

©1994 г.

ИССЛЕДОВАНИЕ КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР МЕТОДОМ СПЕКТРОСКОПИИ СЕЛЕКТИВНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

*М.В.Максимов, С.В.Иванов, П.С.Копьев, Н.Н.Леденцов, Б.Я.Мельцер,
И.Г.Табатадзе, М.В.Степанов, В.М.Устинов*

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021, Санкт-Петербург, Россия
(Получена 2 сентября 1993 г. Принята к печати 29 сентября 1993 г.)

Исследовались спектры возбуждения люминесценции (СВЛ), снятые по контуру линии фотолюминесценции квантово-размерных GaAs-AlGaAs гетероструктур. Показано, что форма СВЛ при низких температурах наблюдения и малых плотностях возбуждения в существенной степени определяется эффектами локализации и транспорта неравновесных носителей и экситонов. Энергии наблюдаемых в СВЛ «экситоноподобных» пиков могут существенно отличаться от энергий экситонных пиков в спектрах поглощения. Учет подобных эффектов исключительно важен для адекватного анализа спектра электронных состояний квантово-размерных гетероструктур.

Спектроскопия возбуждения люминесценции широко используется в настоящее время для исследования электронного спектра квантово-размерных гетероструктур. Например, при помощи спектров возбуждения люминесценции (СВЛ) можно получить информацию об энергетических уровнях размерного квантования. Для спектроскопии возбуждения люминесценции не требуется сложной технологической подготовки образцов, которая необходима для снятия спектров пропускания. Вместе с тем спектры возбуждения люминесценции в отличие от спектров пропускания позволяют идентифицировать различные линии в спектрах фотолюминесценции (ФЛ) [1].

С другой стороны, применение метода спектроскопии возбуждения люминесценции позволяет исследовать релаксацию неравновесных носителей и экситонов в полупроводниках [2-5]. При возбуждении структуры фотонами с энергией больше ширины запрещенной зоны генерируемые электронно-дырочные пары могут либо диссоциировать на независимо релаксирующие электрон и дырку, или в случае их сильной корреляции испускать LO-фонон и релаксировать по механизму горячих экситонов. Механизм релаксации горячего экситона наиболее выражен для структур на основе соединений $A^{II}B^{VI}$, где энергия

экситона сравнима или больше энергии LO -фонона. Это приводит к появлению узких линий в СВЛ, отстоящих от энергии наблюдения на одну или (и) несколько энергий LO -фонона.

В квантово-размерных структурах на основе соединений $A^{III}B^V$ энергия связанного экситона обычно меньше энергии LO -фонона и в этом случае неравновесные носители релаксируют раздельно [3-5]. В СВЛ примесей или связанных экситонов при низких температурах наблюдения и малых плотностях возбуждения обычно можно видеть осцилляции интенсивности с периодом $T = 41-44$ мэВ, соответствующим резонансной релаксации электронов с испусканием оптических фононов. Электроны, рожденные с энергией, резонансной кратному числу LO -фононов, теряют свою энергию за очень малое время (10^{-13} с). После излучения последнего фонона его кинетическая энергия близка к нулю и он легко захватывается примесным атомом и рекомбинирует излучательно. В случае нерезонансного возбуждения после эмиссии последнего фонона экситон остается горячим и теряет энергию значительно медленнее через взаимодействие с акустическими фононами, примесями, флуктуациями стенок квантовой ямы, поэтому ему легче достичь центров безызлучательной рекомбинации (в объеме и на поверхности). Интенсивность ФЛ при таком возбуждении как правило ниже. Указанный эффект и обуславливает осцилляции интенсивности, наблюдаемые в спектрах возбуждения GaAs. Включение сильного магнитного поля [6] или наличие другого локализирующего потенциала [7] (например в латеральных сверхрешетках [7-10]) приводит к релаксации неравновесных носителей по механизму горячих экситонов.

Наконец, с помощью метода спектроскопии возбуждения люминесценции можно получить информацию о структуре гетерограниц квантово-размерных гетероструктур, например о характере флуктуации стенок квантовой ямы. Для этого необходимо сравнить СВЛ, снятые по контуру линии локализованного экситона. Так, например, нами было показано [11], что для квантовой ямы СВЛ, наблюдаемый с высокоэнергетической стороны линии ФЛ, согласуется со спектром поглощения независимо от характера флуктуации локализационного потенциала. При высоких концентрациях монослойных флуктуаций спектры, снятые в центральной части линии, могут быть сдвинуты по энергии в сторону меньших энергий [11]. Это связано с большой вероятностью для пары, рожденной внутри флуктуации в области с увеличенной толщиной ямы, быть захваченной этой флуктуацией и рекомбинировать излучательно. При этом неравновесные носители, рожденные в области со средней толщиной ямы, имеют большой коэффициент диффузии и могут легко достигнуть центров безызлучательной рекомбинации и рекомбинировать. Таким образом, большинство неравновесных носителей гибнет безызлучательно и только те из них, которые пространственно рождены в области флуктуаций, дают вклад в люминесценцию локализованных экситонов.

