

Влияние барьера для электронов на конденсацию экситонов и спектр многочастичных состояний в квантовых ямах SiGe/Si

В. С. Багаев⁺, В. С. Кривобок⁺¹⁾, С. Н. Николаев⁺, Е. Е. Онищенко⁺, М. Л. Скориков⁺, А. В. Новиков[∇],
Д. Н. Лобанов[∇]

⁺ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119992 Москва, Россия

[∇] Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 11 мая 2112 г.

Продemonстрировано влияние барьера для электронов в слое SiGe на работу выхода и равновесную концентрацию квазидвумерной конденсированной фазы, образующейся в квантовых ямах SiGe/Si. При величине барьера, близкой к критической для образования электронно-дырочной жидкости, обнаружен новый канал рекомбинации, обладающий нестандартными свойствами.

В работах [1–3] показано, что при низких температурах в квантовых ямах (КЯ) SiGe/Si может наблюдаться конденсация экситонов в квазидвумерную электронно-дырочную жидкость (ЭДЖ) металлического типа. Однако ряд особенностей этой конденсации не укладывается в представления об аналогичном процессе в объемных Ge и Si. В частности, основной параметр, определяющий стабильность конденсированной фазы, – энергия связи на пару частиц [4], – в ряде случаев оказывается очень низким для ЭДЖ, локализованной в КЯ [1, 2]. Тем не менее конденсированная фаза является стабильной вплоть до температуры порядка 20 К, соизмеримой с критической температурой ЭДЖ в объемном кремнии. Определенные сложности вызывает также описание формы линии ЭДЖ и динамики фазового перехода газ-жидкость при низких температурах, который не проявляет черт фазового перехода 1-го рода [2]. Для понимания перечисленных выше особенностей конденсации в квазидвумерной структуре необходим анализ условий образования и основных свойств ЭДЖ в зависимости от параметров зонной диаграммы КЯ SiGe/Si. С экспериментальной точки зрения простым способом, позволяющим управлять этими параметрами, является изменение концентрации германия при фиксированной толщине КЯ. По мере повышения концентрации германия в слое SiGe постепенно увеличивается глубина потенциальной ямы для дырок и появляется барьер для электронов [5]. Как будет показано ниже, именно этот барьер объясняет принципиальные различия между конденсацией экситонов в КЯ SiGe/Si и объемных материалах. Он же приводит к появлению новых коллективных явле-

ний, существующих при сравнительно высоких температурах.

x	d_{Buf}	d_{SiGe}	d_{Cap}	E_{ex}	$\sigma(E_{\text{ex}})$
2.9%	100	5	100	1.1439	≤ 0.4
3.5%	100	5	100	1.1419	0.4
4.3%	100	5	100	1.1357	0.3
4.7%	100	5	100	1.1325	0.5
5.0%	100	5	100	1.1256	0.6
6.9%	100	5	100	1.1158	0.7
9.6%	100	5	100	1.0890	1.3
13.8%	100	5	100	1.0581	1.6

Здесь x – содержание германия в слое SiGe/Si; d_{Buf} , d_{SiGe} , d_{Cap} – толщины в нанометрах буферного слоя, слоя SiGe и покрывного слоя соответственно; E_{ex} , $\sigma(E_{\text{ex}})$ – положение дна экситонной зоны и его средний разброс, измеренные по спектрам НФЛ.

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках Si (001). Номинальные ростовые параметры образцов систематизированы в таблице. Параметры КЯ дополнительно контролировались с помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии. Измерения спектров низкотемпературной фотолюминесценции (НФЛ) проводились в парах гелия либо в сверхтекучем гелии в геометрии на отражение. В качестве источников возбуждения применялись непрерывные полупроводниковый ($\lambda = 405$ нм) и перестраиваемый титан-сапфировый ($700 \text{ нм} \leq \lambda \leq 1000$ нм) лазеры. Рекомбинационное излучение анализировалось решеточными спектрометрами. Излучение в ИК-диапазоне детектировалось фотоумножителем с InP/InGaAsP-фотокатодом, а в видимой области (2Еg-люминесценция, процесс, при котором после одновременной рекомбинации двух электронов из противоположных долин и двух дырок энер-

¹⁾ e-mail: krivobok@lebedev.ru

гия полностью передается кванту света [6]) – многоканальным ПЗС-приемником Spec-10 (Princeton Instruments). Каждая из исследуемых структур характеризовалась высоким квантовым выходом НФЛ как из объемного кремния, так и из слоя SiGe. Анализ экситонной люминесценции при низких накачках, подробно описанный в работе [2], позволил определить положение дна экситонной зоны (E_{ex}) в слое SiGe и оценить его дисперсию (σ_{ex}) для всех исследуемых структур, см. таблицу.

