

Многоэлектронные кулоновские корреляции в прыжковом транспорте вдоль слоев квантовых точек

А. И. Якимов¹⁾, А. В. Ненашев, А. В. Двуреченский, М. Н. Тимонова⁺

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

⁺ Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 21 июля 2003 г.

Проанализированы экспериментальные данные, относящиеся к прыжковому транспорту дырок в двумерных слоях квантовых точек (КТ) Ge/Si(001) в условиях существования дальнедействующего кулоновского взаимодействия локализованных в КТ носителей заряда, когда температурная зависимость проводимости подчиняется закону Эфроса–Шкловского. Обнаружено значительное отклонение параметров прыжковой проводимости от предсказаний модели одноэлектронных возбуждений в “кулоновских стеклах”. Установлено, что определяющую роль в процессах прыжкового переноса заряда между КТ играют многочастичные кулоновские корреляции перемещений локализованных в КТ дырок, приводящие к существенному снижению кулоновских барьеров для туннелирования носителей заряда.

PACS: 73.20.Mf, 73.50.Pz

Введение. Вопрос о влиянии электрон-электронного взаимодействия на проводимость неупорядоченных систем, будучи всегда актуальным, в последнее время встал особенно остро после недавней бурной дискуссии о существовании перехода металл-диэлектрик (ПМИ) в двумерном случае. Роль кулоновских корреляций должна быть особенно значима на диэлектрической стороне ПМИ, поскольку локализованные электронные состояния мало эффективны в процессах экранирования по сравнению с пространственными состояниями. Системы, в которых носители заряда случайным образом локализованы в пространстве и существует дальнедействующее кулоновское взаимодействие между ними, получили название “кулоновских стекол”. В режиме сильной локализации электронов, когда величина длины локализации ξ много меньше расстояния между локализованными состояниями, перенос заряда осуществляется с помощью туннельных прыжков электронов с одного центра на другой, причем при низких температурах длина прыжка увеличивается с понижением температуры [1]. В этих условиях зависимость проводимости G от температуры T имеет вид

$$G(T) = G_0 \exp[-(T_0/T)^x], \quad (1)$$

где параметр T_0 определяется свойствами материала, показатель степени $x < 1$ – энергетической зависимостью плотности состояний вблизи уровня Ферми $g(E_f)$. Если межэлектронное взаимодействие

в системе несущественно и $g(E_f) = \text{const}$, то $x = 1/3$ (закон Мотта для двумерной системы), $T_0 = 13.8/k_B g(E_f) \xi^2$, где k_B – постоянная Больцмана [2]. Эфрос и Шкловский [3] показали, что взаимодействие локализованных электронов в кулоновских стеклах приводит к выражению

$$G(T) = G_0 \exp[-(T_0/T)^{1/2}], \quad (2)$$

названному впоследствии законом Эфроса–Шкловского. Здесь

$$T_0 = C_2 e^2 / k_B \kappa \xi, \quad (3)$$

C_2 – численный параметр, κ – относительная диэлектрическая проницаемость. При этом величина $k_B T_0$ служит мерой характерного масштаба кулоновского взаимодействия в системе.

Важно отметить, что формула (2) с численной константой $C_2 = 6.2$ для двумерной системы [4] была получена при рассмотрении только одноэлектронных возбуждений, представляющих перенос электрона с одного центра на другой при условии, что все остальные электроны заморожены в своих положениях. Одноэлектронная модель не учитывала возможных многочастичных корреляций перескоков электронов, когда, например, параллельные или последовательные во времени прыжки одних электронов на небольшие расстояния облегчают передвижение других электронов на длинные дистанции, снижая своим кулоновским потенциалом соответствующие энергетические барьеры на пути протекания тока. Поскольку образование такого многоэлектронного полярона

¹⁾ e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

приводит к экранированию кулоновского потенциала на больших длинах прыжка, то характерный масштаб энергии кулоновских корреляций для таких квазичастиц должен быть существенно снижен по сравнению со случаем одноэлектронных возбуждений.

Ряд экспериментов показал, что, действительно, многочастичные эффекты могут заметно сужать кулоновскую щель в спектре состояний электронов в примесной зоне легированных полупроводников в условиях умеренной компенсации [5, 6].