Так как СВЛ определяют статус суперпозицией всех выше рассмотренных аспектов, вся важная информация об исследуемой структуре может быть получена в одной серии экспериментов с использованием СВЛ.

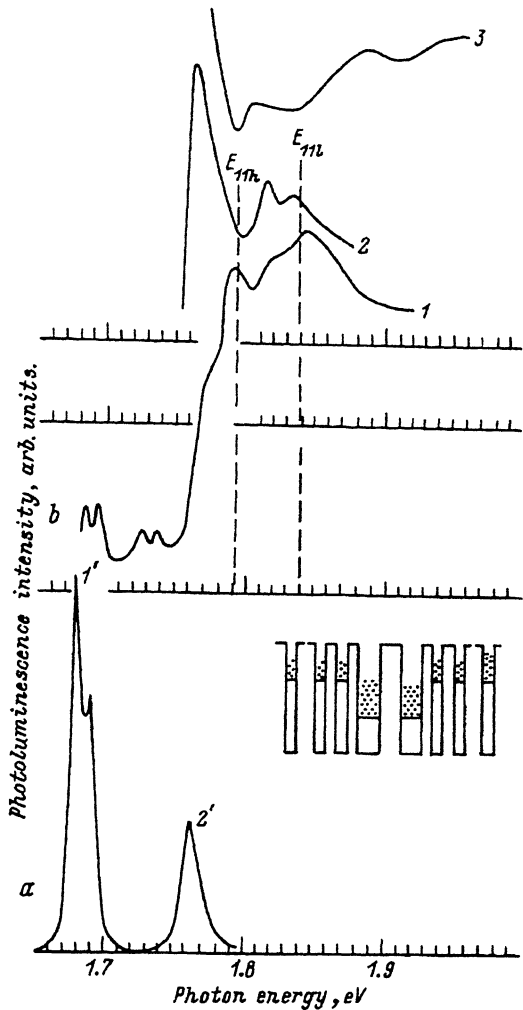


Рис. 1. Спектры ФЛ (а) и ВЛ (б) структуры с двойной КЯ ограниченной СР.

Энергии наблюдения для спектров ВЛ (1 и 2) отмечены стрелками 1 и 2 соответственно. 3 — спектр подавления люминесценции буферного слоя GaAs. Зонная диаграмма структуры схематически показана на вставке.

На рис. 1 приведены спектры ФЛ и возбуждения люминесценции структуры с двойной квантовой ямой (КЯ), ограниченной короткопериодной сверхрешеткой (СР). Зонная диаграмма данной структуры приведена на вставке. В спектре ФЛ (рис. 1,а) наблюдалась линия, соответствующая излучению локализованных экситонов в двойной КЯ (1.68 эВ), линия, соответствующая излучению локализованных экситонов в СР (1.76 мэВ), а так же линия, соответствующая излучению буферного слоя GaAs (на рис. 1 не показана). Наибольший интерес для нас представляло исследование формы СВЛ в области энергий, близких к краю поглощения СР.

Если бы все особенности в СВЛ проявлялись при тех же энергиях, что и особенности в спектре поглощения, то СВЛ двойной ямы и СР качественно не отличались бы. Тем не менее эти спектры отличны друг от друга во многих отношениях. Так, на спектре возбуждения люминесценции СР видны резкие экситоноподобные пики в области энер-