На рис. 1а приведены фрагменты спектров НФЛ, демонстрирующие перестройку электронно-дыроч-

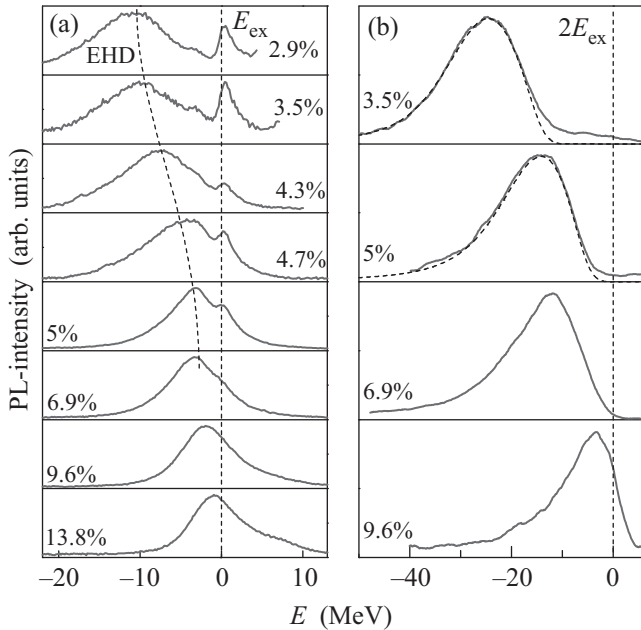


Рис. 1. Спектры НФЛ КЯ $Si_{1-x}Ge_x/Si$ с различным содержанием германия, отложенные от энергетического положения дна экситонной зоны E_{ex} . (а) – ТО-фононное повторение ИК-спектров при температуре 10 К и $W = 0.2 \text{ Вт/см}^2$. При $x \leq 6.9\%$ в спектрах появляется дублет, состоящий из линии свободного экситона и ЭДЖ. (б) – $2E_g$ -спектры при температуре 2 К и $W = 2 \text{ Вт/см}^2$. Штриховая линия – теоретическая аппроксимация экспериментальных данных по формуле (1); $n_{3.5\%} = 1,1 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, $n_{5\%} = 9,7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$. При $x \geq 6.9\%$ форма кривой не описывается в рамках модели двумерной ЭДЖ

ной системы при температуре 10 К по мере уменьшения концентрации германия в слое SiGe. В каждом из спектров энергия отсчитывается от $E_{ex} - E_{TO}$, где $E_{TO} = 57.8 \text{ мэВ}$ – энергия поперечного оптического фона в X-точке зоны Бриллюэна в кремнии. Из рис. 1а видно, что для КЯ с $x = 9.6$ и 13.8% регистрируется только одна линия излучения, максимум которой практически совпадает с положением дна экситонной зоны. Такой характер рекомбинаци-

онного спектра типичен для КЯ SiGe/Si с $x > 9.0\%$, имеющих сравнительно высокий барьер для электронов в слое SiGe [5]. Наличие достаточно высокого барьера приводит к пространственному разделению неравновесных носителей, и образование конденсированной фазы оказывается невыгодным. В этом случае увеличение накачки сопровождается синим сдвигом излучения КЯ, связанным с постепенным увеличением роли пространственно прямых переходов [1]. Отметим, что для структуры с $x = 9.6\%$ синий сдвиг излучения относительно удвоенной энергии дна экситонной зоны отчетливо виден и в $2E_g$ -спектрах (см. рис. 1б).

