

ОБУСЛОВЛЕННЫЙ ФЛУКТУАЦИЯМИ ПАРАМЕТРОВ ЭКВИДИСТАНТНЫЙ СПЕКТР ЛОКАЛИЗОВАННЫХ СОСТОЯНИЙ В КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫХ СТРУКТУРАХ

Ю.А.Алещенко¹⁾, В.В.Капаев, Ю.В.Капаев, Н.Н.Мельник

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН

117924 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 января 1996 г.

В спектрах микрофотолюминесценции сверхрешеток GaAs/Al_xGa_{1-x}As с тонкими барьерными слоями зарегистрированы узкие эквидистантные пики. Разработан приближенный метод расчета электронного спектра квантовых точек произвольной формы, состоящий в сведении трехмерной задачи к одномерной. На основе этого метода показано, что наблюдаемые пики могут быть следствием формирования в структурах с тонкими барьерами электронных состояний нового типа, обусловленных перекрытием флуктуаций толщин соседних ям. Эквидистантный спектр новых состояний объясняется близкой к квадратичной зависимостью поперечника областей перекрытия от координаты в плоскости слоев.

PACS: 71.50.+t, 73.20.Dx, 78.55.Cr

Многочисленные исследования свойств квантово-размерных структур показывают, что из-за дефектов роста на гетерограницах даже лучшие образцы характеризуются флуктуациями толщин квантовых ям по плоскости пластины на один-два монослоя. Эти флуктуации наблюдаются как в атомном масштабе, так и на макроскопических расстояниях, и особенно существенны для структур с узкими квантовыми ямами, где приводят к значительным изменениям потенциала в поперечном (относительно оси роста) направлении. В этой ситуации представляется оправданным описание квантово-размерных структур как неупорядоченной совокупности квантовых точек произвольных размеров, основы которого были заложены в работе [1]. Справедливость такого подхода была экспериментально подтверждена в работах [2-5], в которых наблюдались узкие (с шириной на полувысоте в доли мэВ) линии рекомбинации экситонов квантовых ям, локализованных на флуктуациях границ раздела. Малая ширина линий отражала свойственную квантовым точкам плотность состояний типа δ -функции.

В данной работе представлены результаты исследований методом фотолюминесценции с пространственным разрешением до ~ 1 мкм локализованных экситонных состояний в структурах многократных квантовых ям GaAs/Al_xGa_{1-x}As. Структуры из 40 периодов квантовых ям толщиной 3 нм и барьерных слоев с номинальным составом $x = 0,35$ и толщиной d_b для различных образцов 20 и 2 нм выращивались на подложках (100)GaAs методом молекулярно-лучевой эпитаксии с прерыванием роста на 30 с на гетерограницах раздела. Спектры фотолюминесценции регистрировались с помощью спектрометра Ramalog U1000 и охлаждаемого ФЭУ в режиме счета фотонов. Возбуждающее излучение He-Ne-лазера с длиной волны 632,8 нм фокусировалось на образце в пятно диаметром w до 1 мкм при использовании микроскопической приставки.

¹⁾e-mail: yuriale@sci.fian.msk.su

Измерения проводились при температуре 300 К со спектральным разрешением 0,25–1,2 мэВ.

На вставке *a* к рис.1 представлены спектры фотолюминесценции структур с $d_b = 20$ и 2 нм (спектры I и II, соответственно), снятые при сильной расфокусировке лазерного пучка на образце. Следствием квантового ограничения волновых функций электронов и дырок в квазидвумерных системах является повышение энергии связи квазидвумерного экситона и силы осциллятора экситонного перехода, поэтому ионизации экситонов не происходит вплоть до комнатной температуры [6]. В спектрах доминирует полоса с максимумом при 1,555 и 1,577 эВ соответственно для структур с $d_b = 2$ и 20 нм. Эта полоса обусловлена излучательной рекомбинацией экситона, включающего электрон и тяжелую дырку из первых подзон размерного квантования, и по положению близка к результатам расчетов структуры минизон методом огибающей при учете энергии связи экситона ~ 14 мэВ для структур с квантовыми ямами толщиной ~ 3 нм [7], что свидетельствует об отклонениях ширин квантовых ям в структурах в макромасштабе от номинальных не более, чем на один–два монослоя. В силу значительной термической заселенности подзон легких дырок при температуре 300 К рекомбинация экситона с участием легкой дырки также дает существенный вклад в спектры фотолюминесценции (плечо пиков в области высоких энергий).

