Письма в ЖЭТФ, том 104, вып. 3, с. 161 – 166

Тонкая структура излучения двумерной электронно-дырочной жидкости в SiGe/Si квантовых ямах

С. Н. Николаев[+1)], *В. С. Кривобок*[+], *В. С. Багаев*[+], *Е. Е. Онищенко*[+], *А. В. Новиков*[*×], *М. В. Шалеев*[*]

[+] *Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

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

[×] *Нижегородский государственный университет им. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 7 июня 2016 г.
После переработки 20 июня 2016 г.

Экспериментально обнаружена тонкая структура спектра излучения квазидвумерной (2D) электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) в мелких SiGe/Si квантовых ямах. Дано объяснение этой структуры на основе представлений о скачках в плотности состояний, возникающих за счет сосуществования в ЭДЖ легких и тяжелых дырок, и о взаимодействии носителей заряда с колебаниями зарядовой плотности в ЭДЖ.

DOI: 10.7868/S0370274X16150042

1. Введение. Сравнительно недавно была продемонстрирована возможность образования квазидвумерной электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) в квантовых ямах (КЯ) SiGe/Si [1–3]. К одной из интересных особенностей ЭДЖ в таких структурах следует отнести возможность одновременной регистрации рекомбинационного излучения как одной (ИК-люминесценция), так и двух (2Eg-люминесценция) электронно-дырочных пар [4]. Несмотря на наличие базовых представлений о свойствах ЭДЖ в SiGe/Si КЯ, не решенным остается ряд вопросов, связанных с нестандартными термодинамическими свойствами [5] и факторами, определяющими форму линии излучения [2, 6].

Спектральная линия излучения конденсированной фазы в различных структурах обычно имеет схожую куполообразную форму с шириной ~ 10 мэВ в ИК и видимой области спектра. Для объяснения такой формы линии ранее прибегали к различным спорным предположениям о свойствах электронных состояний (значительное уширение [2] или трехмерная плотность состояний [6]). В данной работе показано, что наблюдаемые спектры ЭДЖ можно объяснить в рамках модели двумерной вырожденной электроннодырочной плазмы без заметного уширения глубоколежащих состояний.

2. Описание эксперимента. Образцы с КЯ SiGe/Si были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на высокоомных ($\rho > 5$ кОм·см) подложках Si (001). Структуры состояли из буферного слоя Si толщиной 100 нм, квантовой ямы $Si_{1-x}Ge_x$ толщиной 5 нм и покровного слоя Si толщиной 100 нм. Качество образцов и их соответствие номинальным ростовым характеристикам контролировалось рентгеноструктурными измерениями. Измерения фотолюминесценции (ФЛ) проводились в геометрии на отражение с использованием методики, описанной ранее [7].

Основное отличие экспериментов, представленных в данной работе состоит в том, что (I) использовались структуры, выращенные на нелегированных подложках Si, для которых удается подавить накопление заряда в слое SiGe; (II) было примерно на 1.5–2 порядка увеличено соотношение сигнал/шум при записи 2Eg-спектров. Сочетание этих двух факторов позволило не только обнаружить тонкую структуру излучения 2D ЭДЖ, но и проследить ее эволюцию при различных условиях эксперимента.

На рис. 1 приведена кинетика затухания ФЛ образца с КЯ шириной 5 нм и содержанием Ge 4.5 % при импульсном возбуждении, демонстрирующая перестройку линии излучения КЯ с уменьшением плотности электронно-дырочных пар в ней. В отличие от объемного Si в слое твердого раствора SiGe нарушается трансляционная симметрия, что позволяет уверенно наблюдать не только линию излучения ТО-фононного повторения (ТО – “*transversal optical phonon*” – поперечный оптический фонон), но и бесфононную полосу (NP). Набор спектров на рис. 1a иллюстрирует новую особенность в ИК спект-

