

УДК 621.315.592 : 535.37

© 1992

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ СПЕКТРОВ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КОРОТКОПЕРИОДНЫХ СВЕРХРЕШЕТОК GaAs/AlAs

*Д. В. Корбутяк, А. И. Берча, Л. А. Демчина,
В. Г. Литовченко, А. В. Троценко*

Путем исследования температурной зависимости спектров фотолюминесценции, а также люксинтенсивностных характеристик прямозонной, квазипрямозонной и непрямозонной сверхрешеток GaAs/AlAs изучены механизмы температурного гашения фотолюминесценции в таких структурах. Обсуждена модель, согласно которой экситоны в сверхрешетках GaAs/AlAs при низких температурах локализируются на неровностях границ раздела.

Развитие технологии эпитаксиального роста (молекулярно-лучевая эпитаксия (МЛЭ) и осаждение из металл-органической паровой фазы) привело к созданию структур с квантовыми ямами на основе различных полупроводниковых материалов (например, II/VI, III/V, IV/IV) [1]. Однако наибольшей популярностью у исследователей пользуется система материалов GaAs/AlAs или их твердых растворов, так как постоянные решетки этих веществ отличаются только в сотых долях Å, что дает возможность создавать на их основе слоистые структуры с геометрическими параметрами, изменяемыми в широких пределах. Другим примечательным свойством этой системы является то, что на ее основе можно создавать сверхрешетки (СР) как I (дырки и электроны локализируются в одном слое), так и II типа (дырки и электроны локализируются в соседних слоях) путем соответствующего подбора толщин материалов [2].

Исследованию фотолюминесцентных (ФЛ) свойств СР GaAs/AlAs посвящено много работ [2-7]. Однако большинство из них было направлено на изучение свойств СР I типа. Что касается СР II типа, то основные усилия исследователи направляли на изучение зонной энергетической структуры последних, вообще говоря, не углубляясь в экситонный характер излучательной рекомбинации в этих структурах.

Настоящее сообщение посвящено исследованию спектров низкотемпературной ФЛ СР GaAs/AlAs I и II типов, сравнению температурных зависимостей их ФЛ спектров, а также изучению процессов делокализации и диссоциации экситонов в них.

1. Эксперимент

В широком диапазоне температур (4.2—295 К) исследованы спектры ФЛ трех высококачественных СР GaAs/AlAs, полученных методом МЛЭ. Параметры образцов сведены в таблицу.

В качестве источника возбуждения использовался аргоновый лазер непрерывного действия с мощностью излучения ~ 1 Вт/см² ($\lambda = 514$ нм). В качестве спектрального прибора использовался решеточный монохроматор МДР-23, а

Номер образца	Толщина слоя, Å		Количество периодов	Тип СР и основное состояние зоны проводимости
	GaAs	AlAs, Al _{0,45} Ga _{0,55} As		
1	100	150 (Al _{0,45} Ga _{0,55} As)	100	I, Г
2	30	30 (AlAs)	100	II, X _z
3	22	130 (AlAs)	30	II, X _{xy}

приемником излучения служил фотоэлектронный умножитель ФЭУ-62. Образцы помещались в гелиевый криостат типа УТРЕКС с точностью стабилизации не хуже 0.1 К.

2. Результаты и обсуждение

Литературные данные (см. таблицу) свидетельствуют о том, что образец № 1 является СР I типа, а образцы № 2 и № 3 принадлежат к СР II типа. На рис. 1 представлена температурная зависимость спектра ФЛ образца № 1. При низких температурах в спектре наблюдается один интенсивный пик с полушириной ~7 мэВ и энергией максимума ~1.552 эВ. Повышение температуры до 50 К приводит к появлению с коротковолновой стороны еще одной полосы, отстоящей от основного пика на 15 мэВ. Проведенные нами вычисления энергетических уровней в данной СР по методу огибающей [8] позволяют идентифицировать эти полосы как рекомбинацию экситонов, включающих в себя тяжелую и легкую дырки соответственно. Действительно, вычисления дают значения 1.562 и 1.578 эВ, что, учитывая энергию связи экситона, составляющую в таких структурах около 10 мэВ [9], хорошо согласуется с экспериментальными данными.

На рис. 2 изображена температурная зависимость интенсивности основной полосы ФЛ образца № 1. При низкой температуре интенсивность ФЛ почти постоянна, тогда как при температурах выше 70 К она очень быстро спадает. Зависимость интенсивности ФЛ от температуры может быть описана следующим выражением:

$$I = I_0 / [1 + \exp(-E_A/kT)], \quad (1)$$

откуда можно получить энергию активации $E_A/kT = -\ln(I_0/I - 1)$, где I_0 — интенсивность ФЛ без температурного гашения.