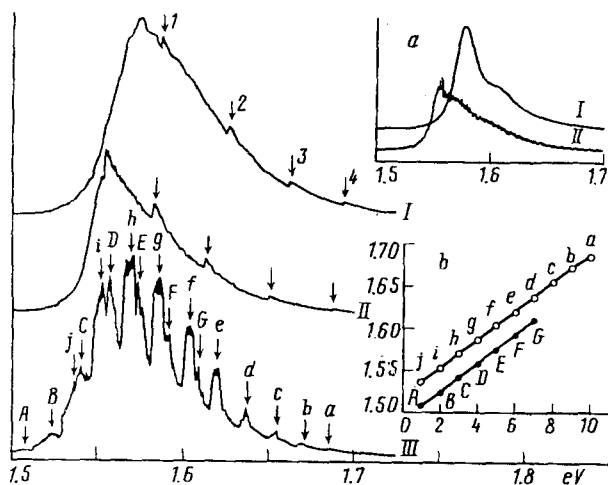


Рис.1. Спектры фотолюминесценции структур многократных квантовых ям GaAs/AlGaAs с $d_b = 20$ (спектр I) и 2 нм (спектры II и III), снятые при возбуждении сфокусированным ($w < 20$ мкм) лазерным пучком в режиме микроскопа. Спектр III получен в другой точке сверхрешетки с $d_b = 2$ нм. Вставка *a* — то же при возбуждении расфокусированным пучком. Вставка *b* — зависимости энергий дополнительных пиков из двух серий от их номера в спектре III. Остальные пояснения — в тексте

В условиях резкой фокусировки возбуждающего излучения ($w < 20$ мкм), на полосы межзонной фотолюминесценции структур с $d_b = 20$ и 2 нм (спектры I и II, соответственно, на рис.1) накладываются пики излучения с шириной на полувысоте 3–5 мэВ. Как показывает расчет методом огибающей, наблюдаемые для структуры с широкими барьерными слоями дополнительные пики отвечают флуктуациям толщин квантовых ям на целое число монослоев. Цифры при пиках в спектре I показывают, на сколько монослоев отличается локальная ширина ямы, соответствующая данному максимуму, от среднего значения, дающего наибольший вклад в спектр фотолюминесценции. Так, максимум межзонной люминесценции в этом спектре отвечает толщине квантовых ям в 12 монослоев по 0,283 нм (3,4 нм), а пик 4 характеризует квантовые ямы, толщина которых на 4 монослоя меньше. В то же время,

тонкая структура в спектре II сверхрешетки с $d_b = 2$ нм не коррелирует с рассчитанными энергиями межзонных переходов для структур с квантовыми ямами, отличающимися на целое число монослоев, и скорее всего связана с флуктуациями типа квантовых точек, которые наблюдались ранее [2–5].

Проявление пиков, обусловленных флуктуациями толщин квантовых ям, становится возможным, когда диаметр возбуждающего фотолюминесценцию пучка приближается к размерам неоднородностей в плоскости пластины, которые могут быть настолько большими, что латеральное квантование еще не проявляется. Размеры областей с постоянными толщинами слоев возрастают для структур, выращенных с прерываниями роста, которые обеспечивают диффузию Ga и Al на большие расстояния по плоскости пластины. Количество и положение наблюдаемых пиков варьируются при сканировании сфокусированного ($w < 20$ мкм) пучка по поверхности образца, отражая локальную микроструктуру в различных областях. При возбуждении фотолюминесценции расфокусированным пучком в спектре одновременно присутствуют вклады нескольких областей в плоскости пластины, отличающихся по толщине квантовых ям, что в сочетании с разбросом толщин квантовых ям по глубине приводит к размытию тонкой структуры в спектрах (вставка *a* на рис.1).

