

СВОБОДНЫЕ И ЛОКАЛИЗОВАННЫЕ ПОЛОЖИТЕЛЬНО ЗАРЯЖЕННЫЕ ЭКСИТОНЫ В СПЕКТРЕ ИЗЛУЧЕНИЯ GaAs/AlGaAs КВАНТОВЫХ ЯМ

О.В.Волков¹⁾, И.В.Кукушкин, К.фон Клитцинг*²⁾, К.Эберл*²⁾

Институт физики твердого тела РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

* Max-Planck-Institut für Festkörperforschung
70569 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 1 июля 1998 г.

Изучены спектры рекомбинационного излучения локализованного на нейтральном акцепторе экситонного комплекса (A^0X), ранее приписываемые положительно заряженному экситону (X^+). Обнаружены и исследованы спутники основной линии люминесценции, связанные с процессами отдачи при рекомбинации комплекса, в которых оставшаяся после рекомбинации дырка находится в возбужденном состоянии. В рамках вычислительной модели, основанной на гамильтониане Латтинжера, показано, что энергетические расщепления между основной линией и спутниками соответствуют расположению примесного центра в барьере на определенном расстоянии от ямы. Показано, что с увеличением магнитного поля наблюдается переход от синглетного основного состояния комплекса к мультиплетному.

PACS: 71.35.Cc, 78.66.Fd

1. Несмотря на то, что GaAs/AlGaAs – одиночные квантовые ямы (SQW) – достаточно хорошо изучены экспериментально, ряд линий фотолюминесценции, наблюдающихся в этих структурах, до сих пор является предметом дискуссий. Причина этого заключается как в сложности квантовых систем, состоящих более чем из 2 частиц, так и в отсутствии детальной информации о самой структуре, в частности об имеющихся в ней примесях и их пространственном распределении. Одними из наиболее интересных активных в фотолюминесценции объектов являются положительно и отрицательно заряженные экситонные комплексы (трионы) X^+ и X^- , возникающие в квантовых ямах при низкой концентрации основных носителей [1, 2]. Как было показано в [3, 4], эти образования не являются свободными, а локализуются в кулоновском потенциале имеющихся в барьере заряженных примесей, формируя $A_b^0X^-$ и $D_b^0X^-$ комплексы, однако вопрос о конкретном расположении этих примесей оставался открытым.

Отличительной чертой квантовых электронно-дырочных систем, состоящих более чем из 2 частиц, является возможность рекомбинации, при которой оставшаяся частица может находиться не только в основном, но и в возбужденном состоянии. При этом в спектре излучения возникают реплики основной линии люминесценции, сдвинутые в меньшие энергии на величину расщепления между основным и возбужденными состояниями системы после акта рекомбинации. В случае D^0X^- комплекса в GaAs такие реплики (двухэлектронные спутники) были подробно изучены в [5]. Размерное квантование и возможность пространственного разделения

¹⁾ e-mail: volkov@issp.ac.ru

²⁾ K.von Klitzing, K.Eberl

примесных центров (в барьере) и носителей заряда (в яме) модифицируют энергетический спектр нейтральных примесей в SQW. В результате для $D_b^0 X$ -комплекса (экситона, связанного на нейтральном доноре в барьере) сателлиты, связанные с переходами в возбужденное состояние D_b^0 , имеют практически линейный циклотронный сдвиг относительно основной линии. Этот экспериментальный факт использовался для доказательства двухчастичной природы линии рекомбинации, отвечающей $D_b^0 X$ -комплексу [6]. В дырочной системе сателлиты линии рекомбинации экситонного комплекса ранее не наблюдались, а связь этой линии с положительно заряженными экситонами X^+ устанавливалась по аналогии с электронной системой [2]. Нами обнаружены и исследованы такие сателлиты в серии квантовых ям шириной от 150 до 300 Å. Анализ энергетического расщепления между основной линией рекомбинации экситонного комплекса и ее сателлитами позволил определить характерное расположение акцепторов, на которых происходит локализация положительно заряженных экситонов с образованием $A_b^0 X$ -комплекса. Обнаружен переход от синглетного основного состояния экситонного комплекса к мультиплетному с ростом магнитного поля, который проявляется в изменении интенсивностей компонент спектра излучения.