На рис. 2 в полудогарифмическом масштабе также изображен график зависимости $I_0/I - 1$ от $10^3/T$. В диапазоне между 10 и 50 К величина

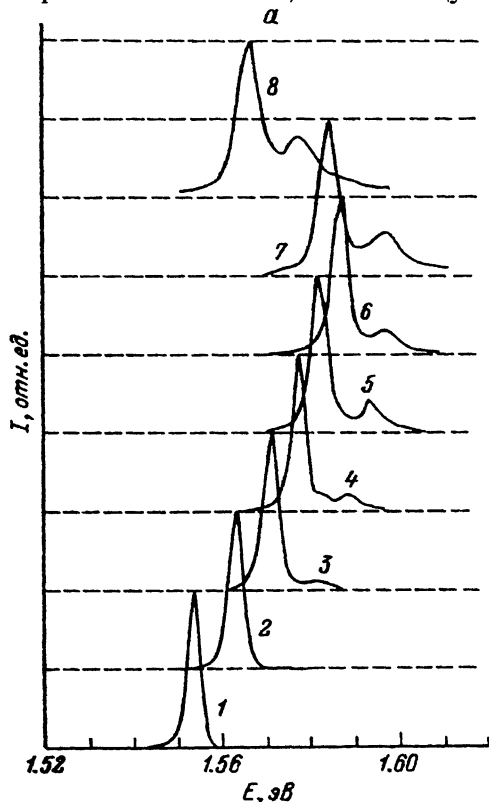


Рис. 1. Температурная зависимость спектров ФЛ СР типа I 100/150 Å.

T, К: 1 — 10, 2 — 30, 3 — 50, 4 — 70, 5 — 90, 6 — 110, 7 — 130, 8 — 170.

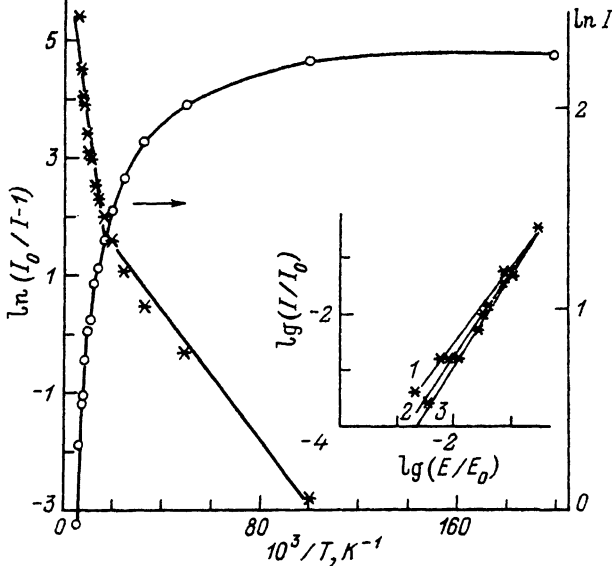


Рис. 2. Зависимость от температуры абсолютной и относительной интенсивности ФЛ СР I типа.

На вставке — локс-интенсивностная характеристика для этого образца при $T = 5$ (1), 25 (2), 50 К (3).

$F_A = 5$ мэВ, что приблизительно соответствует энергии связи свободного экситона. Следовательно, основным безызлучательным процессом в этом температурном диапазоне является экситонная диссоциация. При температуре выше 50 К имеет место термический активируемый безызлучательный процесс с энергией активации $F_A = 39$ мэВ.

Известно [10], что зависимость интенсивности ФЛ от мощности возбуждения E выражается степенным законом $I \sim E^\alpha$. На вставке к рис. 2 представлена такая зависимость в логарифмическом масштабе, откуда видно, что при увеличении температуры показатель α изменяется от 1.5 до 1.8. Последнее указывает [10] на переход механизма излучательной рекомбинации от экситонной (при низких температурах) к рекомбинации свободных носителей (при температурах, близких к комнатной). Можно предположить, что в промежуточном диапазоне излучение обусловлено обоими механизмами.

Рассмотрим далее образцы № 2 и № 3, которые, согласно [3], являются СР II типа. Дело в том, что уменьшение толщины квантовой ямы GaAs от 35 Å (при условии, что толщина слоя AlAs ≥ 15 Å) приводит к тому, что в результате эффекта размерного квантования Γ -минимум GaAs оказывается выше по энергии, чем X -минимум AlAs. Следовательно, основное состояние зоны проводимости таких СР будет находиться в точке X AlAs, а основное состояние валентной зоны — в точке Γ GaAs, т. е. такие образцы становятся СР II типа. Необходимо отметить, что в объемном AlAs зона проводимости в точке X трижды эквидолиная, однако в СР эта эквидолиность разрушается при комбинации как эффектов размерного квантования, так и механических напряжений, возникающих вследствие малой, но конечной величины рассогласования параметров решетки объемных GaAs и AlAs [11].