[1)] e-mail: nikolaev-s@yandex.ru

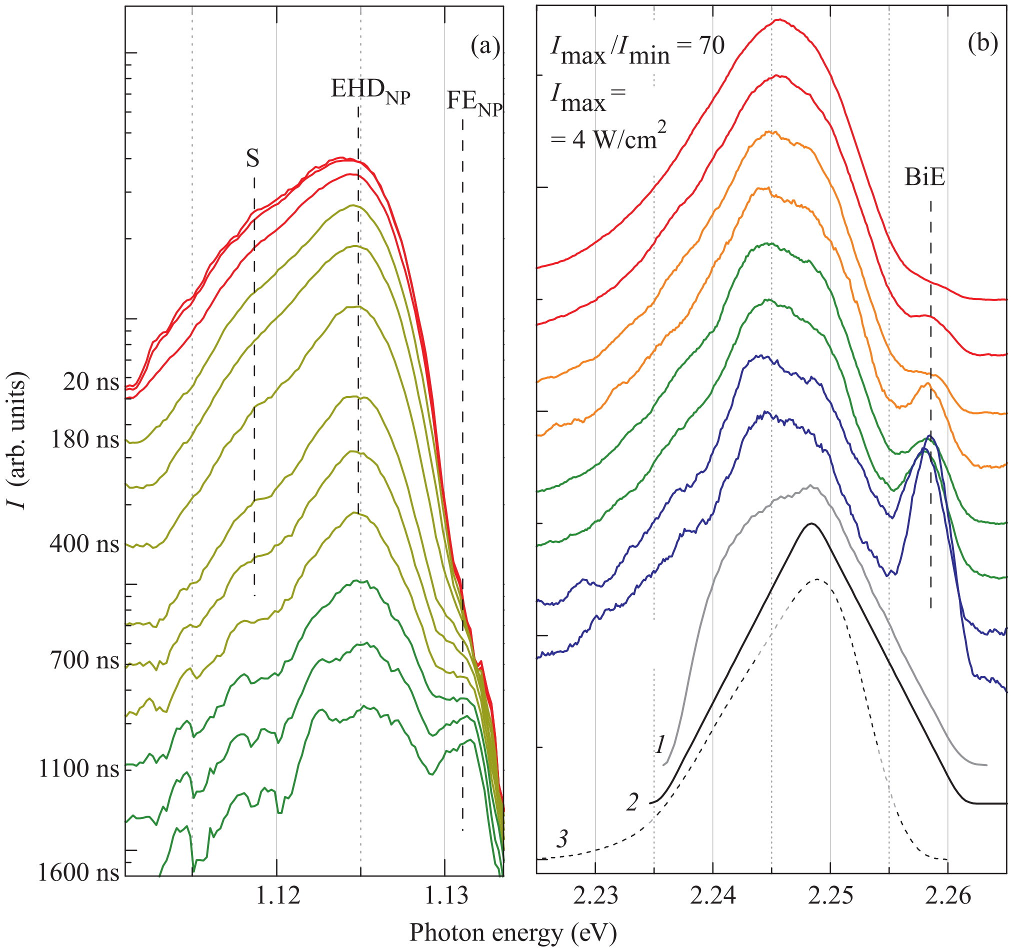

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Временная зависимость спектра ФЛ КЯ $Si_{1-x}Ge_x$ ($x = 4.5\,\%$) после импульсного возбуждения вблизи бесфононной линии. Времена задержки между лазерным импульсом и моментом измерения приведены слева. Интенсивность длинноволновой особенности S спадает синхронно с остальной линией EHD_{NP}. (b) - Спектры ФЛ того же образца в видимой области в зависимости от плотности возбуждения. Линия BiE связана с рекомбинацией свободных биэкситонов в КЯ и далее обсуждаться не будет. Для сравнения ниже приведены модельные спектры излучения ЭДЖ, состоящей из тяжелых дырок и Δ_4 электронов с учетом (кривая *1*) и без учета сохранения квазиимпульса при четырехчастичной рекомбинации (кривая *2*). Кривая *3* является результатом автосвертки линии конденсированной фазы в ИК-диапазоне

рах ЭДЖ в районе 1.118 эВ. При увеличении времени задержки между импульсом лазера и измерением спектра особенность на длинноволновом крыле обострялась, хотя ее интенсивность относительно максимума линии конденсированной фазы менялась слабо. При всех температурах и плотностях возбуждения основной пик ЭДЖ и длинноволновое плечо сосуществовали, что позволяет утверждать, что излучение конденсированной фазы определяет весь контур наблюдаемой линии, а его модификация связана с изменением свойств жидкости. Подтверждением сделанного утверждения является структурирование линии излучения КЯ в видимой области спектра при низких плотностях возбуждения (см. рис. 1). Вместо куполообразной полосы спектр конденсированной фазы начинает напоминать трапецию с четко выраженными линейными участками. Таким образом, в спектрах ИК и видимой ФЛ квазидвумерной ЭДЖ обнаружена тонкая структура, о которой ранее не сообщалось.