Интересной особенностью образца с узкими барьерными слоями является наличие в условиях резкой фокусировки возбуждающего излучения на образце в некоторых точках и тонкой структуры, отличной от обсуждаемой выше. Примером такого спектра является спектр III на рис.1. Здесь наблюдаются две серии практически эквидистантных пиков, обозначенных строчными и прописными буквами. На вставке *b* к рис.1 приведены зависимости энергий пиков каждой серии от их номера в спектре (в порядке возрастания энергии). Эти зависимости носят линейный характер, причем расстояние между соседними пиками в каждой серии варьируется в интервале всего 15,6–18,2 мэВ. Наличие двух серий пиков скорее всего обусловлено тем, что в пределы пятна сфокусированного возбуждающего излучения попадают два образования типа квантовых точек, обсуждаемых ниже. Ослабление фона в данном случае обусловлено отсутствием большого набора флуктуаций в пределах пятна возбуждения фотолюминесценции.

Появление в спектре люминесценции эквидистантных пиков, положение которых не соответствует состояниям в квантовых ямах с шириной, равной целому числу монослоев, может быть обусловлено образованием квантовых точек в результате флуктуаций параметров ям и барьеров. Эти флуктуации могут быть двух типов: плавное изменение доли алюминия x или ступенчатое изменение ширины слоев. Первая возможность обсуждалась в работах [1, 2, 8]. Причины образования таких точек в [8] заключались в процессах взаимной диффузии при нагревании образца лазерным пучком, а в [1, 2] вообще не рассматривались. В нашем случае наиболее вероятным представляется формирование квантовых точек из-за ступенчатого изменения толщин слоев в процессе роста.

В силу условий роста в установке молекулярно-лучевой эпитаксии наиболее вероятными представляются флуктуации, имеющие круговую форму в плоскости, перпендикулярной оси роста. Наличие в спектрах люминесценции для образцов с широкими барьерами пиков, соответствующих ширинам ям, кратным целому числу монослоев, говорит о том, что радиусы R этих флуктуаций достаточно велики, так что в отдельной флуктуации латеральное квантова-

ние не проявляется. В этом случае квантовая точка может образовываться в результате перекрытия флуктуаций толщин соседних слоев. Пример такого образования представлен на вставке к рис.2.

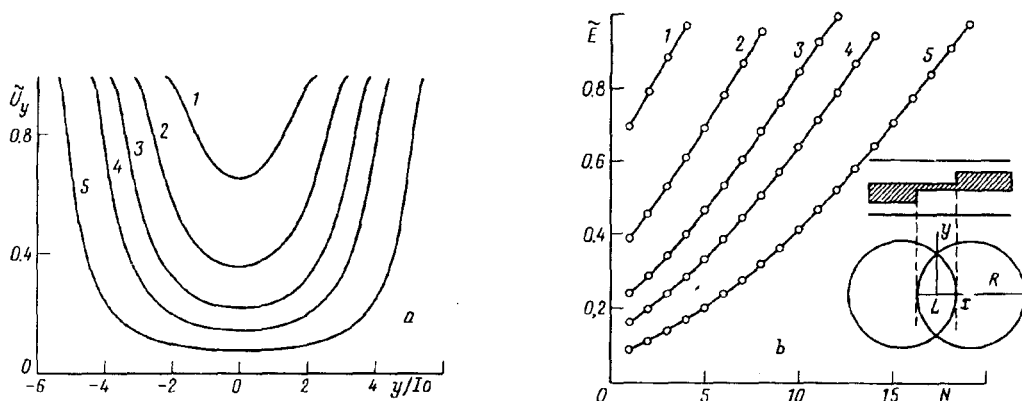


Рис.2. Зависимости эффективного потенциала \tilde{U} от координаты y (а) и энергии локализованных на флуктуациях состояний \tilde{E} от номера уровня N (б) для $R/l_0 = 20$ и значений L/l_0 : 1 - 0,25; 2 - 0,50; 3 - 0,75; 4 - 1,00; 5 - 1,50. На вставке - геометрия исследуемой структуры

Для расчета энергетического спектра такой структуры используем приближенный метод решения задачи, состоящий в следующем. Решение трехмерного уравнения Шредингера

$$\Delta \Psi(x, y, z) + \frac{2m}{\hbar^2} [E - U(x, y, z)] \Psi(x, y, z) = 0 \quad (1)$$

в каждой из областей, где $U(x, y, z) = U_i(z)$, можно представить в виде

$$\Psi(x, y, z) = \psi(x, y) Z(z). \quad (2)$$

Подставляя (2) в (1), для функции $Z(z)$ получим уравнение

$$\frac{Z''}{Z} + \frac{2m}{\hbar^2} [\lambda^{(i)} - U_i(z)] = 0, \quad (3)$$

где $\lambda^{(i)}$ — постоянная разделения. Уравнение (3) имеет вид уравнения Шредингера для одномерного движения в потенциале $U_i(z)$.