Обозначим X -долину с волновым вектором k , параллельным направлению [001], как X_z , а долины с векторами k , перпендикулярными к [001], как X_{xy} -минимумы. Принимая во внимание, что энергия электронов X_z -долины определяется продольной эффективной массой ($1.1m_0$), а энергия X_{xy} -долины —

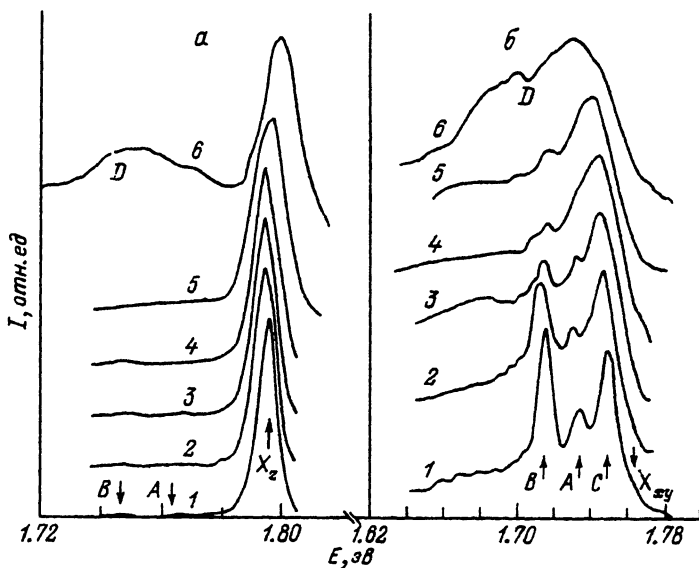


Рис. 3: Температурная зависимость спектров ФЛ CP GaAs/AlAs.
 а — квазипрямозонной (образец № 2), б — непрямозонной (образец № 3).

$T, K: 1-5, 2-10, 3-15, 4-20, 5-30, 6-40.$

поперечной ($0.19m_0$) [12], можно предположить, что основным состоянием AlAs должен быть X_z -минимум для всех значений толщин AlAs. Однако так как обычно структуры GaAs/AlAs выращиваются на GaAs подложках, то слой AlAs является немного напряженным и имеет параметр решетки, равный таковому в GaAs, в результате чего энергетическое положение X_{xy} -минимума понижается по сравнению с X_z -минимумом и при толщине слоя AlAs > 60 нм X_{xy} -минимум становится основным состоянием зоны проводимости CP. Следует подчеркнуть, что природа основного состояния зоны проводимости CP II типа (определяющим является X_z - или X_{xy} -минимум) имеет принципиальное значение, так как уменьшение в CP размеров зоны Бриллюэна в направлении [001] приводит к тому, что дисперсионные кривые претерпевают излом на ее границе и X_z -минимум зоны проводимости проектируется в точку Г. Таким образом, если основное состояние зоны проводимости находится в X_{xy} -долине, то такие CP II типа будут непрямозонным материалом, а в случае, если основное состояние X_z , то CP является материалом «квазипрямозонным». В последнем случае излучательная рекомбинация может происходить без участия фонона [5].

На рис. 3, а, б показаны температурные изменения спектров ФЛ образцов № 2 и № 3, являющихся CP II типа с основным состоянием зоны проводимости в X_z - и X_{xy} -минимумах AlAs соответственно. Если при низких температурах для образца № 2 нуль-фононная полоса, связанная с рекомбинацией экситона, состоящего из X_z электрона и тяжелой дырки, является доминирующей, то в случае образца № 3 она проявляется лишь в виде небольшого перегиба на фоне фононных повторений и обусловлена запрещенным по закону сохранения импульса переходом из X_{xy} -минимума зоны проводимости в Г-максимум валентной зоны. Полосы, обозначенные через А, В, С, соответствуют фононным повторениям полосы X_{xy} с участием TA, LA, LO фононов соответственно [13]. Увеличение температуры (в отличие от CP I типа) приводит к быстрому гашению основной полосы спектра ФЛ CP II типа. На месте полос, соответствующих фононным повто-

