

ДИНАМИКА ЭКСИТОННЫХ СОСТОЯНИЙ В GaAs/AlGaAs КВАНТОВЫХ ЯМАХ

К.Л.Литвиненко¹⁾, А.Горшунов, Й.М.Хвам*²⁾, В.Г.Лысенко

Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

*Mikroelektronik Centret DTU
DK-2800 Lyngby, Denmark

Поступила в редакцию 11 июня 1997 г.

Экспериментально исследовано влияние фотовозбужденных носителей на динамику спектров поглощения $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ многослойных квантовых ям. Получено, что вплоть до плотностей квазичастиц 10^{11} см^{-2} насыщение экситонного поглощения одновременно вызывается уменьшением силы осциллятора и уширением экситонных линий. Показано, что при резонансном фемтосекундном лазерном возбуждении уменьшение силы осциллятора вызвано влиянием свободных электрон-дырочных пар, тогда как уширение и сдвиг энергетического положения экситонных линий определяется экситон-экситонным взаимодействием. Из экспоненциального уменьшения изменения силы осциллятора, а также ширины и энергетического положения экситонных линий определены время жизни свободных электрон-дырочных пар $\approx 65 \text{ пс}$ и экситонов $\approx 410 \text{ пс}$.

PACS: 42.50.Md

Насыщение экситонного резонанса широко изучалось на протяжении последних 10 лет. В первое время, когда еще не были достаточно хорошо разработаны технологии роста многослойных квантовых ям (МКЯ), в исследованиях использовались образцы, имеющие большое неоднородное уширение экситонных линий. Так как плотность фотовозбужденных носителей незначительно влияет на неоднородное уширение, в первых работах [2, 3] изменение ширины экситонных линий с увеличением плотности квазичастиц зарегистрировано не было и насыщение экситонного поглощения объяснялось исключительно уменьшением силы осциллятора f . Основываясь на этих результатах, авторы работ [2, 3] сделали заключение, что при комнатной температуре экситоны как минимум в два раза эффективнее влияют на уменьшение f , чем термализовавшиеся свободные носители. Однако в теоретической работе Schmitt-Rink и др. [4] предсказывали совершенно противоположную ситуацию, а именно, что в квазидвухмерных средах наиболее эффективное влияние на величину f должна оказывать "холодная" электрон-дырочная плазма.

Wake и др. [5] обнаружили, что в высококачественных квантовых ямах с узкой шириной линий экситонного поглощения уширение может являться единственной причиной насыщения экситонного поглощения вплоть до плотностей фотовозбужденных носителей 10^{11} см^{-2} . Исследования времени фазовой релаксации в объемном GaAs [6] и GaAs квантовых ямах [7] при помощи метода четырехволнового смешивания подтверждали доминирующую роль уширения экситонных линий. Тем не менее в последних работах [8] было показано, что изменение f наблюдается уже при низких плотностях фотовозбужден-

¹⁾ e-mail: kostja@ipmt-hpm.ac.ru

²⁾ J.M.Hvam.

ных носителей и, что эффективность влияния f на экситонное поглощение увеличивается с увеличением плотности квазичастиц.

Для того, чтобы выяснить, какую же роль играют различные экситонные параметры в изменении экситонного поглощения, а также определить эффективность влияния свободных и связанных квазичастиц на эти параметры, мы экспериментально исследовали динамику изменения спектров экситонного поглощения в GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As МКЯ при помощи метода, использующего накачивающий и тестирующий лучи [8].

Исследованная МКЯ была выращена методом молекулярно-лучевой эпитаксии и состояла из 20 периодов слоев GaAs шириной 80 Å и слоев AlGaAs шириной 100 Å. В течение всех экспериментов образец был помещен в оптический гелиевый криостат и его температура поддерживалась равной около 5 К. В качестве источника лазерного излучения использовался титан-сапфировый перестраиваемый лазер, длительность импульсов которого составляет 120 фс, а частота повторений – 76 МГц.