Численное моделирование прыжковой проводимости в двумерном кулоновском стекле было выполнено в работах [7, 8]. Авторы [7] распространили перколяционный подход на пространство многочастичных конфигураций чисел заполнения узлов на сетке сопротивлений Миллера-Абрахамса и показали, что и в случае многочастичных корреляций выполняется закон (2), однако в этом случае $C_2 = 0.6 \pm 0.2$, то есть характерный параметр взаимодействия T_0 на порядок меньше величины, полученной в одноэлектронном приближении. Цыганков и Эфрос [8] применили кинетический метод Монте-Карло для моделирования прыжкового переноса заряда в двумерной системе взаимодействующих электронов, в которой разрешены все последовательные переходы электронов и одновременные в квантовомеханическом смысле прыжки двух электронов. Был сделан вывод о том, что многочастичные корреляции несут существенны и $C_2 = 5.8$. И хотя большинство опытных данных, полученных на легированных полупроводниках, согласуются с последним выводом, такое сильное различие выводов теоретических исследований не могло не стимулировать проведение экспериментальных работ на объектах, в которых доминирующая роль дальнедействующего кулоновского взаимодействия в транспорте заряда хорошо установлена.

Одним из таких объектов являются слои самоорганизующихся квантовых точек (КТ) Ge в Si, образующиеся при гетероэпитаксии упруго напряженных систем. В экспериментах с введенным в гетероструктуры Ge/Si искусственным экраном, параллельном массиву КТ Ge, было продемонстрировано, что межэлектронное взаимодействие полностью отвечает за температурную зависимость прыжковой проводимости вдоль слоя КТ [9]. Обнаруженное в работе [10] отсутствие температурной зависимости предэкспоненциального множителя прыжковой проводимости G_0 (см. выражение (2)), величина которого оказалась кратной кванту кондактанса e^2/h , явилось свидетельством наличия процессов последовательных кулоновских корреляций, определяющих бесфонный характер прыжковой проводимости в

системах с малым беспорядком [11]. Целью нашей работы являлся анализ экспериментальных данных, относящихся к прыжковому транспорту дырок в двумерных слоях КТ Ge/Si(001), с точки зрения различных моделей электронных возбуждений в двумерной неупорядоченной системе.

Формирование гетероструктур Ge/Si с КТ. Гетероструктуры Ge/Si, содержащие массивы КТ Ge, выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Формирование на поверхности Si(001) ансамбля пирамидальных нанокластеров Ge осуществлялось за счет эффекта спонтанной морфологической трансформации упруго напряженного слоя Ge в процессе роста по механизму Странского-Крастанова [12]. Измерения проводимости в планарной геометрии (вдоль слоев КТ Ge/Si) осуществлялись на образцах четырех типов.

Образцы серии #А выращивались на подложках Si с удельным сопротивлением 1000 Ом·см, легированных бором до концентрации $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$. Слой Ge с толщиной 8 монослоев ($\approx 10 \text{ \AA}$) вводился в середину выращенного на подложке 90 нм слоя Si. Средние размеры основания формирующихся нанокластеров Ge в плоскости роста составляли 10 нм, высота ~ 1 нм, слоевая плотность нанокластеров $\sim 4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ (детали приготовления образцов можно найти в [10]).

В образцах последующих серий #В, #С и #D эффективная толщина слоя Ge составляла 10 монослоев. При этом латеральные размеры КТ Ge достигали 15 нм, средняя высота 1.5 нм, слоевая плотность $\sim 3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ [9, 13].

Последовательность и структура первых слоев в образцах серий #В и #С была такая же, как и в #А. В #В слой КТ Ge был размещен внутри слоя Si на расстоянии 40 нм от его поверхности. В образцах #С массив островков Ge был закрыт 10 нм Si, а затем поверхностным слоем 25 нм SiO₂. Наличие слоя окисла позволило изменить относительную диэлектрическую проницаемость среды, а значит, и потенциал дальнедействующего электрон-электронного взаимодействия в образце.