В отличие от КЯ с $x = 9.6$ и 13.8% для каждой из структур с $x \leq 6.9\%$ удается зарегистрировать дублетную структуру, связанную с сосуществованием в КЯ конденсированной фазы и экситонного газа [1–3]. Естественно предположить, что при уменьшении концентрации германия с 9.6 до 6.9% сохраняется второй тип зонной диаграммы, но происходит уменьшение высоты барьера для электронов. Наличие барьера подтверждается, в частности, незначительным синим сдвигом линии излучения при температуре 5 К, который удается зарегистрировать в образце с $x = 6.9\%$ с увеличением накачки. Таким образом, можно утверждать, что конденсированная фаза является стабильной при некоторой “пороговой” высоте барьера, который компенсируется перенормировкой запрещенной зоны вследствие кулоновского взаимодействия между носителями в ней. При уменьшении концентрации германия уменьшается и высота барьера, увеличивая энергию связи на пару частиц в ЭДЖ. Этот вывод подтверждается экспериментальными данными, приведенными на рис. 1, 2 (наиболее наглядно увеличение энергии связи на пару частиц в конденсированной фазе видно из $2E_g$ -спектров на рис. 1б). Отметим, что в случае структур с $x \approx 2.9$ – 3.5% , в которых следует ожидать наименьшей высоты барьера, работа выхода достигает 6 мэВ, что значительно выше, чем в односно деформированном Si (3.8 мэВ). Полученный результат подтверждает выводы ранних теоретических работ об увеличении стабильности конденсированной фазы в квазидвумерных системах.

Другим эффектом, косвенно подтверждающим существование барьера для электронов при малых концентрациях германия, является резкая зависимость от x отношения $I_{rel} = I_{Si}/I_{SiGe}$ интенсивностей излучения из объемного кремния и из слоя SiGe, см. рис. 2. Этот эффект предположительно связан с влиянием высоты барьера на эффективность захвата в КЯ. На рис. 2 хорошо видна жесткая корреля-

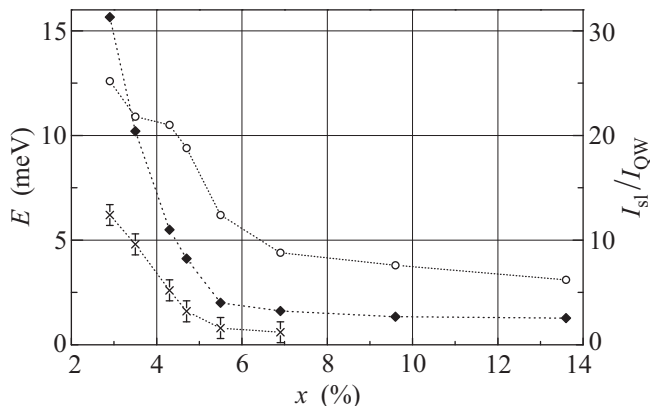


Рис. 2. Работа выхода из конденсированной фазы φ (кресты), ширина линии излучения КЯ на полувысоте при $T = 5$ К и плотности мощности возбуждения $W \approx 2$ Вт/см² (кружки) и отношение максимумов интенсивностей излучения из объемного кремния и КЯ при 5 К, характеризующее эффективность захвата экситонов в КЯ (ромбы)

ция между I_{rel} и энергией связи носителей в ЭДЖ. Отметим, что наблюдаемая зависимость I_{rel} от концентрации германия не связана с термическим выбросом носителей из КЯ. Это доказывает, в частности, уменьшение I_{rel} при повышении температуры с 5 К до 10 К для всех исследуемых КЯ.

Для изучения роли барьера в формировании спектра многочастичных состояний в КЯ было проведено детальное исследование 2Eg-спектра структуры с $x = 5\%$ при различных температурах и интенсивностях накачки. При плотности мощности ~ 2 Вт/см² излучение ЭДЖ наблюдается вплоть до 25 К (см. рис. 3). Таким образом, средняя тепловая энергия, при которой существует конденсированная фаза, заметно превышает работу выхода из нее (~ 0.8 мэВ). Данная аномалия невозможна для классической системы газ–жидкость, т.к. сосуществование невзаимодействующего газа экситонов и конденсированной фазы в диапазоне температур 2–25 К нарушало бы принцип детального равновесия. В то же время в случае структур, имеющих барьер для электронов в слое SiGe, образование конденсированной фазы при высоких температурах естественным образом объясняется отталкивательным взаимодействием экситонов. Отталкивание экситонов вызвано наличием у них квадрупольного момента из-за пространственного разделения электрона и дырки. Вследствие этого взаимодействия рост концентрации экситонов в газовой фазе приводит к резкому увеличению ее химического потенциала, уменьшая скорость испарения жидкости, т.е. увеличивая ее стабильность.