Типичные спектры поглощения, исследуемого нами образца, представлены на рис.1 для различных времен задержки тестирующего луча. Начальная плотность экситонов при этом составляла примерно $8.6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Спектральное положение возбуждающего лазерного излучения показано на рис.1 сплошной тонкой линией. В спектрах поглощения хорошо видны линии тяжелых (1.579 эВ) и легких экситонов (1.595 эВ). В данной работе мы рассмотрим поведение тяжелых экситонов.

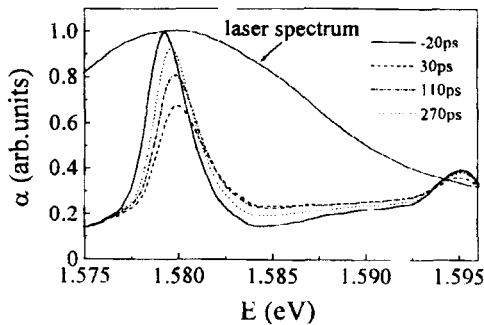


Рис.1. Изменение формы спектра экситонного поглощения в зависимости от времени задержки. Сплошной тонкой линией изображен спектр возбуждающего лазерного излучения

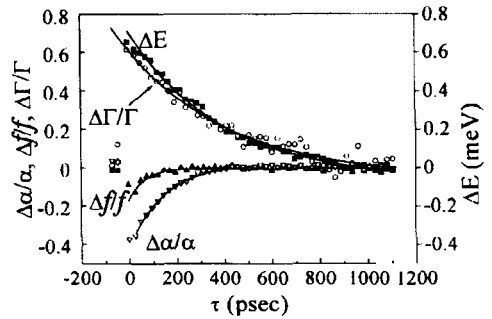


Рис.2. Зависимость относительного изменения силы осциллятора, максимума коэффициента поглощения, уширения и энергетического сдвига линии экситонного поглощения от времени задержки

Для обработки экспериментальных результатов мы использовали метод анализа моментов [9]. Применение этого метода не требует знания точной формы спектра поглощения и заключается в интегральном определении всех экситонных параметров. Если предположить, что экситонное поглощение описывается неким произвольным симметричным статистическим распределением $\alpha(\hbar\omega)$, тогда f может быть выражена при помощи нулевого момента этого распределения:

$$f \sim \int \alpha(\hbar\omega) d\omega. \quad (1)$$

Спектральное положение экситонного резонанса вычисляется как нормированный первый момент распределения $\alpha(\hbar\omega)$:

$$E_{1s} = \int \hbar\omega\alpha(\hbar\omega)d\omega/f, \quad (2)$$

и ширина экситонного резонанса описывается как нормированный второй центрированный момент:

$$\Gamma^2 = \int (\hbar\omega - \hbar\omega_{1s})^2\alpha(\hbar\omega)d\omega/f. \quad (3)$$

Теперь для того, чтобы исследовать динамику изменения всех экситонных параметров, эти моменты нужно вычислить для каждого времени задержки τ и сравнить с соответствующими значениями этих моментов для отрицательных τ . Результаты вычислений, которые были выполнены для данных, изображенных на рис.1, представлены на рис.2. Из рис.2 видно, что насыщение экситонного поглощения одновременно вызвано изменением f и уширением экситонной линии. Эти параметры имеют различное поведение во времени и для того, чтобы понять, какие механизмы взаимодействия влияют на f , уширение и сдвиг экситонной линии, мы дополнительно исследовали изменения каждого экситонного параметра в зависимости от плотности частиц для фиксированного времени задержки $\tau \approx 20$ пс. Такое время было выбрано потому, что по его истечении должны закончиться все релаксационные процессы как свободных, так и связанных частиц.