Контролируемое заполнение островков Ge дырками в структурах #А, #В и #С осуществлялось введением в образцы δ -легированного бором слоя Si на расстоянии 5 нм ниже слоя КТ. Поскольку энергия ионизации примесей бора в кремнии составляет всего 45 мэВ, а энергии залегания первых десяти уровней дырок в германиевых пирамидах таких размеров, отсчитанные от потолка валентной зоны Si, 200–400 мэВ [14], то при низких температурах дырки, уходя с примесей, заселяют уровни в КТ. Концентрация бора в различных образцах варьировалась

от $2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ до $2.25 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, что позволяло менять среднее число дырок N_h , приходящихся на одну КТ Ge, в интервале от $N_h = 0.5$ до $N_h = 6.5$. Численное моделирование энергетического спектра дырок и их волновых функций в пирамидальных нанокластерах Ge в Si было выполнено в работе [14]. Основное состояние дырки имеет s -образную симметрию и двукратно вырождено по направлению спина. Первое возбужденное состояние обладает p -образной симметрией со степенью вырождения 4 [14]. Поэтому, например, при $N_h = 6.5$ оказываются заполненными первые две электронные оболочки и частично третья.

Образцы серии #D представляли собой кремниевые полевые транзисторы со структурой металл-окисел-полупроводник (МОП транзисторы) с введенным на расстоянии 40 нм от поверхности Si массивом КТ Ge и сформированные на подложках кремний-на-изоляторе [13]. Заполнение КТ дырками управлялось приложением соответствующего потенциала на алюминиевый затвор. Соответствующая степень заполнения определялась по осцилляциям зависимости тока исток-сток от напряжения на затворе.

Омические контакты формировались напылением Al площадок на поверхность образцов и дальнейшим прогревом структуры при температуре 400°C в атмосфере азота. Во всех случаях измерения тока при различных T проводились на омическом участке вольт-амперных и стоксовых характеристик.

Температурная зависимость прыжковой проводимости. Ранее в работах [9, 10, 13] мы показали, что во всех четырех сериях образцов с хорошей точностью выполняется закон Эфроса–Шкловского (2) с предэкспоненциальным множителем $G_0 \simeq e^2/h$. Для нахождения параметров прыжковой проводимости G_0 , T_0 и x при анализе экспериментальных данных мы использовали методы дифференциального анализа безразмерной энергии активации проводимости $w(T) = \partial \ln G(T) / \partial \ln T$ [15] и нелинейной регрессии [10], дающие наиболее точные результаты по сравнению с методом спрямления зависимости $G(T)$, построенной в различных координатах.

В качестве примера на рис.1 приведены экспериментальные зависимости проводимости в единицах e^2/h от температуры, построенные в координатах $\log G - T^{-1/2}$, для образцов серии #A. Символы – экспериментальные точки, сплошные линии – результат аппроксимации данных эксперимента формулой $G(T) = \gamma T^m \exp[-(T_0/T)^{1/2}]$, где T_0 , γ и m – варьируемые параметры²⁾. Было показано, что

²⁾ В работе [10] приведены также зависимости $G(T)$ для $N_h = 1.5, 2, 2.5, 5.5$ и 6. Однако поскольку при таких числах

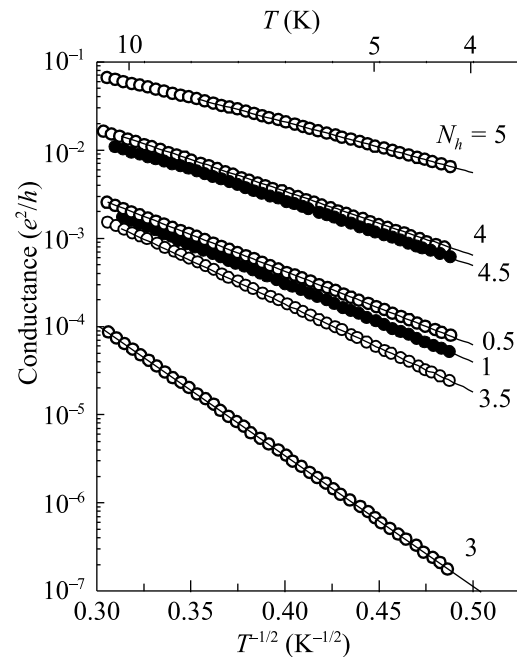


Рис.1. Температурные зависимости проводимости образцов серии #A, построенные в координатах $\log G - T^{-1/2}$. Символы – экспериментальные точки, сплошные линии – результат аппроксимации данных эксперимента формулой $G(T) = \gamma T^m \exp[-(T_0/T)^{1/2}]$. T_0 , γ и m – варьируемые параметры