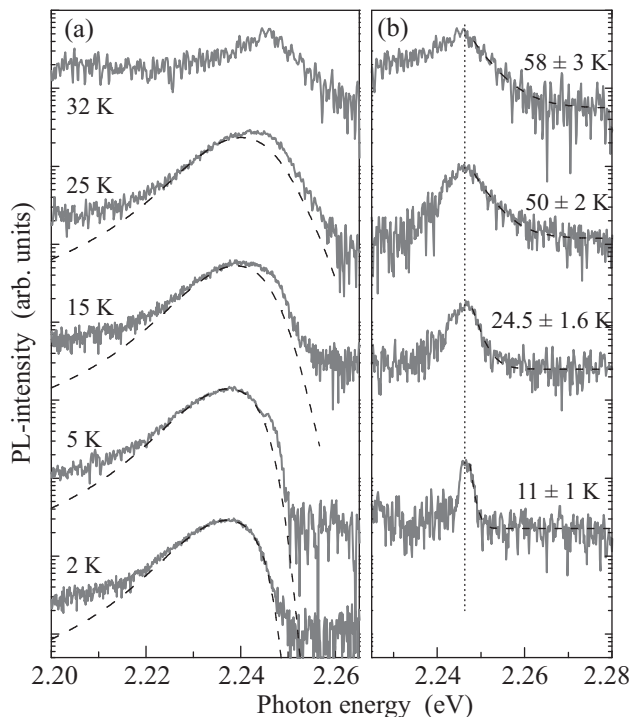


Рис. 3. (а) – 2Eg-спектры КЯ с $x = 5\%$ при плотности мощности возбуждения $W = 2$ Вт/см² и различных температурах. Штриховая линия – аппроксимация излучения конденсированной фазы формулой (1). (б) – Результат вычитания вклада конденсированной фазы из экспериментальных спектров на рис. 3а, демонстрирующий появление нового канала рекомбинации (P^+). Штриховая линия – аппроксимация коротковолнового спада P^+ -линии формулой $y = Ae^{-E/h\alpha} + y_0$. Значения параметра α , приведенные на рисунке, примерно вдвое превышают температуру решетки

При уменьшении x критическая температура ЭДЖ уменьшается, несмотря на увеличение энергии связи частиц в ней. Это связано с уменьшением роли барьера в структурах с низкой концентрацией германия.

Как видно из рис. 3 и 4, 2Eg-спектры имеют сложный характер и не могут быть описаны только излучением конденсированной фазы. Таким образом, для детального изучения коллективных эффектов оказался необходимым теоретический анализ формы линии ЭДЖ в 2Eg-спектрах, отсутствующий в современной литературе. Для описания излучения ЭДЖ была использована модель двумерной электронно-дырочной плазмы, учитывающая однородное уширение [2, 7]. Если пренебречь энергетической зависимостью матричного элемента перехода и учесть закон сохранения импульса, форма линии ЭДЖ в 2Eg-спектрах будет определяться сверткой функций распределения дырок и электронов $\rho_{e,h}$:

$$I(\hbar\omega) \propto \rho_{e1}^2 \cdot \rho_{h1} * \rho_{h2}, \quad (1)$$

в которой при учете однородного уширения

$$\rho_{e,h}(\varepsilon) = f_{e,h}(\varepsilon) \int_0^{\infty} D_{e,h}(\varepsilon') L(\varepsilon - \varepsilon', \Gamma(\varepsilon')) d\varepsilon', \quad (2)$$

где $D(\varepsilon)$ – функция плотности состояний (использовалась функция Хэвисайда), $L(\Delta\varepsilon, \Gamma)$ – распределение Лоренца с шириной Γ , а $f_{e,h}$ – функция Ферми $[1 + \exp(\varepsilon - \mu_{e,h})/kT]^{-1}$ с квазиуровнями Ферми для электронов и дырок $\mu_{e,h}$, зависящими от плотности ЭДЖ $n_e = n_h = n$ и температуры T :

$$\mu_{e,h} = kT \ln \left[\exp \left(\frac{\pi^2 n}{m_{e,h} kT} \right) - 1 \right]. \quad (3)$$

Эффективные массы носителей заряда определялись по интерполяционным формулам [8] и для квантовой ямы с $x = 5\%$ составили $m_h = m_{h\parallel} = 0.19m_0$ и $m_e = m_{e\parallel} = 1.72m_0$. При расчетах использовалась квадратичная зависимость параметра однородного уширения $\Gamma(\varepsilon) = \Gamma_0(1 - \varepsilon/\mu)^2 + \Gamma_{\infty}$ [7]. Используемая модель двумерной плазмы позволила одновременно описать как ИК- [2], так и 2Ег-спектры конденсированной фазы и получить довольно точные значения равновесной концентрации и работы выхода из ЭДЖ (см. рис. 2).