2. Мы исследовали нелегированные GaAs квантовые ямы шириной 150, 200, 250 и 300 Å с барьерами из $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$, выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МВЕ) на нелегированной подложке GaAs. Образец с шириной ямы 150 Å содержал серию квантовых ям, разделенных сверхрешеткой с толщиной слоев $AlGaAs/GaAs$ 50 Å/30 Å, остальные содержали одиночную квантовую яму. В образцах с шириной ямы 200 и 250 Å она была выращена на сверхрешетке с толщиной слоев 100 Å/30 Å, в образце с шириной ямы 300 Å ближайший к яме слой $AlGaAs$ со стороны сверхрешетки имел толщину 500 Å. Характерная ширина линий люминесценции в исследованных структурах составляла 0.1 .. 0.2 мэВ в магнитном поле ~ 10 Тл, что говорит об их высоком качестве. Оптическое возбуждение системы осуществлялось Ti/Sp-лазером с энергией фотонов 1.65 эВ или He/Ne-лазером с энергией фотонов 1.96 эВ. Несмотря на то, что мы исследовали нелегированные квантовые ямы, все структуры содержали двумерный канал малой плотности (с концентрацией носителей заряда 10^9 .. 10^{10} см $^{-2}$), причем знак носителей заряда можно было менять, варьируя энергию фотовозбуждения [4]. В данной работе в основном исследовались квантовые ямы с p -каналом малой плотности. Спектральным прибором служил двойной монохроматор Ramanog U-1000, который в сочетании с полупроводниковым детектором с зарядовой связью (CCD) обеспечивал разрешение 0.03 мэВ. Измерения проводились при температуре 1.5 К в диапазоне магнитных полей 0 ... 11 Тл.

3. На рис.1а показан спектр фотолюминесценции, измеренный для SQW 200 Å в нулевом магнитном поле. Он состоит из 2 спектральных линий – свободного экситона (X) и экситонного комплекса, который в случае квазидвумерного (2D) дырочного канала малой плотности представляет собой экситон, локализованный на нейтральном акцепторе в барьере ($A_b^0 X$) [4]. Наличие двух эквивалентных дырок в $A_b^0 X$ -комплексе (так же, как и в X^+) разрешает процесс рекомбинации комплекса с переходом оставшейся дырки в возбужденное состояние. При этом в спектре излучения должны появляться сателлиты основной линии рекомбинации, отражающие спектр возбужденных состояний A_b^0 центра (или свободной дырки в случае X^+). Такие сателлиты действительно были обнаружены нами в спектрах излучения всех исследованных образцов в перпендикулярном магнитном поле.

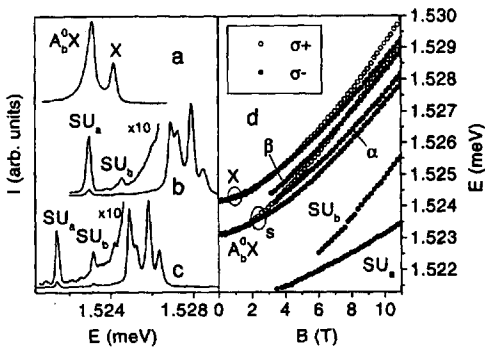


Рис.1. (а) Спектры фотолюминесценции, измеренные в SQW 200Å в нулевом магнитном поле. (б,с) Спектры фотолюминесценции, измеренные в SQW 200Å (б) и 250Å (с) в магнитном поле 9.5 Тл в σ -поляризации. (д) Зависимость энергии оптических переходов от магнитного поля, измеренная для SQW 200Å в двух циркулярных поляризациях

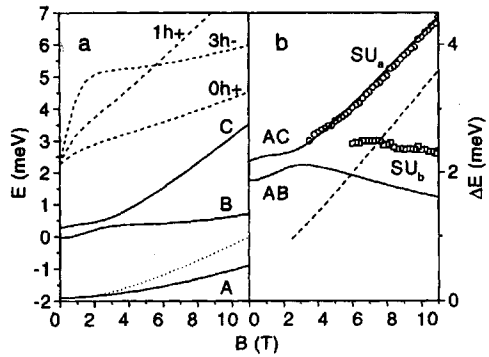


Рис.2. (а) Зависимость энергии 3 нижайших состояний $A_b^0 X$ -центра с полным моментом $J_z = +3/2$ от магнитного поля, рассчитанная для SQW 200Å с расстоянием до акцептора 100Å (сплошные линии). Пунктиром показана энергия основного состояния с $J_z = -3/2$. Штриховыми линиями показана энергия соответствующих квантовых состояний свободной дырки. (б) Зависимость энергии расщепления между линиями $A_b^0 X$ и SU_a (○), SU_b (□) в σ -поляризации от магнитного поля, измеренная для SQW 200Å. Сплошными линиями показаны результаты расчета для $A_b^0 X$ -центра (а), штриховыми линиями – расчета расщепления между уровнями $1h+$ и $0h+$ свободной дырки