3. Модели излучательной рекомбинации в ЭДЖ. Известно, что если пренебречь энергетической зависимостью матричного элемента перехода, то спектральная форма линии ЭДЖ в ИК области для непрямозонных полупроводников может быть представлена в виде свертки функций заполнения электронов и дырок:

$$I_{IR}(\hbar\omega) \propto f_h * f_e. \qquad (1)$$

Отличия в квазиимпульсе фотона и электронно-дырочной пары при ИК-люминесценции компенсирует фонон, поэтому нет принципиальных ограничений на квазиимпульс рекомбинировавших частиц. В случае 2Eg-люминесценции, проходящей без участия фонона необходимо учесть равенство начального квазиимпульса нулю:

$$I_{2\mathrm{Eg}}(\hbar\omega) \propto f_h * f_h * f_e * f_e \cdot \delta(\sum_i \mathbf{k}_i). \qquad (2)$$

Однако закон сохранения квазиимпульса в квантовых ямах SiGe/Si не носит строгого характера. Если им полностью пренебречь, можно получить более простое выражение аналогичное (1):

$$I_{2\mathrm{Eg}}(\hbar\omega) \propto f_h * f_h * f_e * f_e = \qquad (3a)$$

$$= I_{IR} * I_{IR}. \qquad (3b)$$

Применимость формул (2) и (3a) определяется эффективностью процессов люминесценции, протекающих без сохранения квазиимпульса и не может быть определена априори.

Для упрощения дальнейших рассуждений будем считать дисперсию зоны проводимости и валентной зоны квадратичной с эффективными массами, рассчитанными для напряженных слоев SiGe [8, 9], а их функцию заполнения

$$f_{h,e}(\varepsilon) = H(\varepsilon - \varepsilon_0)\frac{1}{\exp\frac{\varepsilon-\mu_{h,e}}{kT} + 1}, \qquad (4)$$

где $\mu_{h,e}$ – химический потенциал дырки (электрона), ε_0 – энергия основного состояния, плотность состояний H – функции Хэвисайда, которую следует заменить на функцию ошибок $\mathrm{erf}(\frac{\varepsilon-\varepsilon_0}{\sqrt{2}\sigma})$ для учета неоднородного уширения.

Ранее сообщалось о совпадении спектра ЭДЖ в КЯ SiGe/Si в видимой области и авто-свертки ее спектра в ИК-области [6]. Для проверки применимости формулы (3b) был проведен расчет авто-свертки ИК-спектра конденсированной фазы (рис. 1, кривая *3*), а также модельных 2Eg-спектров в двух предельных случаях (2) и (3a) с использованием функции распределения (4) (кривые *1* и *2*, соответственно). Как видно из рис.1, кривые *2* и *3* не могут описать экспериментальный спектр 2Eg ФЛ.

Учет сохранения квазиимпульса изменяет форму расчетной кривой, но также не позволяет объяснить наблюдаемую структуру линии. Таким образом, обнаруженные особенности ИК- и 2Eg-спектров ФЛ конденсированной фазы не находят объяснения как в рамках представленных в литературе моделей, так и в предположении о сохранении квазиимпульса.

Далее для простоты будем считать, что четырехчастичная рекомбинация происходит без сохранения квазиимпульса и применима формула (3a). Тогда объяснить линейные участки в спектре излучения ЭДЖ можно, предположив наличие скачков в плотности состояний. Появление таких сингулярностей в плотности состояний возможно в рамках, по крайней мере, двух моделей: I – сосуществования легких и тяжелых дырок в ЭДЖ, II – модель горячей жидкости [10], предполагающая наличие в конденсированной фазе Δ_4 и Δ_2 электронов, находящихся в локальном тепловом равновесии.

