Спектроскопия горячей фотолюминесценции: исследование двумерных структур

© Д.Н. Мирлин, В.И. Перель, И.И. Решина, В.Ф. Сапега

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Представлены результаты исследования вторичного свечения (рамановское рассеяние и горячая фотолюминесценция) в полупроводниковых структурах пониженной размерности.

В последние годы (1992–1998 гг.) нами выполнен цикл работ по исследованию вторичного свечения в структурах с квантовыми ямами (СКЯ) и сверхрешетках (СР) GaAs/GaAlAs (рамановская спектроскопия, горячая фотолюминесценция). Далее дан краткий обзор результатов этих работ, включающий недавно полученные результаты по наблюдению 2*D*-квази-3*D*-перехода в сверхрешетках.

1. Рассеяние света с переворотом спина

В работах по исследованию комбинационного рассеяния света (КРС) с переворотом спина связанных носителей тока в СКЯ [1] изучались как легированные Ве, так и нелегированные СКЯ GaAs/Al_xGa_{1-x}As.

Показано, что при резонансном возбуждении комплексов "экситон, связанный на нейтральном акцепторе (A^0X) " и "экситон, локализованный вблизи нейтрального акцептора (A^0LE) ", реализуются различные механизмы КРС.

Установлено, что в фарадеевской геометрии рассеяния назад процесс с участием (A^0X)-комплексов может рассматриваться как двойной процесс переворота спина, который включает, кроме взаимного переворота спинов дырок, переворот спина электрона при взаимодействии с акустическим фононом.

При резонансном возбуждении комплексов A^0LE обнаружен специфический для квантовых ям (КЯ) механизм переворота спина дырки, обусловленный анизотропным обменным взаимодействием. Такой процесс становится возможным благодаря понижению симметрии комплекса A^0LE по сравнению с комплексом A^0X .

Непосредственно определены *g*-факторы дырки на акцепторе, электрона и локализованных экситонов, исследованы анизотропия и зависимость *g*-фактора от ширины КЯ. Измерены величины кристаллического расщепления состояний акцептора $\Delta E(\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2)$ в КЯ разных ширин.

2. Обусловленное нарушением закона сохранения импульса рассеяния света на акустических фононах

Впервые была исследована природа квазинепрерывного [2,3] рамановского спектра в области частот акустических фононов. Показано, что этот спектр обусловлен нарушением закона сохранения сверхрешеточного квазиимпульса в реальных СКЯ. Причиной нарушения закона сохранения квазиимпульса являются флуктуации ширин квантовых ям и барьеров, неизбежно возникающие в процессе роста СКЯ. Эти флуктуации приводят к тому, что в последовательности идентичных КЯ могут оказаться КЯ с большей или ме́ньшей шириной (соответственно с ме́ньшей или бо́льшей энергией размерного квантования). Процесс рассеяния света от регулярной последовательности идентичных КЯ происходит с сохранением сверхрешеточного квазиимпульса, в то время как "дефектные" КЯ рассеивают свет с нарушением закона сохранения импульса. Поэтому в рамановском спектре наблюдаются как известные дублеты сложенных фононов, так и непрерывный спектр, обусловленный неоднордным уширением уровней размерного квантования. В работе также показано, что спектр испущенных в резонансном рамановском процессе акустических фононов определяется видом электронной/дырочной волновой функции.

Тот факт, что непрерывный рамановский спектр рассеянного на акустических фононах света имеет ярко выраженный резонансный характер, был использован для исследования структуры электронных состояний квантовых ям в квантующих магнитных и электрических полях.