На рис.1 б,с показаны спектры люминесценции, измеренные для SQW 200Å и 250Å в σ -поляризации в магнитном поле 9.5 Тл. На спектрах отчетливо видны две линии, обозначенные SU_a и SU_b . Эксперименты, проведенные на образцах, в которых можно было менять тип носителей в яме с помощью фотовозбуждения [4], показали, что линии SU_a и SU_b присущи исключительно p -каналу и полностью исчезают из спектров в случае инверсии типа носителей. На рис.1д показаны зависимости энергии оптических переходов от магнитного поля, измеренные в двух циркулярных поляризациях для SQW 200Å. Следует отметить, что измеренные нами спектральные свойства линии $A_b^0 X$ полностью совпадают с результатами, полученными ранее другими авторами в аналогичных структурах [2, 7], которые приписывались ими излучению свободной триона (X^+). Однако обнаруженная нами спутанная линия позволяет однозначно исключить такую интерпретацию, поскольку наблюдающиеся расщепления между основной линией и репликами $SU_{a,b}$ не стремятся к нулю в нулевом магнитном поле, что характерно для возбужденных состояний A_b^0 , а не свободной дырки. Поскольку спектральное положение реплик $SU_{a,b}$ в SQW различной ширины оказывается привязанным к линиям излучения SQW (см. ниже рис.3а), а в достаточно узких ямах энергия излучения превосходит ширину запрещенной зоны GaAs, то необходимо заключить, что линии $SU_{a,b}$ связаны с процессами рекомбинации в SQW. Как видно из рис.3а, характерная циклотронная масса, соответствующая линии SU_a ($\sim 0.4m_e$), значительно (в 5 раз) превосходит электронную массу, что указывает на дырочный оже-процесс. Таким образом, следует предположить, что линия $SU_{a,b}$ возникает в результате рекомбинации $A_b^0 X$ -комплекса, при кото-

рой оставшаяся дырка оказывается в возбужденном состоянии примесного центра. При этом величина расщепления в пределе нулевого магнитного поля служит мерой локализации комплекса и позволяет определить конкретное расположение примесного центра. Для решения этой задачи нами был разработан вычислительный метод, основанный на гамильтониане Латтинжера 4×4 [8] и учитывающий как реальную геометрию ямы, так и конечную высоту потенциальных барьеров. Матричные элементы гамильтониана вычислялись в цилиндрической калибровке аналогично [9], но в отличие от этого и других расчетов, мы записывали трехмерные базисные функции в виде произведения известных в численном виде решений одномерных дифференциальных уравнений, получаемых методом релаксации [10]. Вычисления обеспечивали точность не менее 0.1 мэВ. В качестве зонных параметров материалов мы воспользовались одним из общепринятых наборов, использованных в [9].

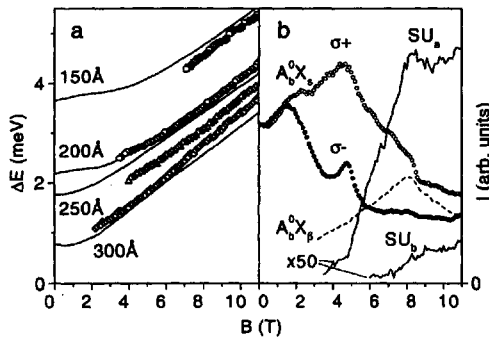


Рис.3. (а) Зависимость энергии расщепления между линиями $A_x^0 X$ и SU_a в σ -поляризации от магнитного поля, измеренная для SQW 150Å(□), 200Å(○), 250Å(△) и 300Å(◇). Линиями показана зависимость расщепления, рассчитанная для тех же квантовых ям с расстоянием до акцептора 50, 100, 100 и 500Å соответственно. (б) Зависимость интенсивности спектральных компонент линии излучения $A_x^0 X$ -комплекса синглетного типа (σ) в двух циркулярных поляризациях (символы), β -мультиплета (штриховая линия), а также реплик $SU_{a,b}$ (сплошные линии) в σ -поляризации от магнитного поля, измеренная в SQW 200Å