Для наглядной демонстрации обоих моделей будем считать однородное, неоднородное уширение и температуру электронной подсистемы равными нулю. Кроме того, т.к. энергетическая ширина распределения электронов достаточно мала (~ 1 мэВ) (ввиду большой эффективной массы и степени вырождения состояний), в первом приближении заменим их δ-функциями. В этом приближении расчетная форма линии излучения ЭДЖ имеет простой аналитический вид, что позволило использовать метод наименьших квадратов для анализа экспериментальных данных. В модели I необходимо учитывать вклад от тяжелых дырок $f_{hh} * f_{hh}$, легких дырок $f_{lh} * f_{lh}$ и перекрестного компонента $f_{hh} * f_{lh}$ (симметрия и правила отбора не накладывают жестких ограничений на такие процессы). Противоположная ситуация наблюдается для модели II: для 2Eg-рекомбинации необходимо участие электронов из противоположных долин, которые оба относятся либо к Δ_4, либо к Δ_2 подзоне. В предложенном выше примитивном подходе компоненты 2Eg-спектра ЭДЖ с участием Δ_4 и Δ_2 электронов выглядят как $f_{hh} * f_{hh}$ и отличаются спектральным положением и интенсивностью. В качестве неизвестных параметров аппроксимации были использованы: положение квазиуровня Ферми дырок, расщепление hh–lh (или Δ_4–Δ_2), а также сечения процессов рекомбинации с участием разных наборов квазичастиц. Как видно из рис. 2, обе модели I и II позволяют качественно описать спектры КЯ SiGe/Si в видимой области и определить положения квазиуровней Ферми всех частиц, а также расщепление легкая-тяжелая дырка (6.2 мэВ) или между долинами электронов Δ_4–Δ_2 (2.75 мэВ). Первая величина получилась несколько ниже предполагавшейся из расчетов для напряженного слоя SiGe (~ 8 мэВ), а вторая – значительно ниже (~ 30 мэВ).

Отметим, что взаимное расположение особых точек на экспериментальных спектрах определяется положением квазиуровня Ферми дырок и расщеплением hh–lh (Δ_4–Δ_2) (см. рис. 2), что позволяет

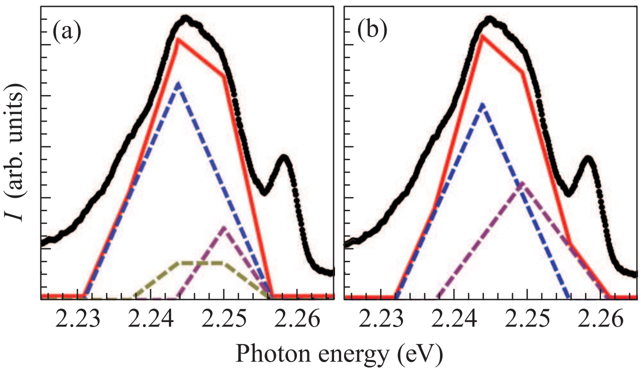

Рис. 2. (Цветной онлайн) 2Eg-спектр ЭДЖ в квантовой яме SiGe/Si и его аппроксимация в предположении о наличии в ЭДЖ легких дырок (a) и Δ_2 электронов (b). Штриховыми линиями обозначены их компоненты, отвечающие различным наборам рекомбинировавших квазичастиц (см. текст статьи)

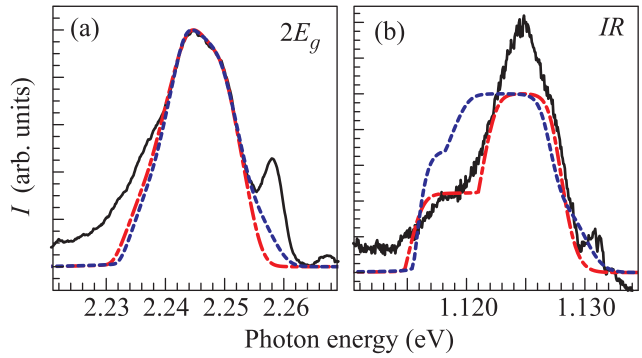

Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальные спектры (сплошная кривая) и расчетная форма линии ЭДЖ в модели сосуществования легких и тяжелых дырок (штрих-пунктир) и горячей жидкости (штрих), полученные с учетом реальной температуры (5 K) по формуле (3a). Спектры в видимой области (a) демонстрируют применимость обоих моделей для аппроксимации эксперимента. Качественное согласие расчета с экспериментом в ИК-диапазоне (b) наблюдается только для первой модели, в том числе плечо в районе 1.118 эВ (особенность S на рис. 1)

оценивать эти величины вообще без какой-либо аппроксимации.

