

Электронно-дырочная жидкость и экситонные молекулы в квазидвумерных SiGe-слоях гетероструктур Si/SiGe/Si

Т. М. Бурбаев¹), М. Н. Гордеев, Д. Н. Лобанов*, А. В. Новиков*, М. М. Рзаев, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков, В. А. Цветков, Д. В. Шепель

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

* Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 6 июля 2010 г.

В квантово-размерных SiGe-слоях гетероструктур Si/Si_{1-x}Ge_x/Si II рода обнаружена электронно-дырочная жидкость (ЭДЖ), состоящая из квазидвумерных дырок в квантовой яме в SiGe-слое и квазитрехмерных электронов, находящихся в этом слое и его окрестности. Определены концентрации дырок и электронов в ЭДЖ, равные $p_0 \approx 8.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ и $n_0 \approx 4.8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, соответственно. Показано, что газовая фаза состоит из экситонов и экситонных молекул. Установлены требования к зонным параметрам структуры, при выполнении которых возможно образование ЭДЖ такого типа и биэкситонов.

Введение. Пространственные ограничения, усиливающие эффекты межчастичных взаимодействий, а также возможность управления электронным спектром посредством изменения дизайна наноструктур позволяют в низкоразмерных системах исследовать новые свойства экситонов, не наблюдавшиеся в объемных полупроводниках. Так, например, были обнаружены заряженные трехчастичные экситонные комплексы (трионы) в квантовых ямах (КЯ) [1] и бозе-конденсация пространственно не прямых экситонов в двойных КЯ [2]. Однако вплоть до недавнего времени отсутствовали надежные сведения о конденсации экситонов в электронно-дырочную жидкость (ЭДЖ) в квантово-размерных структурах – основного коллективного явления в экситонных системах высокой плотности в объемных полупроводниках и, прежде всего, в германии и кремнии – классических материалах для наблюдения и исследования этого фазового перехода (см. обзоры [3–7] и ссылки в них).

По аналогии с объемными полупроводниками следовало ожидать, что это явление должно существовать в наноструктурах на основе кремния и германия. Первые сообщения о наблюдении квазидвумерной ЭДЖ в КЯ гетероструктур Si/SiO₂ были сделаны в работах [8, 9]. В работах [10, 11] была обнаружена и исследована конденсация экситонов в ЭДЖ в напряженных Si_{1-x}Ge_x-слоях гетероструктур Si/Si_{1-x}Ge_x/Si ($x = 0.05$). Толщина Si_{1-x}Ge_x-слоев d в исследованных структурах составляла 25–70 нм, то есть значительно превышала величину боровского радиуса экситона a_x (в объемном кремнии $a_x \approx$

5 нм). Поэтому наблюдавшаяся ЭДЖ была трехмерной и по своим свойствам практически не отличалась от ЭДЖ в объемном одноосно деформированном кремнии [3–7].

В настоящей работе методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) исследована экситонная система в трех гетероструктурах Si/Si_{1-x}Ge_x/Si с квазидвумерными ($d < a_x$) Si_{1-x}Ge_x-слоями толщиной $d = 2$ нм (с содержанием германия $x = 0.09$ и 0.25) и $d = 4$ нм ($x = 0.09$). Обнаружено, что в структурах с $d = 2$ нм и меньшей концентрацией германия при достаточно низких температурах и высоких уровнях возбуждения в Si_{1-x}Ge_x-слое образуется ЭДЖ, состоящая из квазидвумерных дырок с плотностью $p_0 \approx 8.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ и квазитрехмерных электронов с плотностью $n_0 \approx 4.8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Показано, что в состав газовой фазы входят как экситоны, так и экситонные молекулы (биэкситоны). Парциальная доля последних возрастает при увеличении уровня накачки в допороговой для образования ЭДЖ области и оказывается заметной вплоть до температур, близких к 20 К. Однако в спектрах ФЛ двух других гетероструктур линии излучения свободных биэкситонов и ЭДЖ отсутствовали во всем исследованном диапазоне уровней возбуждения.