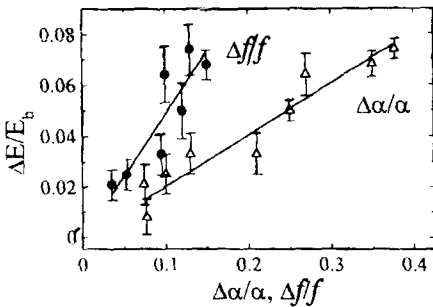


Рис.3. Зависимость энергетического сдвига экситонной линии в единицах энергии связи от относительного изменения силы осциллятора ($\Delta f/f$) и от относительного изменения максимума коэффициента поглощения ($\Delta\alpha/\alpha$) для фиксированного времени задержки ($\tau \approx 20$ пс) и разных плотностей электрон-дырочных пар

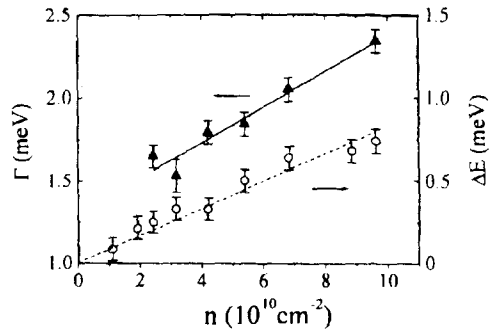


Рис.4. Зависимость ширины линии экситонного поглощения и энергетического сдвига максимума поглощения от плотности электрон-дырочных пар для постоянного времени задержки $\tau \approx 20$ пс

На рис.3 представлены полученные нами зависимости относительного изменения силы осциллятора ($\Delta f/f$) и максимума коэффициента поглощения ($\Delta\alpha/\alpha$) от нормированного на энергию связи сдвига экситонной линии ($\Delta E/E_b$). Каждой точке этих зависимостей соответствуют одинаковые значения $\tau \approx 20$ пс и различные значения плотности фотовозбужденных частиц. Для описания этих результатов мы воспользовались формулами [4]:

$$\delta E/E_b = C^{(f)}\delta f/f_{1s}, \quad (4)$$

$$\delta E/E_b = C^{(\alpha)} \delta \alpha / \alpha, \quad (5)$$

где E_b , f_1 , и α – экспериментальные значения энергии связи, силы осциллятора и максимума поглощения невозбужденного экситонного состояния; $C^{(f)}$, $C^{(\alpha)}$ – коэффициенты пропорциональности. Из рис.3 мы получили, что $C^{(\alpha)} = 0.20 \pm 0.02$ и $C^{(f)} = 0.49 \pm 0.06$. Значение $C^{(\alpha)}$ очень хорошо согласуется с ранее полученными результатами [10], однако значительно отличается от величины $C^{(f)}$. Это подтверждает ошибочность использованного в [10] предположения, что насыщение экситонного поглощения определяется исключительно уменьшением f . Значение $C^{(f)}$ измерено нами экспериментально впервые и поэтому его можно сравнить только с результатами теоретических вычислений. Используя результаты работы [4], для реальной квантовой ямы получаем, что в случае влияния холодных экситонов коэффициент пропорциональности $C^{(f)}$ равен:

$$C_{exc}^{(f)} = 0.45 E_b^{(2D)} / E_b, \quad (6)$$

а в случае влияния холодной плазмы:

$$C_{pl}^{(f)} = 0.22 E_b^{(2D)} / E_b, \quad (7)$$

где $E_b^{(2D)}$ – энергия связи идеального двумерного экситона. Следует упомянуть, что для вычисления зависимости величины голубого сдвига от плотности квазичастиц, которая использовалась нами для получения выражений (6) и (7), авторы работы [4] полностью игнорировали влияние электрон-дырочной плазмы. Вследствие достаточно широкого спектра лазерного излучения свободные носители заряда рождаются в наших экспериментальных условиях. Однако они лишь незначительно влияют на энергетическое положение экситонной линии. Это влияние выражается в небольшом отступлении временной зависимости голубого сдвига от экспоненты для малых τ (см. рис.2) и приводит к погрешности в определении ΔE всего в несколько процентов. Подставляя в (6) и (7) значение $E_b \approx 10$ мэВ, получаем для нашей МКЯ $C_{exc}^{(f)} = 0.76$ и $C_{pl}^{(f)} = 0.37$. Сравнивая эти значения с экспериментальной величиной $C^{(f)} \approx 0.49$ легко заключить, что несмотря на незначительную плотность свободных электрон-дырочных пар, именно эти частицы оказывают решающее воздействие на уменьшение f экситонного перехода. Этот результат подтверждает предсказание Schmitt-Rink о том, что эффективность воздействия свободных носителей на f значительно выше, чем эффективность влияния экситонов [4].