4. Расчет формы линии ЭДЖ в ИК и видимой области спектра. В реальных экспериментах конечная температура и уширения одноэлектронных состояний могут существенно модифицировать спектр. Для определения роли этих эффектов были проведены расчеты формы линии ЭДЖ в видимой области спектра с учетом реального распределения носителей заряда, а также возможных уширений низколежащих состояний [2, 11]. Для наблюдения линейных участков и изломов на спектре ЭДЖ однородное уширение должно быть < 0.1 мэВ (см. рис. 3a) и им фактически можно пренебречь (это опровергает приведенную ранее интерпретацию [2]).

До сих пор мы не делали предпочтения ни одной из моделей, объясняющих необычную форму линии излучения ЭДЖ в видимой области спектра. Для проверки обоих моделей, исходя из известных функций заполнения состояний, был построен ожидаемый спектр в ИК-области (см. рис. 3b), что позволило отмести гипотезу о горячей конденсированной фазе ввиду радикального различия расчетных и экспериментальных спектров. Представление о наличии в ЭДЖ тяжелых и легких дырок обеспечивает качественное согласие с экспериментальными данными (положение плеча и самой линии). Таким образом, было показано, что для квантовых ям SiGe/Si с содержанием Ge 4.5 % ЭДЖ содержит как тяжелые, так и легкие дырки. При этом наиболее резкий спад линии ИК ФЛ конденсированной фазы в области низких энергий, принимаемый за “красную границу”, соответствует основному состоянию легких дырок, что может приводить к ошибке определения энергии перенормировки запрещенной зоны в ЭДЖ.

За рамками обсуждения пока оставался вопрос о “сглаживании” линии конденсированной фазы с ростом плотности возбуждения. Это явление может быть объяснено в предположении о перегреве конденсированной фазы. Для объемных полупроводников процесс остывания горячего Оже-носителя (получившего энергию после рекомбинации e-h пары) был рассмотрен в работе [12]. В работе [12] было показано, что в пределе высоких энергий остывание идет путем испускания фононов, а начиная с ~ 0.3 эВ (для объемного германия) – плазмонов. Плазменные колебания, в свою очередь, взаимодействуя с носителями, производят нагрев капли. При этом доля энергии, идущая на нагрев конденсата определяется временем прохождения капли горячим носителем заряда, т.е. размером капель. В случае двумерной плазмы могут происходить аналогичные процессы, приводящие к нагреву электронной подсистемы, тем более, что для продольных плазменных колебаний должно наблюдаться затухание Ландау.

На рис. 4 приведено сравнение экспериментальных кривых (те же, что на рис. 1), полученных при температуре 5 K, с результатом расчета 2Eg-спектра ЭДЖ при температурах 5 и 10 K. При повышении температуры особенности на расчетном спектре конденсированной фазы сглаживаются, а ее максимум сдвигается в сторону больших энергий, что совпадает с наблюдавшейся в эксперименте трансформацией.

Таким образом, при плотностях возбуждения в единицы Вт/см^2 температура электронной подсисте-