3. Энергетическая релаксация горячих электронов в СКЯ и СР

Большое внимание в последние годы было привлечено к проблеме энергетической релаксации горячих электронов в 2D-структурах за счет электрон-фононного взаимодействия. В таких структурах большое значение имеет не только размерное квантование электронного спектра, но и модификация фононного спектра, появление квантованных ("confined") и интерфейсных фононов. Экспериментальное исследование этих вопросов оптическими методами с временным разрешением столкнулось с рядом трудностей, связанных с очень большой интенсивностью возбуждения в лазерных импульсах (экранирование, горячие фононы и др.), что приводило к недостоверным результатам. Разработанный авторами метод фотолюминесценции горячих электронов (ГФЛ) при возбуждении непрерывными лазерами и измерения магнитной деполяризации этой люминесценции, использованный ранее для исследования объемных кристаллов [4],



Рис. 1. Спектры горячей фотолюминесценции СКЯ GaAs/AlAs, 5/10 nm, $E_{exc} = 1.96 \text{ eV}$, T = 6 K. $a - N_A = 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $b - N_A = 4.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

позволил и в случае СКЯ и СР обойти упомянутые трудности и получить надежные результаты, касающиеся вероятности рассеяния горячих электронов, ее зависимости от ширины квантовых ям, а также о роли различных типов фононов в процессе рассеяния [5]. Измерения проводились для серии СКЯ GaAs/AlAs с ширинами ям L_w в диапазоне 4–16 nm и с фиксированной шириной барьеров 10 nm. На рис. 1, а приведен спектр ГФЛ для одной из СКЯ. Спектр возникает при рекомбинации горячих фотовозбужденных электронов с дырками, локализованными на акцепторных уровнях бериллия (концентрация дырок не превышала $3 \times 10^{17} \, \mathrm{cm}^{-3}$). Отчетливая осцилляционная структура спектра связана с рекомбинацией электронов как из начального фотовозбужденного состояния, так и в ходе энергетической релаксации по первой электронной подзоне путем испускания оптических фононов. Расстояние между пиками равно энергии фононов, вносящих доминирующий вклад в рассеяние. Для СКЯ с $L_w > 12$ nm это расстояние равнялось 37 meV, что равно энергии LO-фононов. Для структур с узкими квантовыми ямами расстояние между пиками равнялось 50 meV, что близко к энергии интерфейсных фононов типа AlAs. Измерения магнитной деполяризации ГФЛ при начальной кинетической энергии горячих электронов ("zero"-пик) позволили определить вероятность внутризонного рассеяния. Экспериментальные результаты сравнивались с вычисленными вероятностями рассеяния для фононов различных типов, полученными в рамках диэлектрической континуальной модели (ДКМ). Экспериментальные и расчетные результаты в зависимости от L_w приведены на рис. 2 и удовлетворительно согласуются друг с другом как по величине вероятности рассеяния, так и в доминирующем вкладе в рассеяние интерфейсных фононов типа AlAs в узких квантовых ямах.

Исследовано рассеяние и энергетическая релаксация горячих электронов в СКЯ CaAs / AlAs 5 nm / 10 nm, легированных акцепторной примесью бериллия в центральной части ям в диапазоне $8 \times 10^{17} - 5 \times 10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$ [6]. В этом случае основной вклад в вероятность рассеяния и энергетическую релаксацию вносит взаимодействие горячих электронов с нейтральными акцепторами, сопровождающееся возбуждением и ионизацией последних. Ослабление роли фононного рассеяния проявляется в исчезновении фононных осцилляций в спектре ГФЛ, Были измерены вероятности рассеяния из рис. 1, *b*. начального фотовозбужденного состояния и времена, характеризующие энергетическую релаксацию в зависимости от концентрации акцепторов N_A и найдены поперечные сечения этих процессов. Вероятности рассеяния для электронов с начальной кинетической энергией 0.26 eV изменяются от 10 до 25 ps⁻¹, поперечное сечение этого процесса $\sigma_0 = 4 \times 10^{-14} \, {\rm cm}^2$, что почти вдвое меньше σ_0 для объемных образцов. Уменьшение σ_0 связано с уменьшением в КЯ малоуглового рассеяния. Времена, характеризующие релаксацию, находятся в диапазоне 300-500 fs, а соответствующее сечение рассеяния равняется $2.4 \times 10^{-15} \, \mathrm{cm}^2$. Была развита теория рассеяния горячих электронов на нейтральных акцепторах в квантовых ямах, учитывающая как неупругие так и упругие процессы рассеяния и не ограниченная рамками обычного приближения малоуглового рассея-



Рис. 2. Зависимость вероятности внутризонного рассеяния горячих (200 meV) электронов от ширины квантовой ямы в СКЯ GaAs/AlAs. Сплошные кривые — расчетные значения в рамках модели ДКМ для оптических фононных мод различных типов.