Дело, по-видимому в том, что структуры Si/Si_{1-x}Ge_x/Si являются гетероструктурами II рода с потенциальным барьером для электронов и ямой для дырок в SiGe-слое [12–14]. Неравновесные электроны и дырки в таких структурах, вообще говоря, пространственно разделены: дырки находятся в квантовой яме в SiGe-слое, а электроны – преимущественно в кремнии вблизи гетерограниц Si/SiGe, то есть экситоны являются пространствен-

¹) e-mail: burbaev@sci.lebedev.ru

но непрямыми, и отталкивательное взаимодействие между ними преобладает. Однако если туннельная прозрачность барьера достаточно высока, электронная плотность может стать максимальной внутри SiGe-слоя [14]. Экситоны в этом случае пространственно прямые, и взаимодействие между ними может приводить к образованию экситонных молекул и конденсации в ЭДЖ.

Методика экспериментов. Структуры с напряженными слоями SiGe выращивались на подложке Si (001) методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Толщины буферного и защитного кремниевых слоев составляли, соответственно, 100 нм и 100–200 нм. Были выращены и исследованы две структуры с толщиной Si_{1-x}Ge_x-слоя $d = 2$ нм (содержание германия $x = 0.09$ и 0.25) и одна – с $d = 4$ нм ($x = 0.09$).

Исследования обычных (одноэлектронных) спектров ФЛ в ближней инфракрасной области спектра проводились при температурах $T = 1.8–60$ К и уровнях возбуждения $P = 0.01–300$ Вт·см⁻². Для стационарного фотовозбуждения структур использовалось излучение гелий-кадмиевого лазера с длиной волны $\lambda = 0.44$ мкм. Спектр рекомбинационного излучения регистрировался с помощью светосильного дифракционного монохроматора и охлаждаемого жидким азотом германиевого pin-фотодиода.

Исследовалась также ФЛ в видимой области спектра, возникающая при так называемых двухэлектронных переходах, то есть при рекомбинации четырех частиц – двух электронов и двух дырок, в результате которой испускаются фотоны с энергией, равной суммарной энергии рекомбинирующих частиц [15, 16]. Эти измерения проводились при $T = 15$ К и уровнях возбуждения $0.3–150$ Вт·см⁻². Для стационарного фотовозбуждения структур использовалось излучение титан-сапфирового лазера ($\lambda = 0.75$ мкм). Рекомбинационное излучение анализировалось дифракционным спектрометром и регистрировалось с помощью охлаждаемой жидким азотом ПЗС-матрицы. Сопоставление одно- и двухэлектронных спектров позволяет сделать более точные заключения о происхождении различных компонент обычного спектра ФЛ, поскольку в двухэлектронных спектрах отсутствуют линии излучения объектов, содержащих менее двух электронно-дырочных пар.

Результаты и обсуждение. На рис.1 показаны спектры ФЛ Si_{1-x}Ge_x-слоя толщиной $d = 2$ нм ($x = 0.09$) при различных уровнях возбуждения и температурах. Приведена наиболее интенсивная, отвечающая испусканию поперечных оптических фоно-

нов, ТО-компонента спектра излучения. При низких уровнях возбуждения и высоких температурах в спектрах видна относительно узкая (полуширина FWHM ≈ 4 мэВ при $T = 15$ К) линия излучения свободных экситонов (FE). При $T < 12$ К и низких плотностях накачки линия люминесценции свободных экситонов при понижении температуры смещается в красную сторону спектра из-за локализации экситонов на неоднородностях состава слоя, ее интенсивность при этом уменьшается, а в спектре появляется линия излучения локализованных экситонов (LE). При $T = 1.8$ К в спектре ФЛ слоя остается лишь линия излучения, обозначенная LE на рис.1а, которая имеет значительную полуширину, равную ≈ 7.5 мэВ. Согласно работе [16], эта линия состоит из трех спектрально неразрешенных компонент: линий излучения локализованных и связанных на примесях экситонов и линии локализованных биэкситонов.

С ростом уровня возбуждения при относительно низких температурах (рис.1а) и при понижении температуры при достаточно высоких уровнях возбуждения (рис.1б) с длинноволновой стороны от экситонной линии FE возникает узкая линия излучения, обозначенная FViE, на низкоэнергетическом крыле которой при дальнейшем увеличении интенсивности накачки и уменьшении температуры появляется широкая полоса люминесценции (EHL). Последняя при высоких уровнях возбуждения и низких температурах доминирует в спектре. Аналогичные изменения при увеличении уровня накачки и понижении температуры претерпевает и бесфонная (NP) компонента излучения SiGe-слоя (на рис.1 не показана), интенсивность которой значительно ниже, чем интенсивность ТО-компоненты. Заметим, что трансформация спектров ФЛ при изменении уровня возбуждения и температуры (рис.1) весьма похожа на наблюдающуюся в одноосно сжатом объемном кремнии [17]. Как будет показано далее, линия FViE является линией излучения свободных экситонных молекул, а линия EHL – ЭДЖ.