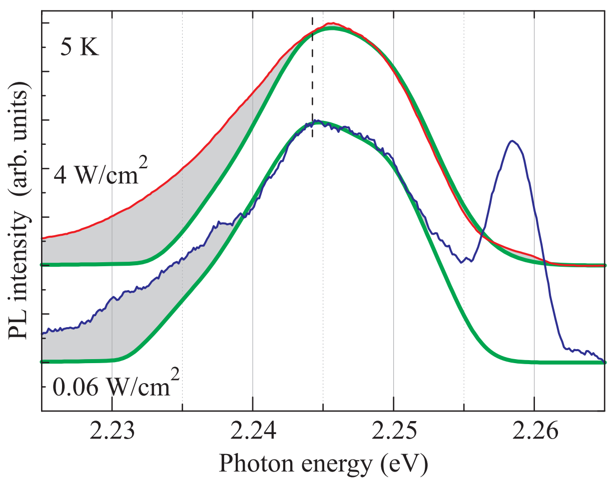

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры ФЛ ЭДЖ в видимой области, измеренные при температуре 5 K (тонкие линии) и рассчитанные для конденсированной фазы, содержащей легкие и тяжелые дырки (толстые линии). Хорошее согласие эксперимента с расчетом наблюдается при плотности и температуре ЭДЖ $1.6 \cdot 10^{12}$ см$^{-2}$ и 5 K для нижней кривой и $1.4 \cdot 10^{12}$ см$^{-2}$ и 10 K — для верхней. Расхождение модели и эксперимента в длинноволновой области выделено серым

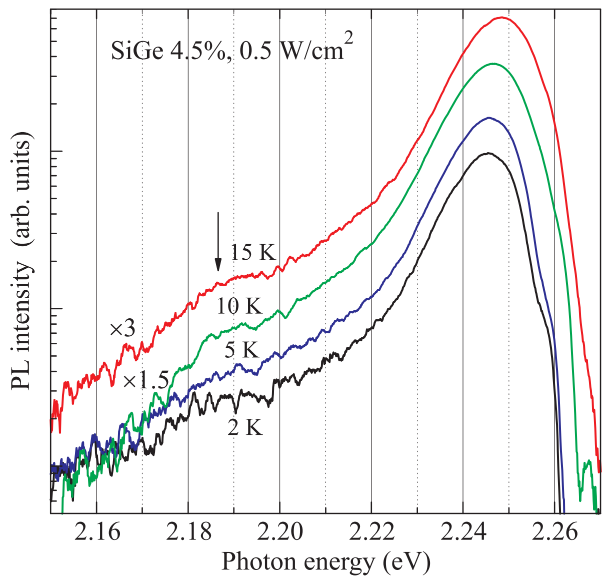

Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектр 2Eg-люминесценции образца с КЯ SiGe/Si в диапазоне температур 2–15 K. Стрелкой отмечена особенность в длинноволновой области, которая объясняется взаимодествием носителей заряда с плазмонами в ЭДЖ

мы повышается на $\sim$5 K по сравнению с решеткой, что искажает форму линии конденсированной фазы, а также приводит к ошибке в измерении ее критической температуры.

Часто синий сдвиг различных спектральных линий при увеличении накачки связывают с наличием неоднородности в системе. На основе формулы (4) были сделаны простые оценки неоднородного уширения, достаточного для наблюдения "сглаживания" и сдвига линии люминесценции. Оценки показали, что разброс σ основного состояния КЯ должен быть не меньше 1.5 мэВ. Данная величина существенно превосходит уширение $\sigma \simeq 0.5$ мэВ, измеренное по сдвигу линии свободного экситона с ростом температуры [2].

5. Длинноволновое излучение ЭДЖ. На рис. 4 видно значительное расхождение между расчетным и экспериментальным спектром ЭДЖ в области низких энергий. Вопрос об уширении линии ЭДЖ в области низких энергий поднимался еще для объемной конденсированной фазы в Si и Ge, однако, однозначного ответа так и не получил.

Было обнаружено, что длинноволновый край линии имеет вид плато, простирающегося примерно на 55–58 мэВ от максимума линии, и слабо зависит от температуры образца (см. рис. 5). Происхождение данной линии нельзя объяснить излучением ЭДЖ с испусканием центрозонного ($E_{O\Gamma} = 64.5$ мэВ) или междолинннного ($E_{IV} = 23, 46$ мэВ) фононов, которые могли бы участвовать в процессе четырехчастичной рекомбинации. Однородное и неоднородное уширение, во-первых, мало, как было показано ранее, а, во-вторых, может описать только монотонно спадающих хвост линии.