Как видно из рис.2 изменение f наблюдается в течение первых 120 пс, тогда как уширение и сдвиг экситонной линии, причиной которых, как будет показано ниже, является экситон-экситонное взаимодействие, продолжается еще в течение нескольких сотен пикосекунд. Такое быстро возвращение f к своей первоначальной величине вызвано исчезновением свободных носителей из системы взаимодействующих частиц. Используя экспоненциальную зависимость для описания поведения f , мы оказались в состоянии непосредственно измерить время жизни свободных электрон-дырочных пар. Оказалось, что это время практически не изменяется вплоть до плотностей электрон-дырочных пар 10^{11} см⁻² и равняется $T_{1,eh} = 65 \pm 8$ пс.

На рис.4 треугольниками представлено уширение экситонной линии как функции плотности частиц при фиксированном времени задержки ($\tau \approx 20$ пс).

Как видно из рисунка, мы получили ярко выраженную линейную зависимость. Это свидетельствует о том, что причиной появления уширения является экситон-экситонное взаимодействие. Влияние свободных электрон-дырочных пар привело бы к корневидной зависимости [11]. Для описания поведения ширины экситонной линии воспользуемся следующей формулой:

$$\Gamma_x(n) = \Gamma_x(0) + \gamma E_b a_b^2 n_x, \quad (8)$$

где a_b – радиус Бора экситона в использованной нами МКЯ, n_x – плотность двухмерного экситонного газа, γ – коэффициент пропорциональности. Для определения a_b мы воспользуемся соотношением, полученным при помощи вычислений, основанных на описании квантовых ям как сред с дробной размерностью [12]:

$$E_{1S}^{(\alpha)} a_b^{(\alpha)} = \text{const}, \quad (9)$$

где $E_{1S}^{(\alpha)}$ и $a_b^{(\alpha)}$ – значения энергии связи и радиуса Бора экситона в среде с размерностью α . Справедливость соотношения (9) подтверждается также и вариационным исчислением [13]. Для нашей МКЯ оказалось, что $E_{1S}^{(\alpha)} = E_b \approx 10$ мэВ ($\alpha \approx 2.3$) и, следовательно, $a_b^{(\alpha)} \approx 59$ Å. Подставляя $a_b^{(\alpha)}$ вместо a_b в (8) и приближая экспериментальные результаты, получаем, что для наших условий возбуждения $\gamma = 3.1 \pm 0.4$ и $\Gamma(0) = 1.30 \pm 0.08$. Теперь сравним это значение с результатом экспериментальной работы Schultheis и др. [14], в которой авторы определили зависимость уширения экситонного резонанса от плотности частиц в эксперименте четырехволнового смешивания с предварительным ($\tau \approx -20$ пс) возбуждением в образце как свободных электрон-дырочных пар, так и экситонных состояний. Используя соотношение (9), для случая экситон-экситонного рассеяния из [14] имеем $\gamma = 2.8 \pm 0.56$, а для рассеяния на свободных носителях $\gamma = 21.8 \pm 3.7$. Полученное нами значение γ однозначно подтверждает предположение о том, что в случае резонансного возбуждения уширение экситонных линий определяется экситон-экситонным взаимодействием.

Сравним теперь экспериментальную эффективность рассеяния γ , с расчетами, выполненными Manzke и др. [15]. Они получили, что для идеальной двухмерной квантовой ямы экситон-экситонное рассеяние описывается параметром $\gamma^{(2D)} = 0.41$, а для идеального объемного полупроводника – $\gamma^{(3D)} = 56.6$. Полученное нами значение $\gamma \approx 3.1$ находится как раз между $\gamma^{(2D)}$ и $\gamma^{(3D)}$, что свидетельствует о том, что мы имеем дело с промежуточным квазидвухмерным случаем.