$m \approx 0$ и найдены величины T_0 [9, 10]. Экспериментальные данные для образцов #C и #D показаны на рис.2.

Для того, чтобы определить на опыте характер кулоновских корреляций, необходимо сравнить экспериментальные величины T_0 с тем, что предсказывают различные модели. Однако поскольку, согласно выражению (3), T_0 зависит от диэлектрической проницаемости и длины локализации, а значит, и от размеров КТ, их плотности и т.д., то удобнее сравнивать значения универсального параметра C_2 , описывающего экспериментально наблюдаемый прыжковый транспорт, с тем, что дают различные модели электронных корреляций в кулоновских стеклах. Параметр C_2 можно найти, воспользовавшись выражением (3), зная длину локализации ξ и T_0 . Обычно ξ определяют из измерений положительного магнетосопротивления в режиме прыжковой проводимости, вызванного сужением волновых функций локализованных носителей в плоскости, перпендикулярной магнитному полю [5]. Однако вполне может оказывать

заполнения $T_0 \sim T$, то эти данные не могут быть использованы для корректного выявления параметров прыжковой проводимости.

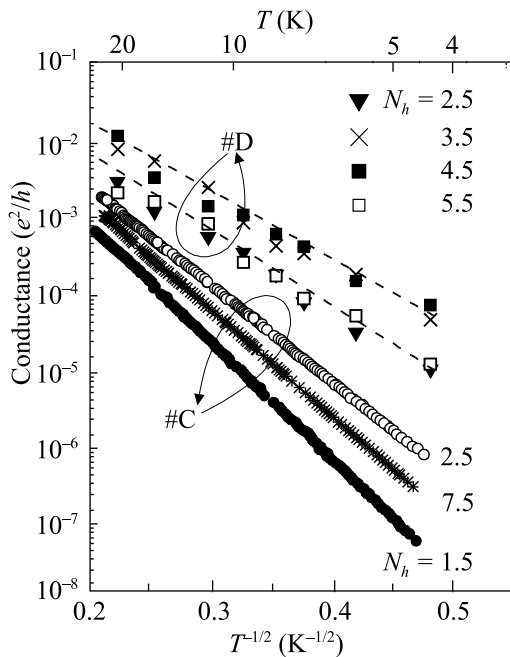


Рис.2. Температурные зависимости проводимости образцов серий #С и #D

ся, что эта процедура не даст правильного результата, поскольку сами выражения для магнетопольной зависимости прыжковой проводимости получены уже в рамках априорных предположений о наличии корреляционных эффектов. В следующем разделе мы приведем результаты моделирования волновых функций дырок в массивах КТ Ge/Si, которые позволили нам определить длины локализации, а затем параметр C_2 .

Вычисление радиуса локализации дырок в массивах КТ Ge/Si. При моделировании длины локализации волновых функций дырок в основном и первом возбужденном состояниях рассматривался массив КТ Ge/Si, расположенных в узлах квадратной решетки размером 15×15 . Учитывались только перекрытия состояний, принадлежащих соседним КТ, так как с увеличением расстояния интегралы перекрытия быстро спадают. Расстояния между центрами соседних точек приняты равными $1/\sqrt{n_{QD}}$, где n_{QD} – двумерная плотность КТ, плюс случайная добавка, имеющая гауссово распределение. Гамильтониан системы записывался в виде

$$\hat{H} = \sum_{i,\alpha} E_{i,\alpha} \hat{a}_{i,\alpha}^+ \hat{a}_{i,\alpha} + \sum_{i,j,\alpha,\beta} J_{i,j,\alpha,\beta} \hat{a}_{j,\beta}^+ \hat{a}_{i,\alpha}, \quad (4)$$