Расчеты показали, что расположение акцептора на границе SQW не соответствует экспериментально наблюдаемым расщеплениям, так как дает существенно большую величину расщепления между основным и первым возбужденным состояниями A_x^0 -центра при $B = 0$. В то же время, мы получили хорошее согласие с экспериментом, положив расстояние L от границы SQW до акцептора равным расстоянию до ближайшей границы раздела AlGaAs/GaAs в области сверхрешетки, прилегающей к квантовой яме. Такое предположение вполне оправдано, поскольку разрыв химических связей на границе двух материалов сам по себе создает заряженные центры, кроме того, локальные поля напряжений создают условия для диффузии примесей из объема. На рис.2а показаны результаты расчета 3 нижайших уровней энергии A_x^0 с проекцией полного момента $J_z = M_z + S_z = +3/2$ (именно к этой группе уровней принадлежит основное состояние центра), полученные для SQW 200Å и $L = 100$ Å. На этом же рисунке штриховыми линиями показаны уровни энергии свободной дырки, в которые переходят уровни A, B, C в пределе $L \rightarrow \infty$. Как видно из рис.2б, энергия отщепления реплики SU_a от основной линии $A_x^0 X$ (ΔE) хорошо соответствует разнице энергий уровней A и C . Несколько хуже согласуются спектральный сдвиг реплики SU_b и расщепление между уровнями A и B , однако величина этого расщепления оказалась сильно зависящей от конкретного выбора параметров Латтинжера, которые известны недостаточно точно. В то же время энергия расщепления ΔE в случае свободной дырки ($L \rightarrow \infty$), показанная на рис.2б штриховой линией, ради-

кально отличается от зависимости, наблюдаемой в нашем эксперименте. Сопоставление измеренных и рассчитанных магнитопольевых зависимостей энергии отщепления реплики SU_a , полученных для ям различной ширины, показано на рис.3а и демонстрирует хорошее согласие.

Изложенная выше модель затрагивает ряд интересных и до конца неисследованных вопросов. Очевидно, что если акцепторы сосредотачиваются на удаленной от SQW границе раздела AlGaAs/GaAs, то они должны существовать и на границе самой ямы. Возникает вопрос, почему экситонный комплекс локализуется в основном на удаленных акцепторах? Наиболее вероятная причина состоит в том, что в заряженных квантовых ямах, в которых концентрация свободных дырок существенно превышает концентрацию экситонов, практически все акцепторы в яме и вблизи нее захватывают по две дырки и образуют A^+ -центры. Локализация экситона на таком центре энергетически невыгодна в силу принципа Паули. В то же время известно, что по мере удаления акцепторного центра от границы ямы в барьер, энергия связи второй дырки в A^+ -центре быстро падает и при $L > 2.5a_B$ обращается в нуль [11]. Поэтому при некотором удалении акцептора от ямы энергетически более выгодным должна стать локализация экситона.

Другой вопрос касается природы основного состояния $A_b^0 X$ комплекса (и X^+) и его изменения с ростом магнитного поля. Хорошо известно, что в нулевом поле основное состояние такого комплекса представляет собой синглет (то есть волновую функцию с $J = M^e - M^h - S^h = 0$) [2]. Это означает, что при рекомбинации комплекса с электронным спином $S_z^e = +1/2$ должен испускаться фотон в σ -поляризации, а в конечном состоянии A_b^0 -центр должен иметь полный момент $J_z = -3/2$. Однако в этом наборе уровней нет расщеплений, соответствующих экспериментальным результатам, при всех возможных L . Это обстоятельство заставляет предположить, что реплики $SU_{a,b}$ возникают в процессе рекомбинации $A_b^0 X$ -комплекса мультиплетного типа. Действительно, в случае X^- триплетное состояние становится связанным в магнитных полях, больших ~ 2 Тл, однако синглетное состояние остается основным во всем экспериментально изученном диапазоне магнитных полей [1]. В то же время, известно, что в пределе сильного поля основное состояние двухэлектронной системы должно быть триплетным [12]. В случае комплекса, содержащего две дырки, кроме синглета с $J = 0$, возможны несколько мультиплетов с $J = 1, 2, 3$. В полученных нами спектрах действительно присутствуют 2 дополнительные линии, обозначенные на рис.1d символами α и β , идущие в σ -поляризации выше синглета (s). Предыдущие авторы приписывали линию β триплетному состоянию X^+ [2], хотя величина J в данном случае априори не очевидна. Существенно большая величина спинового расщепления дырки по сравнению с электронным может радикально изменить соотношение энергий синглетного и мультиплетных состояний в магнитном поле. При этом изменение типа основного состояния комплекса (от синглетного к мультиплетному) может и не сопровождаться пересечением спектральных линий люминесценции, поскольку они имеют разные конечные состояния при рекомбинации. Синглет имеет конечное состояние с $J_z = -3/2$ (показано пунктиром на рис.2а), в то время как мультиплеты могут рекомбинировать в состояние с $J_z = +3/2$ (линия А на рис.2а). Разность энергии этих двух состояний плюс зеемановское расщепление электрона ΔE^e равна разности энергий $\sigma+$ и $\sigma-$ компонент линии рекомбинации синглета. Поэтому мультиплетное состояние оказывается ниже по энергии,