В исследуемых структурах число уровней пространственного квантования в направлении оси структуры невелико (в яме шириной 3 нм имеется всего один уровень). Считая, что главный вклад вносит основное состояние, ограничимся одним первым уровнем пространственного квантования λ_1 в каждой из областей 1 ($x < -L/2$), 2 ($|x| \leq L/2$), 3 ($x > L/2$). Тогда для функции $\psi(x, y)$ вместо набора уравнений для каждого λ_n получим единственное уравнение, которое с учетом того, что $\lambda = \lambda(x, y)$, можно записать в виде:

$$\Delta_2 \psi(x, y) + \frac{2m}{\hbar^2} [E - \lambda_1(x, y)] = 0, \quad (4)$$

т.е. при таком подходе трехмерная задача сводится к двумерной, в которой роль потенциала играет собственное значение одномерного движения вдоль

оси роста z . Если границу области постоянства значения λ_1 ($\lambda_1(x, y) = const$), т.е. границу области перекрытия окружностей в нашем случае, $y = f(x)$, аппроксимировать кусочно-постоянной функцией, то процедуру, аналогичную использованной ранее, можно применить и к уравнению (4), сведя таким образом исходную трехмерную задачу к одномерной.

С целью оценки точности предложенного метода были проведены численные расчеты спектра локализованных состояний на одномерных ступенчатых флуктуациях ширин ям, когда параметры ям и барьеров зависят только от координат x и z , причем изменение потенциала по z соответствует функции $U(x, y, z)$ при $y = 0$ (см. вставку на рис.2). В этом случае в каждой из областей 1, 2, 3, где $U(x, z) = U_i$, решение двумерного уравнения Шредингера можно представить в виде разложения в ряд по собственным функциям одномерного движения вдоль оси z :

$$\psi_2(x, z) = \sum_{m=1}^{\infty} (C_m \cos k_m x + \frac{D_m}{k_m} \sin k_m x) Z_m^{(2)}(z), \quad (5)$$

$$\psi_{1,3}(x, z) = \sum_{m=1}^{\infty} B_m^{(1,3)} \exp(\kappa_m^{(1,3)} x) Z_m^{(1,3)}(z), \quad (6)$$

где

$$k_m = \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{1/2} [E - \lambda_m^{(2)}]^{1/2}, \quad \kappa_m^{(i)} = \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{1/2} [\lambda_m^{(i)} - E]^{1/2},$$

$\lambda_m^{(i)}$ – собственные значения одномерного движения вдоль оси z .

Используя условие непрерывности волновой функции и ее производной по x при $x = 0$ и $x = L$, получаем систему однородных уравнений относительно $B_m^{(1,3)}$, C_m и D_m , обращение в нуль определителя которой и дает энергетический спектр локализованных на такой флуктуации состояний. При численном решении суммирование в (5), (6) ограничивается конечным числом членов M , число которых определяется из условий сходимости результатов.

Численные расчеты для структуры, образованной в результате флуктуаций типа изображенных на вставке к рис.2, показывают, что для широкого набора параметров отличие точного результата для энергий локализованных состояний (при большом M) от результата при $M = 1$ составляет единицы процентов. Именно с такой точностью можно получить собственное значение двумерной задачи путем сведения ее к одномерной с эффективным потенциалом $U(x)$, совпадающим со значениями энергии основного состояния для пространственного квантования вдоль оси z .