где индекс i нумерует КТ, индекс α – связанные состояния дырки в КТ (учитывались только первые 9 состояний); $\hat{a}_{i,\alpha}^+$ и $\hat{a}_{i,\alpha}$ – операторы рождения и уничтожения дырки в α -м состоянии i -й КТ, $E_{i,\alpha}$ – энергия дырки в этом состоянии, $J_{i,j,\alpha,\beta}$ – интеграл пере-

крытия между α -м состоянием в i -й КТ и β -м состоянием в j -й КТ. Поскольку нанокластеры Ge в реальных структурах обладают дисперсией размеров ($\sim 20\%$ [16]), то каждому узлу приписывалась случайная величина энергии $E_{i,\alpha}$, которая определялась как энергия размерного квантования в КТ с данными размерами и вычислялась в приближении сильной связи с базисом sp^3 с учетом спин-орбитального взаимодействия и деформационных эффектов [14].

Для нахождения интегралов перекрытия использовалась следующая процедура. Вычислялись энергии состояний дырок в модельных структурах, содержащих КТ Ge внутри кремниевой области, имеющей форму параллелепипеда. На границах параллелепипеда вводились периодические граничные условия следующего типа: $\psi(-d/2, y, z) = \psi(d/2, y, z)$ или $\psi(-d/2, y, z) = -\psi(d/2, y, z)$, где d – размер параллелепипеда в направлении x , $\psi(x, y, z)$ – волновая функция. Аналогичные граничные условия записывались в направлениях y и z . Такие структуры подобны бесконечному кристаллу, в узлах которого расположены КТ с периодом d . Значение интеграла перекрытия для расстояния d между центрами КТ находилось в направлении оси x , лежащей в плоскости роста, и определялось как $J(d) = |E_+ - E_-|/4$, где E_+ и E_- – значения энергии дырок, соответствующие приведенным выше граничным условиям. Полученную зависимость $J(d)$ можно представить в виде

$$J(d) = A_\alpha \exp(-B_\alpha d), \quad (5)$$

где коэффициенты A_α и B_α зависят от номера энергетического уровня α . Коэффициент B_α представляет собой величину, обратную радиусу локализации α -го состояния дырки в изолированной КТ. Интегралы перекрытия $J_{i,j,\alpha,\beta}$ между состояниями с различными номерами α, β определялись как среднее геометрическое интегралов между состояниями с номером α и с номером β :

$$J_{i,j,\alpha,\beta} = \sqrt{A_\alpha A_\beta} \exp\left(-\frac{B_\alpha + B_\beta}{2} d_{ij}\right), \quad (6)$$

где d_{ij} – расстояние между i -й и j -й КТ.

Уравнение Шредингера $\hat{H}|\psi\rangle = E|\psi\rangle$ решалось численно с помощью пакета ARPACK в системе MatLab. Вычисления проводились с 5000 случайных реализаций массива КТ. Для каждой реализации определялось состояние, энергия которого наиболее близка к средней по массиву энергии дырок в основном или в возбужденных состояниях. Затем вычислялись вероятности p_i нахождения дырки в каждой КТ. После чего рассматривалось сечение массива

КТ, проходящее в направлении, параллельном сторонам квадратов решетки, через точку с максимальной вероятностью нахождения дырки; в этом сечении значения вероятностей p_i аппроксимировались функцией вида $p_i = a \exp(-2bd_i)$, где d_i – расстояние между i -й КТ и точкой с максимальной вероятностью нахождения дырки. Радиус локализации ξ находился как величина, обратная параметру b , усредненному по всем реализациям массива КТ. Были получены следующие результаты: для образцов серии #А $\xi = 2.41$ нм для основного состояния дырки, 2.78 нм для первого возбужденного; для образцов серий #В, #С и #D $\xi = 2.06$ нм для основного состояния, 2.23 нм для первого возбужденного и 2.30 нм для второго возбужденного.