Интенсивность линии FViE сверхлинейно (почти квадратично) зависела от интенсивности линии излучения свободных экситонов FE, которая линейно возрастала при увеличении уровня возбуждения. Квадратичная зависимость интенсивности при изменении уровня возбуждения характерна для излучения свободных экситонных молекул. Дополнительным аргументом в пользу биэкситонной интерпретации линии FViE явилось наблюдение в видимой области спектра соответствующей ей линии излучения, связанной с двухэлектронными переходами в экситонных молекулах.

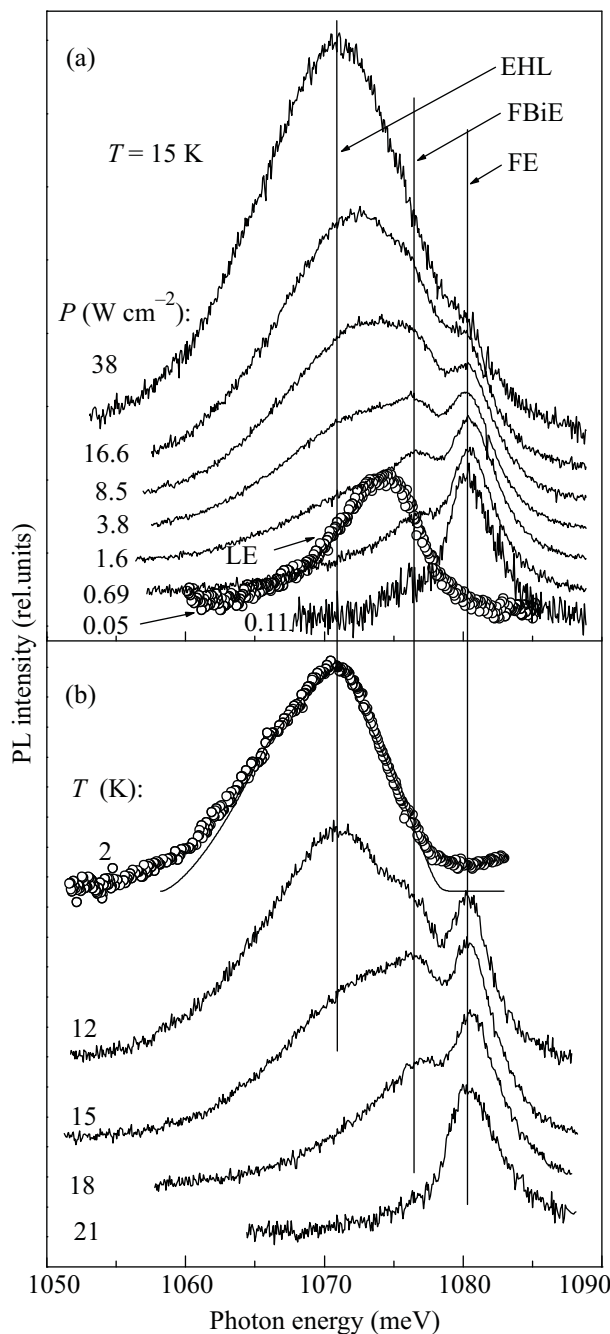


Рис.1. Спектры ФЛ (ТО-компонента) $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -слоя толщиной $d = 2 \text{ nm}$ ($x = 0.09$) в зависимости от уровня возбуждения P (a) и температуры T (b). FE, FBiE и EHL – линии излучения свободных экситонов, биэкситонов и ЭДЖ, соответственно, LE – линия излучения локализованных экситонов. (a) Каждый спектр (за исключением LE) нормирован на интенсивность в максимуме линии FE в данном спектре, $T = 15 \text{ K}$. Спектр LE (изображен кружками) измерен при $T = 1.8 \text{ K}$; (b) $P = 3.8 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$ для $T = 12\text{--}21 \text{ K}$. Верхний спектр: кружки – эксперимент ($T = 2 \text{ K}$, $P = 8.5 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$), сплошная линия – результат теоретической обработки формы линии излучения ЭДЖ

Полоса излучения ЕНЛ (рис.1) обладает всеми свойствами излучения ЭДЖ. Она возникла пороговым образом при увеличении уровня возбуждения (при температурах ниже критической) и при понижении температуры (при достаточно высоких уровнях возбуждения). При $T = 2 \text{ K}$ пороговая для возникновения этой полосы плотность возбуждения составляла $\approx 0.3 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$. Форма полосы излучения ЕНЛ не зависела от интенсивности возбуждения. Так же, как в случае биэкситонов, излучение ЭДЖ, отвечающее двухэлектронным переходам, наблюдалось в видимой области спектра.