ния. Расчеты основанные на этой теории, согласуются с экспериментальными результатами. Из сопоставления эксперимента и расчета определен радиус акцептора в плоскости квантовой ямы, составляющий 4 nm.

4. Влияние размерности на поляризационные характеристики ГФЛ

В полупроводниках со сложной структурой валентной зоны (типа GaAs) поглощение линейно поляризованного света приводит к выстраиванию электронов и дырок по импульсам, в то время как циркулярно поляризованный свет рождает частицы, ориентированные по спину. Рекомбинация выстроенных по импульсу или ориентированных по спину электронов приводит соответственно к линейной или циркулярной поляризации люминесценции [4].

В объемном полупроводнике линейная поляризация (при линейно поляризованной накачке) ρ_l слабо возрастает при увеличении энергии рекомбинирующих электронов *E*. С другой сторон, в двумерном полупроводнике СКЯ CaAs/AlAs $\rho_l = 0$ при E = 0 и возрастает до $\rho_l \sim 0.5$, когда $E > E_1$, где E_1 — энергия первого размерно-квантованного состояния.

В промежуточном случае сверхрешеток экстраполяция $\rho_l(E)$ приводит к нулевому значению при энергии электронов Е, близкой к ширине первой электронной минизоны Δ , а не при E = 0, как в СКЯ. Такое поведение $\rho_l(E)$ было объяснено в рамках приближения сильной связи, в котором предполагается слабое взаимодействие соседних КЯ. В работе [7] было показано, что это приближение справедливо в СР с узкими электронными минизонами, т.е. в GaAs/AlAs-CP с ширинами барьеров $L_b \geq 6 \,\text{\AA}$ и при фиксированной ширине квантовых ям $L_w = 40$ Å. Можно было ожидать, что в СР с широкими минизонами энергетическая зависимость $\rho_l(E)$ будет похожа на зависимость $\rho_l(E)$ в объемном GaAs. На рис. 3 представлена энергетическая зависимость линейной поляризации ГФЛ ρ_l в сверхрешетках с разным содержанием Al(x = 0.3 u 1), т.е. с разной высотой барьеров U_b (0.29 и 1.06 eV). Для наглядности на этом рисунке представлены данные, полученные в СКЯ (рис. 3, b) и в объемном GaAs (рис. 3, *a*). В случае объемного GaAs экспериментальные данные аппроксимированы пунктирной прямой.

Измеренная зависимость $\rho_l(E)$ в случае СР с наиболее высокими барьерами (x = 1) (см. рис. 3, d) находится в хорошем согласии с рассмотрением, сделанным в приближении сильной связи.

Из этого рассмотрения следует, что энергетическая зависимость ρ_l в СР с наиболее узкими минизонами подобна той, которая наблюдалась в случае СКЯ. Это отчетливо видно из сравнения наклона зависимости $\rho_l(E)$ в этих двух случаях (см. рис. 3, *d*). Однако в СР своего нулевого значения $\rho_l(E)$ достигает при $E \sim \Delta$ (где Δ —



Рис. 3. Зависимость линейной поляризации ГФЛ ρ_l от энергии электронов для СКЯ, СР и объемного GaAs. При изменении x от 1 до 0.3 ширина минизоны Δ меняется от 0.121 до 0.212 eV. Отчетливо видна эволюция зависимости $\rho_l(E)$ при изменении x, т. е. высоты барьера.

ширина первой электронной минизоны), а не при $E \to 0$, как в КЯ. Такая же зависимость $\rho_l(E)$ наблюдалась в случае СР с x = 0.8.

Заметные изменения в зависимости $\rho_l(E)$ происходят уже в СР с $x \le 0.6$, где уменьшение высоты барьера существенно модифицирует энергетическую зависимость $\rho_l(E)$. Однако наибольшие изменения наблюдаются в случае СР с x = 0.3 (рис. 3, c), где зависимость $\rho_l(E)$ очень похожа на зависимость в случае объемного GaAs (ср. с рис. 3, a). Вместе с тем, некоторые детали, связанные с квази-двумерным движением электронов, при $E > \Delta$ сохраняются. Это проявляется в том, что наклон $\rho_l(E)$ при $E > \Delta$ отличается от наклона при $0 < E < \Delta$, поскольку электроны с кинетической энергией $E > \Delta$ движутся преимущественно в плоскости СР.