Зависимость сдвига энергетического положения экситонной линии ΔE от плотности фотовозбужденных носителей ($\tau \approx 20$ пс) представлено на рис.4. Как и ожидалось для случая экситон-экситонного взаимодействия, наблюдается ярко выраженная линейная зависимость. Коэффициент пропорциональности между ΔE и n оказался равным $C = 0.083$, тогда как для идеальной двухмерной квантовой ямы он должен равняться $C = 0.24$ [4]. По нашему мнению, это небольшое различие связано с взаимодействием экситонов из соседних квантовых ям, которое приближает последние к трехмерному пределу и, следовательно, уменьшает величину голубого сдвига. Из линейной зависимости ΔE от плотности квазичастиц следует, что характерное время экспоненциального уменьшения ΔE должно равняться времени жизни экситонных состояний

$T_{1,exc}$. Кроме того с таким же характерным временем $T_{1,exc}$ (см. рис.2) экспоненциально уменьшается и уширение экситонной линии. Таким образом, мы получили, что время жизни экситонных состояний составляет $T_{1,exc} = 410 \pm 14$ пс и сохраняется постоянным вплоть до плотностей 10^{11} см^{-2} . Постоянство $T_{1,exc}$ говорит о том, что диапазон изменения плотности экситонов, использовавшийся в нашем эксперименте, оказался значительно меньше плотности моттовского перехода, что оправдывает использование предела низких плотностей для описания экспериментальных результатов.

В данной работе выделен одновременный вклад изменения силы осциллятора и уширения экситонных линий в насыщение экситонного поглощения и показано, что при резонансном фемтосекундном лазерном возбуждении, несмотря на незначительную плотность свободных носителей, сила осциллятора изменяется, главным образом, под влиянием свободных электрон-дырочных пар, в то время как уширение и энергетический сдвиг экситонных линий вызываются экситон-экситонным взаимодействием. Это говорит о том, что при низких температурах эффективность воздействия свободных носителей на силу осциллятора значительно выше, чем эффективность влияния экситонов. Из изменения во времени значений экситонных параметров определены времена жизни свободных электрон-дырочных пар $T_{1,eh} = 65 \pm 8$ пс и экситонов $T_{1,exc} = 410 \pm 14$ пс.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 95-02-05046 и 97-02-16833), INTAS (грант 94-0324) и INTAS-RFBR (грант 95-0576).

-
1. А.Горшунов, В.И.Гринеv, К.Л.Литвиненко и др., ЖЭТФ **109**, 665 (1996).
 2. N.Peyghambarian and H.M.Gibbs, Phys. Rev. Lett. **53**, 2433 (1984).
 3. W.H.Koch, R.L.Fork, M.C.Downer et al., Phys. Rev. Lett. **54**, 1306 (1985).
 4. S.Schmitt-Rink, D.S.Chemla, D.A.B.Miller et al., Phys. Rev. B **32**, 6601 (1985).
 5. D.R.Wake, H.W.Yoon, J.P.Wolfe et al., Phys. Rev. B **46**, 13452 (1992).
 6. L.Schultheis, J.Kuhl, A.Honold et al., Phys. Rev. Lett. **57**, 1635 (1986).
 7. A.Honold, L.Schultheis, J.Kuhl, and C.W.Tu, Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989).
 8. S.Hunsche, K.Leo, H.Kurz, and K.Kohler, Phys. Rev. B **49**, 16565 (1994). В.Григорьев, В.И.Гринеv, К.Л.Литвиненко и др., ФТТ **38**, 184 (1996).
 9. Г.Корн, Т.Корн, Справ. по математике, М.: Наука, 1970.
 10. K.-H.Schlaad, Ch.Weber, J.Cunningham et al., Phys. Rev. B **43**, 4268 (1991).
 11. J.-Y.Bigot, M.T.Portella, R.W.Schroenlein et al., Phys. Rev. Lett. **67**, 636 (1991).
 12. P.Lefebvre, P.Christol, and H.Mathieu, Phys. Rev. B **48**, 17308 (1993).
 13. Y.Shinozuka and M.Matsuura, Phys. Rev. B **28**, 4878 (1983); **29**, 3717 (1984).
 14. A.Honold, L.Schultheis, J.Kuhl, and C.W.Tu, Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989).
 15. G.Manzke, K.Heneberger, and V.May, Phys. Stat. Sol. (b) **139**, 233 (1987).