Аналогичный вид плато наблюдался экспериментально в плотности состояний двумерного электронного газа в КЯ GaAs [13] и был приписан плазмаронам [14]— смешанному состоянию носителя заряда и плазменных колебаний. Взаимодействие с плазмонами ранее также рассматривалось в качестве одного из механизмов, приводящих к длинноволновому хвосту линии 3D ЭДЖ [15]. Плато на длинноволновом хвосте ЭДЖ наблюдалось в 2Eg-спектрах КЯ различного состава. К сожалению, не удалось обнаружить аналогичное плато на линии излучения электронно-дырочной плазмы, чья природа аналогична ЭДЖ, но плотность определяется интенсивностью возбуждения. Мы связываем это с неоднородным профилем мощности возбуждения в лазерном пятне и, как следствие, концентрацией носителей заряда в плазме.

6. Выводы. Таким образов, экспериментально в ИК- и 2Eg-спектрах фотолюминесценции квазидвумерной ЭДЖ в квантовых ямах SiGe/Si с небольшим (<5 %) содержанием Ge обнаружены тонкая структура, связанная с особенностями комбинированной плотности состояний. Совместный анализ формы линии ЭДЖ в ИК и видимом спектральных диапазонах позволил показать, что коротковолновые особенности определяются наличием в ЭДЖ тяжелых и легких дырок, а длинноволновый сателлит – взаимодействием носителей заряда с плазмонами. Приведенная в статье модель излучения конденсированной фазы позволила определить расщепление легкая-тяжелая дырка (6.2 мэВ), плотность 2D ЭДЖ ($1.6 \cdot 10^{12}$ см$^{-2}$), а также объяснить "сглаживание" линии ЭДЖ при повышенных плотностях возбуждения.

Работа выполнена при финансовой поддержке грантов РНФ 14-22-00273 (разделы 3, 4), РФФИ 14-02-01098 А и 15-02-08540 А и Гранта Президента МК-4504.2015.2.

---

1. Т. М. Бурбаев, М. Н. Гордеев, Д. Н. Лобанов, А. В. Новиков, М. М. Рзаев, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков, В. А. Цветков, Д. В. Шепель, Письма в ЖЭТФ **92**, 341 (2011).
2. V. S. Bagaev, V. S. Krivobok, S. N. Nikolaev, A. V. Novikov, E. E. Onishchenko, and M. L. Skorikov, Phys. Rev. B **82**, 115313 (2010).
3. Т. М. Бурбаев, Е. А. Бобрик, В. А. Курбатов, М. М. Рзаева, Н. Н. Сибельдина, В. А. Цветкова, Ф. Шэффлер, Письма в ЖЭТФ **85**, 410 (2007).
4. T. Steiner, L. Lenchyshyn, M. Thewalt, J.-P. Noël, N. Rowell, and D. Houghton, Sol. State Comm. **89**, 429 (1994).
5. В. С. Багаев, В. С. Кривобок, С. Н. Николаев, Е. Е. Онищенко, М. Л. Скориков, Письма в ЖЭТФ **94**, 63 (2011).
6. T. M. Burbaev, D. S. Kozyrev, N. N. Sibeldin, and M. L. Skorikov, JETP Lett. **98**, 823 (2014).
7. В. С. Багаев, Э. Т. Давлетов, В. С. Кривобок, С. Н. Николаев, А. В. Новиков, Е. Е. Онищенко, А. А. Пручкина, М. Л. Скориков, Письма в ЖЭТФ **100**, 343 (2014).
8. M. M. Rieger and P. Vogl, Phys. Rev. B **48**, 14276 (1993).
9. D. J. Robbins, L. T. Canham, S. J. Barnett, A. D. Pitt, and P. Calcott, J. Appl. Phys. **71**, 1407 (1992).
10. H.-H. Chou, G. K. Wong, and B. J. Feldman, Phys. Rev. Lett. **39**, 959 (1977).
11. T. Stoica and L. Vescan, J. Appl. Phys. **94**, 4400 (2003).
12. J. C. Hensel, Sol. State Comm. **31**, 443 (1979).
13. O. E. Dial, R. C. Ashoori, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. B **85**, 081306 (2012).
14. L. Hedin, B. Lundqvist, and S. Lundqvist, Sol. State Comm. **5**, 237 (1967).
15. W. F. Brinkman and P. A. Lee, Phys. Rev. Lett. **31**, 237 (1973).