гий, близких к энергиям тяжелого и легкого экситонов в СР (рис. 1, б график 2). В то же время на спектре возбуждения люминесценции КЯ (рис. 1, б, график 1) в области тех же энергий заметна лишь слабая модуляция интенсивности. На рис. 1, б, график 3 приведен СВЛ буферного слоя GaAs. В области энергий, близких к эффективной ширине запрещенной зоны СР, наблюдается выраженное подавление интенсивности ФЛ буферного слоя. Таким образом, этот спектр содержит информацию о спектре поглощения СР. Нетрудно заметить, что форма спектра возбуждения люминесценции КЯ соответствует форме спектра поглощения СР, тогда как форма спектра возбуждения СР значительно отличается от них. Кроме того, в последнем случае экситоноподобные линии существенно сдвинуты в область более низких энергий по сравнению с аналогичными линиями в спектре поглощения (в СВЛ буферного слоя GaAs). Можно сделать вывод, что экситоноподобные линии не связаны с существованием экситонных пиков в плотности состояний возле края поглощения СР, а являются результатом различных вероятностей для экситонов и неравновесных носителей, рожденных светом с различными энергиями кванта, захватываться на флуктуациях локализационного потенциала, вызванного беспорядком интерфейса в СР. Несмотря на то что полное число генерируемых носителей при возбуждении в низкоэнергетическом хвосте спектра поглощения СР мало, вероятность для них быть захваченными флуктуациями и рекомбинировать через локализованные состояния в СР излучательно более высока, чем для носителей, рожденных с большей кинетической энергией в континууме. Этот эффект обуславливает сдвиг «ложных» экситоноподобных пиков в сторону меньших энергий от реальных энергий тяжелого и легкого экситонов в СР и выражен в наибольшей степени для центральной и длинноволновой частей линии ФЛ СР. Неравновесные носители, рожденные с большим волновым вектором, имеют большую вероятность достичь КЯ или центров безызлучательной рекомбинации. СВЛ коротковолнового края линии локализованного экситона имеют пики при энергиях, близких к энергиям уровней размерного квантования.

Таким образом, для определения истинных значений энергий уровней размерного квантования необходим детальный анализ СВЛ. С другой стороны, величины сдвигов энергий и форма СВЛ дает важную информацию о характере локализованных состояний и структуре гетерограниц.

На рис. 2 показаны спектры ФЛ и возбуждения люминесценции квантово-размерной гетероструктуры с композиционной СР 1 рода (спектр ФЛ более подробно представлен на вставке к рисунку). Структура содержит КЯ GaAs шириной 140 Å, ограниченные барьерами $\text{Al}_{0.30}\text{Ga}_{0.70}\text{As}$.

В спектре ФЛ экситонная линия является суперпозицией линии локализованного экситона 1.536 эВ и линии свободного экситона 1.537 эВ. Наличие в спектре только одной линии локализованного экситона, слабо смещенной от линии свободного экситона, свидетельствует об отсутствии крупномасштабных флуктуаций локализационного потенциала, превышающих диаметр экситона (300 Å). Монослойные флуктуации приводили бы к появлению в спектре ФЛ пиков, отстоящих на ~ 1.5 мэВ от основного [10]. Это связано с тем, что экситоны могут ло-

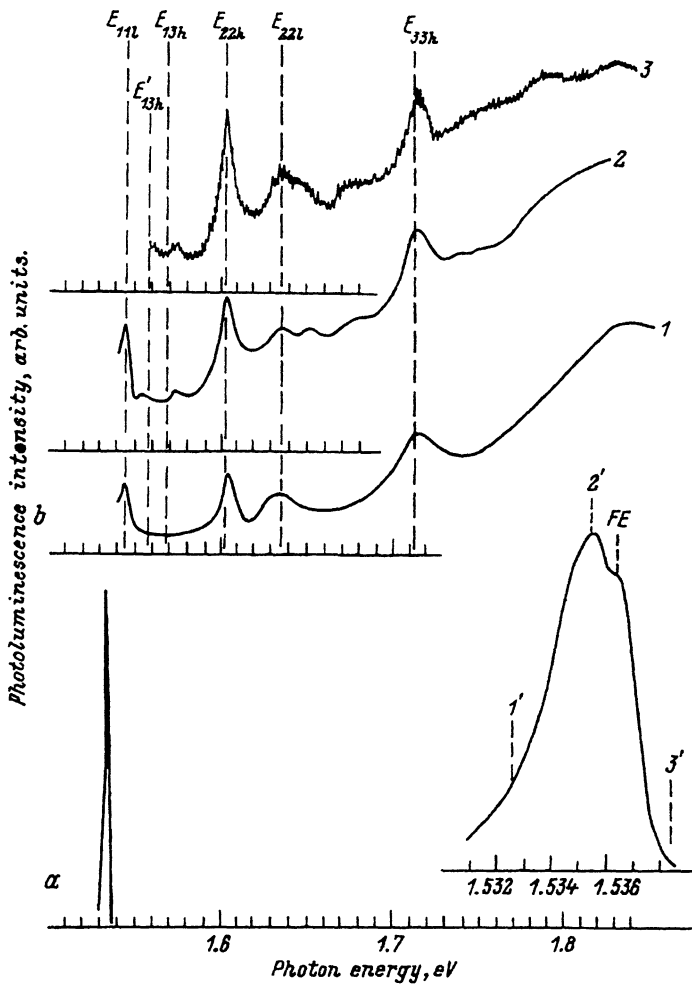


Рис. 2. Спектры ФЛ (а) и ВЛ (b) структуры с квантовыми ямами GaAs шириной 140 Å, ограниченными барьерами AlGaAs.