Новым явлением, по-видимому также связанным с отталкивательным взаимодействием экситонов, является возникновение нестандартного канала излучательной рекомбинации в 2Ег-спектрах (P^+ -линия, см. рис. 3). Хорошее согласие экспериментальных и расчетных кривых для конденсированной фазы позволило подробно проследить особенности второго канала рекомбинации в зависимости от температуры и плотности мощности возбуждения. С повышением накачки в спектре КЯ наблюдается образование ЭДЖ и постепенное увеличение ее интенсивности (см. рис. 4), в то время как интенсивность излучения второго канала рекомбинации снижается. При плотности мощности $W = 4.6 \text{ Вт/см}^2$ P^+ -линия исчезает из спектров, что связано, по-видимому, с заполнением КЯ конденсированной фазой.

Как видно из рис. 3б, спектральное положение P^+ -линии остается неизменным во всем температурном диапазоне, а ее коротковолновый спад близок к экспоненциальному. Результат аппроксимации спадов формулой $y(\hbar\omega) = Ae^{-\hbar\omega/k\alpha} + y_0$ приведен на рис. 3б штриховой линией с указанием соответствующего параметра α . При высоких плотностях возбуждения α приблизительно в 2 раза превышает температуру решетки. С уменьшением накачки α снижается и

практически совпадает с температурой решетки при $W = 0.2-0.3 \text{ Вт/см}^2$. Отметим, что перегрев экситонного газа в КЯ, измеренный экспериментально по форме линии излучения в ИК-спектрах, не превышал 1–2 К при всех используемых плотностях возбуждения, т.е. спад “ $2kT$ ” не связан с нагревом электронно-дырочной системы. Для квазиравновесного состояния подобный спад может наблюдаться, если в процессе излучательной рекомбинации оставшаяся часть электронно-дырочной системы передает кванту света дополнительную энергию, пропорциональную ее температуре. Для структуры с пространственным разделением носителей передача возбуждения связана, возможно, с адиабатическим расширением отталкивающихся экситонов в незанятую область КЯ, образующуюся при рекомбинации. Другой интересной особенностью P^+ -линии является заметное длинноволновое размытие (см. рис. 4), исклю-

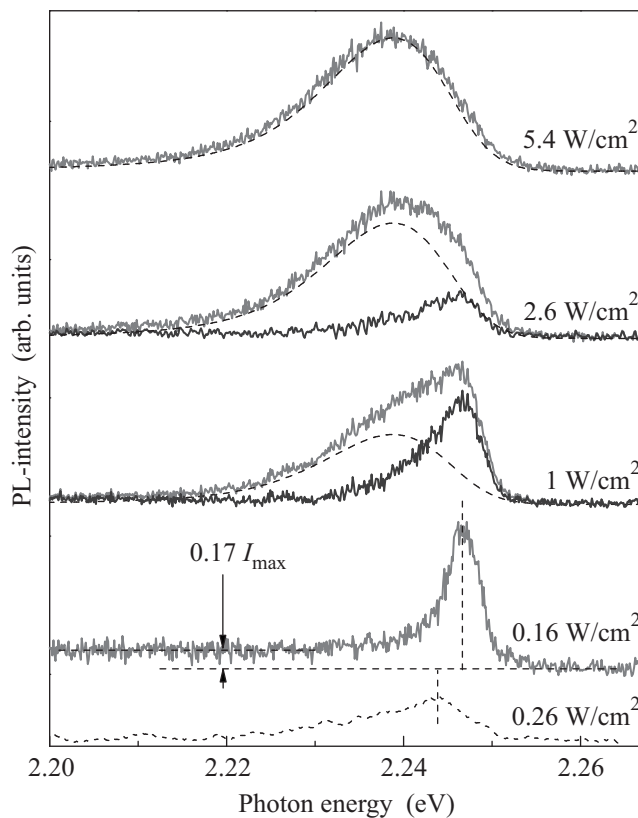


Рис. 4. Зависимость 2Ег-спектров от плотности мощности возбуждения (указана справа) при температуре 15 К, демонстрирующая вклад ЭДЖ (штриховая линия) и P^+ -канала (сплошная темная линия). Внизу пунктиром приведен спектр излучения локализованных мнгоэкситонных комплексов при 2 К

чающее ее связь с биэкситонной рекомбинацией. В 2Ег-спектрах излучение биэкситонов должно иметь

резкую красную границу вблизи $2E_x - E_{\text{Вi}}$, где $E_{\text{Вi}}$ – энергия связи биэкситонов. Размытие длинноволновой границы объясняется обычно передачей энергии частицам, оставшимся после рекомбинации, как, например, в случае трионов [9].