Другое характерное отличие ГФЛ в объемном GaAs и СКЯ связано с циркулярной поляризацией (ρ_c) люминесценции (при циркулярно поляризованном возбуждении). В объемном случае имеет место так называемый эффект корреляции спина и импульса фотовозбужденных электронов. Этот эффект увеличивает циркулярную поляризацию люминесценции.

Прямое экспериментальное подтверждение этого эффекта было получено в работе [8], где наблюдалось уменьшение ρ_c в магнитном поле (*B*) в геометрии Фарадея. Ход зависимости ρ_c от магнитного поля показал,



Рис. 4. Зависимость циркулярной поляризации ГФЛ ρ_c от магнитного поля для СР и объемного GaAs. В СР с широкими минизонами (см. x = 0.4 и x = 0.3) эффект спин-импульсной корреляции восстанавливается.

что действие магнитного поля сводится к циклотронному вращению импульса фотовозбужденных электронов и, тем самым, к разрушению спин-импульсной корреляции. В КЯ эффект спин-импульсной корреляции отсутствует: соответствующий ей член написать нельзя, так как отсутствует компонента импульса электрона в направлении углового момента фотона n (предполагается, что n перпендикулярен плоскости СКЯ.) На рис. 4 показана зависимость ρ_c от магнитного поля, измеренная в геометрии Фарадея, для электронов с кинетической энергией $E \sim 80-100$ meV. В объемном GaAs ρ_c быстро убывает (темные перевернутые треугольники) с увеличением магнитного поля В из-за разрушения спин-импульсной корреляции. В СР с узкими минизонами спин-импульсная корреляция отсутствует и ρ_c не изменяется с увеличением В (темные кружки (x = 1); светлые квадраты (x = 0.8)). В случае широкозонных сверхрешеток, циркулярная поляризация уменьшается с увеличением магнитного поля. Этот эффект становится заметным в СР с $x \le 0.6$ и означает, что формирование широкой минизоны восстанавливает эффект спин-импульсной корреляции. В СР с $x \sim 0.3$ (темные квадраты на рис. 4) эффект разрушения спин-импульсной корреляции уже сравним с таким же эффектом в случае объемного GaAs.

Работа выполнена при финансовой поддержке грантов РФФИ (№ 96-02-16895, 96-15-96393, 96-15-96392) и Фольксваген (N 1/70958).

Список литературы

- V.F. Sapega, T. Ruf, E.L. Ivchenko, M. Cardona, D.N. Mirlin, K. Ploog. Phys. Rev. B50, 2510 (1994).
- [2] D.N. Mirlin, I.A. Merlukov, V.I. Perel^{*}, I.I. Reshina, A.A. Sirenko, R. Planel. Solid State Commun. 82, 305 (1992).
- [3] V.F. Sapega, V.I. Belitsky, T. Ruf, H.D. Fuchs, M. Cardona, K. Ploog. Phys. Rev. B46, 16005 (1992).
- [4] М.А. Алексеев, И.Я. Карлик, Д.Н. Мирлин, В.Ф. Сапега. ФТП 23, 761 (1989).
- [5] Д.Н. Мирлин, Б.П. Захарченя, И.И. Решина, А.В. Родина, В.Ф. Сапега, А.А. Сиренко, В.М. Устинов, А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров. ФТП **30**, 699 (1996).
- [6] Д.Н. Мирлин, В.И. Перель, И.И. Решина. ФТП 32, 866 (1998).
- [7] V.F. Sapega, V.I. Perel', A.Yu. Dobin, D.N. Mirlin, I.A. Akimov, T. Ruf, M. Cardona, K. Eberl. Phys. Rev. B56, 6871 (1997).
- [8] И.Я. Карлик, Д.Н. Мирлин, Л.П. Никитин, Д.Г. Поляков, В.Ф. Сапега. Письма в ЖЭТФ 36, 155, (1982).