Применим развитый метод для описания особенностей электронных состояний, возникающих в результате флуктуаций параметров системы квантовых ям в процессе роста типа изображенных на вставке к рис.2. Проследим за изменением эффективного потенциала $U(y)$ и энергетического спектра при изменении максимальной ширины области перекрытия L в направлении x , совпадающем с линией, соединяющей центры окружностей (величина L определяется радиусами окружностей R и расстояниями между их центрами). Для простоты рассмотрим ситуацию, когда ширина верхней и нижней ям в области 1 совпадают с ширинами соответственно нижней и верхней ям в области 3. Такая ситуация имеет место в случае, когда величины образовавшихся ступенек для первой и второй флуктуаций равны. При этом $\lambda_1^{(1)} = \lambda_1^{(3)}$ и при

расчете удобно нормировать все длины на величину $l_0 = [2\pi^2\hbar^2/m(\lambda_1^{(2)} - \lambda_1^{(1)})]^{1/2}$, а энергии – на $\epsilon = (\lambda_1^{(2)} - \lambda_1^{(1)})$. На рис.2 представлены зависимости нормированного значения эффективного барьера $\tilde{U}(y) = [U(y) - \lambda_1^{(2)}]/\epsilon$ от координаты y (а) и энергии локализованных состояний $\tilde{E} = (E - \lambda_1^{(2)})/\epsilon$ от номера уровня N (б) для структур, образованных в результате флуктуаций в двухъямной системе, для радиуса флуктуации $R = 20l_0$ и набора значений ширины области перекрытия L . Для конкретных структур необходимо вычислить значения λ в каждой из областей и пересчитать параметры \tilde{L} и \tilde{R} в единицах l_0 . Аналогично можно вычислять энергии локализованных на флуктуациях состояний и для дырок.

Как видно из рисунка, при малом L (кривые 1, 2) вид $U(y)$ близок к параболическому, а уровни энергии почти эквидистантны. Число этих уровней для заданного L определяется радиусом R .

Используя кривые рис. 2, проведем численные оценки для квантовой точки, образованной в результате уменьшения вдвое ширины барьера. В двухъямной структуре с ширинами ямы 3 нм и барьера 2 нм величина $\lambda_1^{(2)} - \lambda_1^{(1)}$ для электронов составляет 47 мэВ, для тяжелых дырок — 28 мэВ, величина $l_{0e} = 21,8$ нм, $l_{0h} = 13,3$ нм. Для радиуса флуктуации в 200 нм шесть эквидистантных энергетических электронных уровней получаются при $L \approx 10$ нм, расстояние между ними при этом будет порядка 6 мэВ, для тяжелых дырок при этом будет наблюдаться порядка десяти уровней с расстоянием между соседними порядка 3 мэВ. Такая структура даст в спектре фотолюминесценции шесть почти эквидистантных линий с расстоянием между линиями ~ 9 мэВ. Принимая во внимание флуктуации параметров только двух соседних ям, большего расстояния между уровнями добиться не удастся. Для получения лучшего соответствия экспериментальным данным требуется рассматривать более сложные образования, включающие либо перекрытие флуктуаций параметров трех соседних ям, либо флуктуации, не являющиеся результатом перекрытия рассмотренных выше круговых флуктуаций, но имеющие близкую к ним форму.

Таким образом, эффективная квантовая точка, формирующаяся в результате флуктуаций параметров ям и барьеров круговой симметрии, может иметь энергетический спектр гармонического осциллятора, то есть флуктуации подобной формы могут быть причиной наблюдаемых в эксперименте эквидистантных линий в спектре фотолюминесценции.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Российской МНТП "Физика твердотельных наноструктур" и INTAS.

-
1. G.Bastard, C.Delalande, M.H.Meynadier et al., Phys. Rev. B **29**, 7042 (1984).
 2. A.Zrenner, L.V.Butov, M.Hagn et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 3382 (1994).
 3. K.Brunner, G.Abstreiter, G.Böhm et al., Appl. Phys. Lett. **64**, 3320 (1994).
 4. H.F.Hess, E.Betzig, T.D.Harris et al., Science **264**, 1740 (1994).
 5. M.Grundmann, J.Christen, N.N.Ledentsov et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
 6. R.Cingolani, K.Ploog, Adv. in Phys. **40**, 535 (1991).
 7. G.Oelgart, M.Proctor, D.Martin et al., Phys. Rev. B **49**, 10456 (1994).
 8. K.Brunner, U.Bockelmann, G.Abstreiter et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 3216 (1992).