Корреляция относительной интенсивности P^+ -линии и излучения из газовой (экситонной) фазы позволяет утверждать, что именно эта фаза ответственна за появление нового канала рекомбинации. С другой стороны, неизменное положение максимума P^+ -линии, отстоящего на ~ 4.5 мэВ от удвоенного дна экситонной зоны при различных температурах и плотностях возбуждения, может указывать на ее связь с многочастичными ассоциатами, имеющими фиксированную энергию образования. Как отмечалось выше, данные ассоциаты должны включать более четырех частиц (двух электронов и двух дырок), так как в противном случае нельзя объяснить сильного низкочастотного размытия P^+ -линии в $2E_g$ -спектрах. Наиболее вероятным кандидатом на роль таких ассоциатов являются заряженные экситонные комплексы, в состав которых входит дополнительная дырка. С одной стороны, т.к. в исследуемых структурах доминируют мелкие акцепторные примеси [2], следует ожидать, что образование такого ассоциата является эффективным благодаря избыточной концентрации дырок. С другой стороны, при наличии барьера для электронов положительно заряженный многоэкситонный комплекс должен быть более стабильным, чем нейтральный или отрицательно заряженный. Это связано с тем, что кулоновская добавка, возникающая из-за дополнительного положительного заряда, частично компенсирует вклад барьера и, таким образом, подавляет пространственное разделение носителей. Как и в случае ЭДЖ, аномально высокая стабильность положительно заряженных экситонных ассоциатов, позволяющая наблюдать их при температурах $\gtrsim 30$ К, может быть связана с резкой зависимостью от концентрации химического потенциала экситонного газа. Тем не менее для надежного установления природы P^+ -линии необходимы дополнительные исследования.

Таким образом, показано, что возможность образования конденсированной фазы в квантовых ямах $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ шириной 5 нм определяется величиной

барьера для электронов в слое SiGe, высота которого монотонно возрастает при увеличении концентрации германия. С уменьшением содержания германия растет как равновесная концентрация, так и энергия связи носителей в ЭДЖ, достигая 6 мэВ при $x \sim 2.9\text{--}3.5\%$. В системе с барьером, близким к критическому для образования ЭДЖ, конденсированная фаза наблюдается при аномально высоких температурах (25 К), несмотря на очень низкую энергию связи (0.8 мэВ). Данное явление объясняется влиянием квадрупольного отталкивания пространственно не прямых экситонов на химический потенциал газовой фазы и скорость испарения ЭДЖ. При температурах $\sim 5\text{--}32$ К в спектрах $2E_g$ -люминесценции обнаружен новый канал рекомбинации, смещенный в коротковолновую область относительно линии локализованных многоэкситонных комплексов. Данный канал характеризуется неизменным спектральным положением линии излучения, ее значительным низкочастотным размытием и экспоненциальным коротковолновым спадом, зависящим от плотности мощности возбуждения и температуры.

Работа поддержана РФФИ (грант # 09-02-01233-а) и грантом Президента РФ # МК-64564.2010.2.

1. Т. М. Бурбаев, М. Н. Гордеев, Д. Н. Лобанов и др., Письма в ЖЭТФ **92**, 341 (2011).
2. V. S. Bagaev, V. S. Krivobok, S. N. Nikolaev et al., Phys. Rev. B **82**, 115313 (2010).
3. Т. М. Бурбаев, Е. А. Бобрик, В. А. Курбатов и др., Письма в ЖЭТФ **85**, 410 (2007).
4. *The Electron-Hole Drops in Semiconductors in Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, 6 (Eds. C. D. Jeffries and L. V. Keldysh), Amsterdam: North-Holland, 1983.
5. C. Penn, F. Schäffler, G. Bauer et al., Phys. Rev. B **59**, 13314 (1999).
6. T. Steiner, L. Lenchyshyn, M. Thewalt et al., Solid State Commun. **89**, 429 (1994).
7. T. Stoica and L. Vescan, J. Appl. Phys. **94**, 4400 (2003).
8. Martin M. Rieger and P. Vogl, Phys. Rev. B **48**, 14276 (1993).
9. A. Esser, E. Runge, R. Zimmermann, and W. Langbein, Phys. Rev. B **62**, 8232 (2000).