Нахождение параметра C_2 . Величина численно параметра C_2 определялась с помощью выражения (3). Были взяты экспериментальные значения T_0 и расчетные значения ξ . Поскольку в образцах #А, #В и #D слой КТ Ge погружен в Si, то для них диэлектрическая проницаемость $\kappa \equiv \kappa_{Si} = 12$. Для образца #С $\kappa = 9$ [9], так как вблизи КТ находится еще и слой SiO_2 , уменьшающий эффективную диэлектрическую проницаемость. Результаты приведены на рис.3.

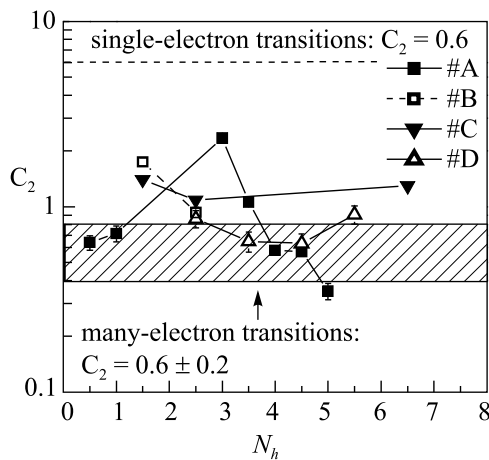


Рис.3. Значения параметра C_2 в образцах различных серий и с различным заполнением квантовых точек дырками (символы). Величина $C_2 = 6.2$, полученная в рамках одноэлектронной модели [4], показана штриховой линией. Заштрихованная область соответствует диапазону значений $C_2 = 0.6 \pm 0.2$, описывающих многочастичные возбуждения в кулоновских стеклах [8]. Средняя по всем образцам экспериментальная величина C_2 равна 0.98 ± 0.47

Значение C_2 , полученное в экспериментах на различных образцах (усреднение по образцам дает $C_2 = 0.98 \pm 0.47$), оказалось много меньше "одноэлектронной" величины. Это означает, что процессы прыжкового переноса заряда в двумерных массивах КТ Ge/Si в значительной степени определяются многоэлектронными кулоновскими корреляциями.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 03-02-16526), программы Президента Российской Федерации по поддержке молодых ученых – докторов наук (грант # МД-28-2003-02) и программы "Университеты России" (грант # УР.01.01.019).

1. N. Mott, J. Non-Cryst. Solids **1**, 1 (1968).
2. Б. И. Шкловский, А. Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, М.: Наука, 1979.
3. A. L. Efros and B. I. Shklovskii, J. Phys. **C8**, L49 (1975).
4. Нгуен Ван Лиен, ФТП **18**, 335 (1984).
5. А. Г. Забродский, УФН **168**, 804 (1998); A. G. Zabrodskii, A. G. Andreev, and S. V. Egorov, Phys. Stat. Sol. (b) **205**, 61 (1998).
6. M. Lee and J. G. Massey, Phys. Stat. Sol. (b) **205**, 25 (1998).
7. A. Pérez-Garrido, M. Ortuno, E. Cuevas, and J. Ruiz, Phys. Rev. **B55**, R8630 (1997).
8. D. N. Tsigankov and A. L. Efros, Phys. Rev. Lett. **88**, 176602 (2002).
9. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, V. V. Kirienko et al., Phys. Rev. **B61**, 10 868 (2000).
10. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, А. И. Никифоров, А. А. Блошкин, Письма в ЖЭТФ **77**, 445 (2003).
11. V. I. Kozub, S. D. Baranovskii, and I. S. Shlimak, Solid State Commun. **113**, 587 (2000).
12. О. Р. Пчеляков, Yu. B. Bolhovityanov, A. V. Dvurechenskii et al., Thin Solid Films **367**, 75 (2000).
13. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, V. V. Kirienko et al., J. Phys.: Condens. Matter **11**, 9715 (1999).
14. A. V. Dvurechenskii, A. V. Nenashev, and A. I. Yakimov, Nanotechnology **13**, 75 (2002).
15. А. Г. Забродский, К. Н. Зиновьева, ЖЭТФ **86**, 727 (1984).
16. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, Yu. Yu. Proskuryakov et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 1413 (1999).