При $P \geq 8 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$ и низких температурах интенсивность полосы излучения ЭДЖ существенно превосходит интенсивности экситонной и биэкситонной линий излучения, что упрощает анализ ее формы, который, как известно [3, 4, 17], позволяет найти плотность и энергию связи на пару частиц жидкости (работу выхода экситонов из ЭДЖ). Наилучшее совпадение расчетной формы линии излучения ЭДЖ с экспериментальной (верхний спектр на рис.1b) достигается при использовании при подгонке трехмерной ($\rho_e \sim E^{1/2}$) плотности состояний для электронов и двумерной, не зависящей от энергии E , – для дырок. Энергии Ферми электронов и дырок в ЭДЖ, полученные из обработки формы линии, оказались соответственно равными $E_{Fe} = 13 \text{ мэВ}$ и $E_{Fh} = 7 \text{ мэВ}$, а отвечающие им электронная и дырочная плотности – $n_0 = 4.8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ и $p_0 = 8.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$. При такой плотности квазидвумерные дырки, связанные в ЭДЖ, заселяют лишь состояния наинизшей подзоны размерного квантования в КЯ (подзоны тяжелых дырок, hh), а фермиевская энергия квазитрехмерных электронов превышает высоту потенциального барьера в зоне проводимости (в этой гетероструктуре она равна $\Delta E_c(\Delta_4) \approx 10 \text{ мэВ}$ [12, 14]). Эти электроны заселяют четыре минимума Δ_4 зоны проводимости кремния, расположенные на осях $\langle 100 \rangle$ обратной решетки, параллельных плоскости напряженного SiGe-слоя, и могут туннелировать в слой, дно зоны проводимости которого сформировано четырьмя минимумами энергии Δ_4 той же симметрии. Заметим, что и экситоны в Si/SiGe/Si-гетероструктурах II рода образуются из Δ_4 -электронов и hh-дырок. Величина работы выхода экситонов из ЭДЖ, определенная как разность энергий, отвечающих спектральным положениям линии излучения свободных экситонов (линия FE на рис.1) и высокоэнергетической границы полосы ЭДЖ (спектр, показанный на рис.1b), составляет $\approx 3 \text{ мэВ}$. Отношения дырочной и электронной плотностей $p_0/n_0 \approx 1.8 \text{ nm} < d = 2 \text{ nm}$, то есть меньше толщины SiGe-слоя. По-видимому,

это означает, что электронная плотность в ЭДЖ распределена неравномерно вдоль оси, перпендикулярной плоскости слоя. Следует также отметить, что электронная плотность в ЭДЖ, обнаруженной в квазидвумерных напряженных SiGe-слоях, существенно превышает плотность ЭДЖ в трехмерных напряженных SiGe-слоях [10] и даже в объемном недеформированном кремнии [3–7, 17].

Оценка из экспериментальных данных критической температуры перехода экситонный газ – ЭДЖ дала значения $T_c = 18–20$ К. Линии излучения биекситонов наблюдались вплоть до температур $T = 20–22$ К. При $T > 23$ К с увеличением возбуждения с красной стороны от линий излучения свободных экситонов возникали широкие полосы излучения электронно-дырочной плазмы.