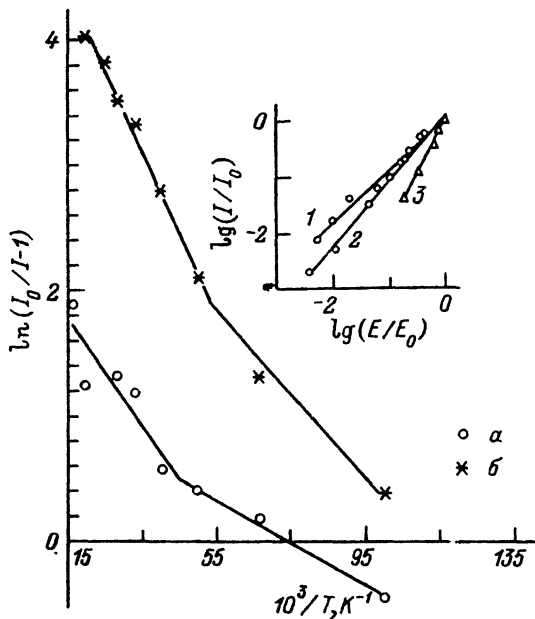


Рис. 4. Зависимость относительной интенсивности ФЛ от обратной температуры для основной полосы СР.

a — непрямоугольной, *b* — квазипрямоугольной. На вставке — люкс-интенсивностные характеристики при различных температурах для основной полосы квазипрямоугольной СР. *T*, К: 1 — 5, 2 — 20, 3 — 30.

рениям, возникает широкая полоса *D*, связанная с рекомбинацией через дефекты [5].

На рис. 4 в полулогарифмическом масштабе представлены зависимости интенсивности ФЛ СР образцов № 2 и № 3 от обратной температуры. Два наклона в этих зависимостях свидетельствуют о том, что в данном температурном диапазоне существуют два механизма гашения ФЛ с энергиями активации 3.12 и 6 мэВ для образца № 2 и 1.5 и 5 мэВ для образца № 3. При низких температурах гашение, по-видимому, обусловлено процессами делокализации экситонов, связанных на флуктуациях потенциала гетерограниц. При больших температурах происходит диссоциация свободных экситонов. Такие предположения подтверждаются следующими наблюдениями. На вставке рис. 4 в полулогарифмическом масштабе изображена зависимость интенсивности ФЛ X_2 -линии в спектре образца № 2 от уровня возбуждения при трех температурах. Видно, что при увеличении температуры сублинейный характер зависимости переходит в сверхлинейный.

Такой переход также показан на рис. 5, где изображена зависимость наклона люкс-интенсивностной характеристики (т. е. показателя α в зависимости $I \sim E^\alpha$) от температуры. Как видно из этого рисунка, $\alpha \approx 1$ при $T = 4.2 \div 15$ К и существенно возрастает при дальнейшем увеличении T , откуда следует, что при $T > 15$ К начинается прогрессирующая делокализация экситонов, связанных на флуктуациях интерфейса. При $T = 35$ К параметр α стремится к значению 2, что означает начало диссоциации свободных экситонов, вследствие чего излучательная рекомбинация происходит с участием свободных носителей. С указанными данными по температурной зависимости показателя α коррелирует зависимость положения максимума полосы X_2 в спектре ФЛ образца № 2. Как видно из рис. 5, смещение максимума ФЛ при увеличении температуры немонотонно: в промежутке

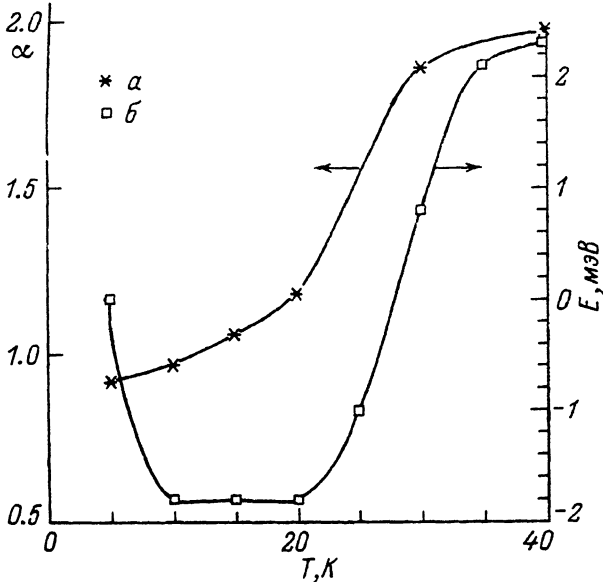


Рис. 5. Зависимость показателя α в соотношении $I^a \sim E$ (а), а также смещение основной полосы ФЛ квазипрямозонной СР от температуры (б).

