценить расстояние δE между соседними состояниями. Исходя из вида объемного спектра (рис. 4а), находим $\delta E \approx 8$ мэВ, что существенно меньше частоты оптического фона в германии (37 мэВ). Это приводит к тому, что релаксация фотовозбужденных носителей в данной области энергий должна происходить интенсивно за счет однофононных процессов, как и в объемном германии. Для случая, когда $\delta E > 37$ мэВ, темп релаксации должен существенно замедляться из-за того, что многофононные процессы менее вероятны. Сверхбыстрая релаксация неравновесных носителей в системе квантовых точек германия в этой области энергий наблюдалась в работе [20]. Наши оценки числа состояний системы квантовых точек германия в данной области энергий объясняют ее природу. Таким образом, высокое значение кратности вырождения экситонов вдоль направления (111) в области двумерной критической точки системы квантовых точек германия определяет интенсивность рамановского резонанса, а кроме того, объясняет сверхбыструю релаксацию неравновесных носителей.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе исследованы положение и форма рамановского $E_1, E_1 + \Delta_1$ -резонанса в зависимости от размеров ненапряженных квантовых точек германия. Наблюдалось смещение энергий E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов, достигающее 0.3 эВ, при уменьшении размеров квантовых точек. Показано, что это смещение хорошо описывается в цилиндрической модели квантовых точек с помощью квантования спектра объемных электрон-дырочных состояний германия, образующих экситон в области двумерной критической точки межзонной плотности состояний германия. Для достаточно однородного массива квантовых точек наблюдались два пика E_1 - и $E_1 + \Delta_1$ -резонансов. Показано, что их независимое проявление в квантовых точках обусловлено трансформацией межзонной плотности состояний в дельта-функцию из-за квантования спектра. Наблюдаемое увеличение интенсивностей резонансов в квантовых точках по сравнению с объемным случаем связано с высоким значением кратности вырождения экситонного состояния в направлении (111).

Авторы благодарны А. В. Прозорову за помощь в получении структур с квантовыми точками германия, а также А. В. Ефанову за полезное обсуждение результатов. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 04-02-16425).

ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Maeda, Phys. Rev. B **51**, 1658 (1995).
2. D. J. Lockwood, Z. H. Lu, and J.-M. Baribeau, Phys. Rev. Lett. **76**, 539 (1996).
3. L. Banyai and S. W. Koch, in *Semiconductor Quantum Dots, Ser. Atomic, Molecular and Optic Physics*, vol. 2, World Sci., Singapore (1993), p. 53.
4. F. Cerdeira, W. Dreybrodt, and M. Cardona, Sol. St. Comm. **10**, 591 (1972).
5. S. Sasaki and C. Horie, Phys. Rev. B **47**, 3811 (1993).
6. А. Б. Талочкин, В. А. Макров, С. П. Супрун и др., Письма в ЖЭТФ **64**, 203 (1996).
7. K. L. Teo, S. H. Kwok, P. Y. Yu, and Soumyendu Guha, Phys. Rev. B **62**, 1584 (2000).
8. I. E. Tyschenko, A. B. Talochkin, A. G. Cherkov et al, Sol. St. Comm. **129**, 63 (2004).

9. M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **52**, 11969 (1995).
10. А. Б. Талочкин, В. А. Марков, А. И. Никифоров, С. А. Тийс, *Письма в ЖЭТФ* **70**, 279 (1999).
11. А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, *ЖЭТФ* **118**, 570 (2000).
12. Y. W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber, and M. G. Legally, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1020 (1990).
13. F. Cerdeira, C. J. Buchenauer, Fred H. Pollak, and M. Cardona, *Phys. Rev. B* **5**, 580 (1972).
14. Meera Chandrasekhar and Fred H. Pollak, *Phys. Rev. B* **15**, 2127 (1977).
15. F. Pollak and M. Cardona, *Phys. Rev.* **142**, 530 (1966).
16. S. P. Kowalczyk, E. A. Kraut, J. P. Waldrop, and R. W. Grant, *J. Vac. Sci. Technol.* **21**, 482 (1982).
17. D. E. Aspnes, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 230 (1973).
18. E. O. Kane, *Phys. Rev.* **180**, 852 (1969).
19. K. P. Jain and Gayatri Choudhury, *Phys. Rev.* **8**, 676 (1973).
20. P. Tognini, A. Stella, S. De Silvestri et al., *Appl. Phys. Lett.* **75**, 208 (1999).