Совершенно иначе, чем описано выше, изменялись при увеличении уровня возбуждения спектры ФЛ двух других Si/Si_{1-x}Ge_x/Si-структур с $d = 4$ нм ($x = 0.09$) и $d = 2$ нм ($x = 0.25$). Спектры излучения этих структур, измеренные при низких температурах (соответственно, $T = 1.8$ и 6 К), то есть в условиях, наиболее благоприятных для образования ЭДЖ, приведены на рис.2. При низ-

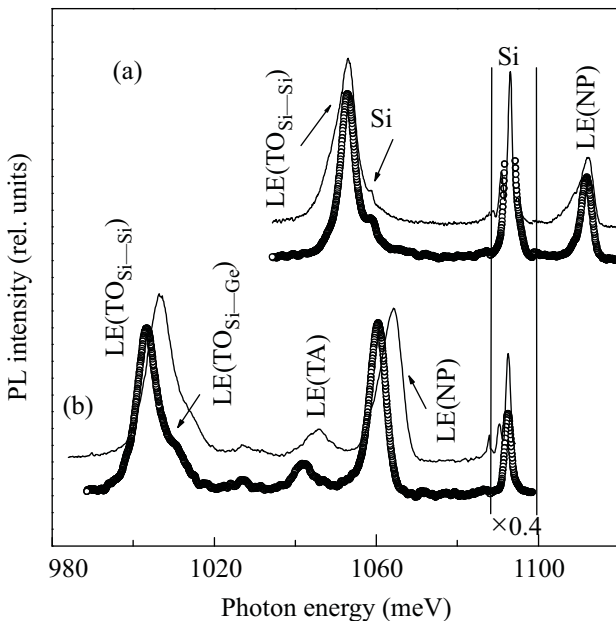


Рис.2. Спектры ФЛ структур с $d = 4$ нм, $x = 0.09$ (а) и $d = 2$ нм, $x = 0.25$ (б) при низком ($P = 0.09$ Вт·см⁻², кружки) и высоком ($P = 17$ Вт·см⁻², сплошные линии) уровнях возбуждения. (а) $T = 1.8$ К; (б) $T = 6$ К. Обозначения линий разъяснены в тексте

ком уровне возбуждения в спектрах ФЛ SiGe-слоев видны бесфононные линии излучения локализован-

ных экситонов LE(NP) и их фононные повторения LE(TA), LE(TO_{Si-Si}), LE(TO_{Si-Ge}), отвечающие рекомбинации с испусканием поперечных акустических (TA) и оптических (TO) фононов. Фононное повторение LE(TO_{Si-Ge}), связанное с Si-Ge колебательной модой решетки твердого раствора, наблюдается лишь в гетероструктуре с значительным содержанием германия в слое (рис.2б). Отметим, что NP- и TO-компоненты спектра ФЛ этой структуры имеют сравнимую интенсивность. По-видимому, здесь бесфононная излучательная рекомбинация электронов и дырок, связанных в непрямые как в импульсном, так и в реальном пространстве экситоны, происходит с передачей квазиимпульса на гетерограницах Si/SiGe, где, в основном, сосредоточены неоднородности состава. Помимо линий излучения SiGe-слоев в спектрах ФЛ структур наблюдаются хорошо известные линии экситонного излучения буферного и защитного слоев кремния, обозначенные как Si.

Как видно на рис.2, трансформация приведенных на нем спектров ФЛ при увеличении уровня возбуждения сводится, в основном, к синему сдвигу экситонных линий SiGe-слоя, который особенно отчетливо проявляется в структуре с большей концентрацией германия. Синий сдвиг связан с искривлением зон, вызываемым кулоновским полем пространственно разделенных электронов и дырок, и обычно считается признаком структур II рода [13]. При высоких уровнях накачки на длинноволновых крыльях экситонных линий SiGe-слоя появляются дополнительные линии (см. спектры, изображенные сплошными линиями на рис.2), по своему поведению отличающиеся от линий излучения свободных биекситонов и ЭДЖ²⁾. Природа этих линий пока до конца не ясна; результаты исследования их свойств будут опубликованы отдельно.

Исследованные гетероструктуры отличаются друг от друга туннельной прозрачностью потенциальных барьеров, препятствующих проникновению неравновесных электронов в SiGe-слой. Различие в глубине квантовых ям для дырок в структурах с большим и малым содержанием германия в данном случае не играет существенной роли. Возможность проникновения частицы сквозь потенциальный барьер можно оценить из соотношения неопределенности: неопределенность в кинетической энергии движущегося в барьере электрона должна превосходить высоту барьера. То есть барьер прозрачен, если

²⁾В аналогичных структурах с $d = 5$ нм, но с меньшим содержанием германия ($x \approx 0.05$), при высоких уровнях возбуждения наблюдаются линии излучения ЭДЖ [18].