5—20 К максимум смещается на 2 мэВ в сторону меньших энергий, а при $T > 20$ К имеет место обратное смещение, достигающее значения +2.2 мэВ при $T = 40$ К. Смещение максимума в длинноволновую сторону в диапазоне температур 5—20 К обусловлено тем, что экситоны, связанные в мелких ямках, образованных возможными неровностями интерфейса, становятся свободными, в то время как экситоны в более глубоких ямках границы раздела продолжают оставаться локализованными. При температуре выше 20 К последние также претерпевают процесс делокализации, вследствие чего максимум полосы X_2 смещается в сторону высоких энергий. Не следует пренебрегать тем, что этот эффект может быть обусловлен также температурной эволюцией ямок (рельефа) границы раздела. При температуре $T > 30$ К экситоны начинают диссоциировать, и при этой температуре ФЛ обусловлена рекомбинацией свободных носителей, что приводит к дальнейшему смещению полосы в сторону высоких энергий. Однако при такой температуре к этому процессу примешивается температурный ход запрещенной зоны GaAs и AlAs, имеющий обратный знак.

Таким образом, нами исследованы зависимости интенсивности ФЛ от величины возбуждения, а также их температурные зависимости для прямозонной, квазипрямозонной и непрямозонной СР GaAs/AlAs.

В прямозонной СР I типа при низких температурах ФЛ излучение происходит благодаря рекомбинации свободных экситонов. Повышение температуры приводит к диссоциации последних, и ФЛ осуществляется путем рекомбинации свободных носителей. В случае СР II типа (как квазипрямозонных так и непрямозонных) процесс температурного тушения ФЛ проходит намного интенсивнее, чем в случае СР типа I. Такое поведение можно объяснить тем, что при низких температурах излучательная рекомбинация происходит путем аннигиляции экситонов, связанных на неровностях границы раздела (ямках с характерным размером $\sim 3 \text{ \AA}$). Необходимо отметить, что в случае СР II типа, период которых мал ($\sim 30 \text{ \AA}$), такие флуктуации на

границах раздела играют существенную роль в отличие от случая СР I типа, характеризующихся большими периодами ($\sim 100 \text{ \AA}$). Это заключение согласуется с результатами расчетов [14]. Повышение температуры обуславливает прогрессирующую делокализацию, а также диссоциацию экситонов.

Мы благодарны К. Плогу за предоставление образцов СР.

Список литературы

- [1] Молекулярно-лучевая эпитаксия и гетероструктуры / Под ред. Л. Ченга и К. Плога: Пер. с англ. М.: Мир, 1989. 582 с.
- [2] Moore K. J., Dawson P., Foxon C. T. // *Phys. Rev. B*. 1988. V. 38. P. 3368—3373.
- [3] Miller R. C., Kleinman D. A., Nordland W. A. et al. // *Phys. Rev. B*. 1980. V. 22. P. 863—870.
- [4] Weibuch C., Miller R. C., Dingle R. et al. // *Sol. St. Comm.* 1981. V. 37. P. 219—224.
- [5] Finkman E., Sturge M. D., Meynadier M. H. et al. // *J. Luminescence*. 1987. V. 39. P. 57—74.
- [6] Берча А. И., Гавриленко В. И., Корбутяк Д. В., Литовченко В. Г. // *УФЖ*. 1990. Т. 35. № 1. С. 35—40.
- [7] Корбутяк Д. В., Литовченко В. Г., Берча А. И., Балтрамеюнас Р., Геразимас Е., Куокштис Э. // *ФТТ*. 1991. Т. 33. № 8. С. 2418—2422.
- [8] Bastard G. // *Phys. Rev. B*. 1981. V. 24. P. 5693—5704.
- [9] Koteles E. S., Chi J. Y. // *Phys. Rev. B*. V. 37. N 11. P. 6332—6335.
- [10] Chiary A., Colocci M., Fermi F. et al. // *Phys. Stat. Sol. B*. 1988. V. 147. P. 421—429.
- [11] Drummond T. U., Jones E. D., Hjalmanson H. P. et al. // *SPIE Proc.* 1987. V. 792. P. 2—24.
- [12] Rheinlander B., Neumann H., Fisher P. et al. // *Phys. Stat. Sol.* 1972. V. 49. P. 197—205.
- [13] Dawson P., Moore K. J., Foxon C. T. // *Quantum Well and Superlattice Physics (SPIE)*. 1987. V. 792. P. 208—217.
- [14] Reynolds D. C., Bajaj K. K., Litton C. V. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1985. V. 46. N 1. P. 51—53.

Институт полупроводников АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
13 апреля 1992 г.