чем синглетное, когда соответствующая линия в σ -поляризации оказывается более чем на ΔE^c ниже $\sigma+$ компоненты синглета. При этом следует также ожидать изменений в зависимостях интенсивности спектральных линий от магнитного поля, показанных на рис.3б для SQW 200Å. Как видно из рисунка, интенсивность компонент синглета имеет ярко выраженный максимум в районе $B = 4.8$ Тл. Именно здесь выполняется указанное выше условие для α -мультиплета (рис.1d). В этом же поле начинается рост интенсивности реплик $SU_{a,b}$. Это подтверждает предположение о том, что они связаны с рекомбинацией не синглета, а α -мультиплета. Вторая особая точка в районе $B = 8.1$ Тл связана с равенством энергий синглета и β -мультиплета. Резонансная перекачка энергии вызывает максимум интенсивности β -мультиплета, а в интенсивности синглета наблюдается резкое падение. Аналогичное поведение было обнаружено нами и для остальных исследованных образцов, причем зависимость критических полей от ширины ямы оказалась достаточно слабой. Следует отметить, что в пределе сильного поля мультиплетное состояние является оптически неактивным [12]. Возможно, в этом причина относительно малой интенсивности люминесценции α -мультиплета (рис.1b,c), несмотря на то, что он отвечает основному состоянию системы. В то же время малость матричного элемента перехода в основное состояние A_b^0 -центра создает условия для наблюдения реплик, связанных с переходами в возбужденные состояния.

4. Таким образом, в спектре излучения локализованного на нейтральном акцепторе экситонного комплекса нами обнаружены и исследованы спутники основной линии рекомбинации, связанные с переходами в возбужденное состояние примесного центра после акта рекомбинации. Показано, что наблюдаемые энергетические расщепления между репликами и основной линией отвечают расположению акцептора в барьере на определенном расстоянии от ямы. Продемонстрировано, что реплики связаны с излучением мультиплетного состояния экситонного комплекса, которое становится основным при увеличении магнитного поля.

Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и программы "Физика твердотельных наноструктур".

-
1. A.J.Shields, M.Pepper, D.A.Ritchie and M.Y.Simmons, *Advances in Physics* **44**, 47 (1995).
 2. A.J.Shields, J.L.Osborne, M.J.Simmons et al., *Phys. Rev.* **B52**, R5523 (1995).
 3. О.В.Волков, В.Е.Житомирский, И.В.Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **66**, 730 (1997).
 4. О.В.Волков, В.Е.Житомирский, И.В.Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **67**, 707 (1998).
 5. J.Rorison, D.C.Herbert, P.J.Dean, and M.S.Skolnik, *J. Phys.* **C17**, 6435 (1984).
 6. G.Finkelstein, H.Shtrikman, and I.Bar-Joseph, *Phys. Rev.* **B53**, 12593 (1996).
 7. J.L.Osborne, A.J.Shields, M.Pepper et al., *Phys. Rev.* **B53**, 13002 (1996).
 8. J.M.Luttinger, *Phys. Rev.* **102**, 1030 (1956).
 9. G.E.W.Bauer and T.Ando, *Phys. Rev.* **B38**, 6015 (1988).
 10. О.В.Волков, В.Е.Житомирский, И.В.Кукушкин et al., *Phys. Rev.* **B56**, 7541 (1997).
 11. H.L.Fox and D.M.Larsen, *Phys. Rev.* **B51**, 10709 (1995).
 12. J.J.Palacios, D.Yoshioka, and A.H.MacDonald, *Phys. Rev.* **B54**, R2296 (1996).