$\Delta E_c(\Delta_4) \cdot d^2 < \hbar^2/8m \approx 50 \text{ мэВ} \cdot \text{нм}^2$, где m – эффективная масса Δ_4 -электронов в направлении, перпендикулярном SiGe-слою. Для структуры с $d = 2 \text{ нм}$ ($x = 0.09$) левая часть неравенства равна $40 \text{ мэВ} \cdot \text{нм}^2$, и барьер прозрачен для электронов. Для двух других структур: $d = 2 \text{ нм}$ ($x = 0.25$) и $d = 4 \text{ нм}$ ($x = 0.09$) она равна 110 и $160 \text{ мэВ} \cdot \text{нм}^2$, соответственно, то есть неравенство не выполняется, и неравновесные электроны в этих структурах сосредоточены, в основном, в кремнии вблизи гетерограниц Si/SiGe. Эти выводы согласуются с результатами расчетов распределения электронной плотности поперек слоя в пространственно неярких экситонах в зависимости от высоты и ширины потенциального барьера [14].

Таким образом, в квазидвумерных SiGe-слоях Si/Si_{1-x}Ge_x/Si-гетероструктур II рода свободные экситонные молекулы и ЭДЖ могут образовываться при достаточной туннельной прозрачности потенциального барьера. В этом случае электроны, двигаясь под действием электрического поля дырок, находящихся в КЯ в SiGe-слое, проникают в слой, и электронная плотность оказывается максимальной в его центре, то есть пространственное распределение неравновесных носителей заряда во многом похоже на их распределение в структурах I рода.

Заключение. При низких температурах в широком диапазоне интенсивностей возбуждения исследованы спектры ФЛ гетероструктур Si/Si_{1-x}Ge_x/Si II рода с квазидвумерными ($d < a_x$) напряженными SiGe-слоями. Обнаружено, что в туннельно прозрачных для электронов SiGe-слоях при достаточно высоких уровнях возбуждения образуется ЭДЖ, которая состоит из квазитрехмерных электронов, заселяющих Δ_4 -долины зоны проводимости, и квазидвумерных тяжелых дырок в квантовой яме. Определены основные термодинамические параметры ЭДЖ. Установлено, что в газовой фазе содержатся как экситоны, так и экситонные молекулы.

Авторы признательны Л.В. Келдышу и А.П. Силину за внимание и обсуждение результатов.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 10-02-01003, Про-

грамм фундаментальных исследований РАН и ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России” (госконтракт П546).

1. K. Kheng, R. T. Cox, Y. Merle d’Aubigne et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1752 (1993).
2. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **83**, 178 (2006).
3. T. M. Rice, Solid State Physics **32**, 1 (1977); J. C. Hensel, T. G. Phillips, and G. A. Thomas, Ibid, p.87.
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. L. V. Keldysh and N. N. Sibeldin, Ibid, **16**, Eds. W. Eisenmenger and A. A. Kaplyanskii, 1986, p.455.
6. С. Г. Тиходеев, УФН **145**, 3 (1985).
7. N. N. Sibeldin, in: *Problems of Condensed Matter Physics: Quantum coherence phenomena in electron-hole and coupled matter-light systems*, **139**, Eds. A. L. Ivanov and S. G. Tikhodeev, Oxford University Press, 2008, p.227.
8. N. Pauc, V. Calvo, J. Eymery et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 236802-1 (2004).
9. N. Pauc, V. Calvo, J. Eymery et al., Phys. Rev. B **72**, 205324 (2005).
10. Т. М. Бурбаев, Е. А. Бобрик, В. А. Курбатов и др., Письма в ЖЭТФ **85**, 410 (2007).
11. Т. М. Burbaev, V. S. Bagaev, E. A. Bobrik et al., Thin Solid Films **517**, 55 (2008).
12. M. Rieger and P. Vogl, Phys. Rev. B **48**, 14276 (1993).
13. T. Baier, U. Mantz, K. Thonke et al., Phys. Rev. B **50**, 15191 (1994).
14. C. Penn, F. Schaffler, G. Bauer, and S. Glusch, Phys. Rev. B **59**, 13314 (1999).
15. K. Betzler and R. Conradt, Phys. Rev. Lett. **28**, 1562 (1972).
16. T. W. Steiner, L. C. Lenchyshyn, M. L. W. Thewalt et al., Solid State Commun. **89**, 429 (1994).
17. V. D. Kulakovskii and V. B. Timofeev, in [4] p.95.
18. V. S. Bagaev, V. S. Krivobok, S. N. Nikolaev et al., Phys. Rev. B (to be published).