Энергии наблюдения для спектров ВЛ (1, 2, 3) показаны на спектре ФЛ, представленном на вставке ($1'$, $2'$, $3'$ соответственно). Стрелками показаны значения энергий разрешенных (E_{11L} , E_{22h} , E_{22L} , E_{33h} , E_{33L}) и запрещенного (E_{13h}) переходов из [5], рассчитанные для величин разрывов зон $Q_c/Q_h = 0.57/0.43$. Показано значение энергии запрещенного перехода E'_{13h} , рассчитанное в предположении величин разрывов зон $Q_c/Q_h = 0.85/0.15$.

кализоваться как целое на флуктуациях с размерами, превышающими их диаметр. Мелкомасштабные флуктуации (значительно меньшие по протяженности, чем диаметр экситона) могут усредняться его волновой функцией, и локализация в этом случае может отсутствовать.

Отсутствие заметных флуктуаций локализационного потенциала подтверждается СВЛ, снятыми по контуру линии экситонной ФЛ. Только на СВЛ, снятом для длинноволнового края линии локализованного экситона (рис. 2, b, график 1), имеется небольшое уширение

пиков по сравнению со спектрами, снятыми для центрального и коротковолнового краев.

Таким образом, в отличие от случая короткопериодной СР, рассмотренного выше, положения пиков на СВЛ соответствуют энергиям уровней размерного квантования, что свидетельствует о высоком структурном совершенстве исследуемой структуры и о меньшей роли беспорядка гетерограниц в случае широких КЯ.

Рассмотрим более подробно СВЛ, снятый для центральной части линии локализованного экситона (рис. 2, *b*, график 2). Можно видеть серию пиков, соответствующих экситонным переходам между различными уровнями размерного квантования электронов и дырок. Теоретические значения энергий переходов, рассчитанные Миллером в [12] для разрывов зон $Q_e/Q_h = 0.57/0.43$ и эффективных масс $m_e/m_0 = 0.066$, $m_{hl}/m_0 = 0.094$, $m_{hh}/m_0 = 0.34$, отмечены на рис. 2, *b* пунктиром. Здесь $Q_e(Q_h)$ — отношение разрыва валентной зоны (зоны проводимости) к разности запрещенных зон AlGaAs и GaAs; m_e , m_{hh} , m_{lh} — соответственно эффективные массы электронов, тяжелых и легких дырок; E_{ijh} (E_{ijl}) — энергия, соответствующая переходу с уровня i размерного квантования электронов на уровень j размерного квантования тяжелых (легких) дырок. Значения энергий переходов с $\Delta n = 0$ не позволяют непосредственно определить величины разрывов зон размерного квантования, так как эти энергии зависят как от величин разрывов зон, так и от эффективных масс носителей. Так, экспериментально наблюдаемые энергии переходов с $\Delta n = 0$ ($n = 1, 2, 3$) хорошо согласуются также и с данными, рассчитанными в предположении разрывов зон $Q_e/Q_h = 0.85/0.15$ и эффективных масс $m_{hl}/m_0 = 0.094$, $m_{hh}/m_0 = 0.45$ (правило Лингла). Вместе с тем расчетное положение пика E_{13h} запрещенного перехода с участием электронов первой подзоны и тяжелых дырок третьей подзоны кардинально зависит от выбора величин разрывов зон. Экспериментально наблюдаемый пик E_{13h} сдвинут в сторону больших энергий примерно на 5 мэВ относительно расчетного значения для величин разрывов зон $Q_e/Q_h = 0.57/0.43$. На рис. 2 также показано значение E_{13h} энергии перехода 1-3 согласно модели Лингла. Как видно из рис. 2, согласие с экспериментом в этом случае значительно хуже, чем по модели Миллера, однако и модель Миллера дает несколько заниженное значение энергии перехода 1-3.

На основе полученных нами экспериментально значений энергий переходов были рассчитаны новые значения разрывов зон, равные $Q_e/Q_h = 0.52/0.48$, и эффективная масса тяжелой дырки, равная $m_{hh}/m_0 = 0.32$. Расхождение с авторами [12] мы объясняем тем, что в указанной работе не было проведено анализа вида СВЛ по контуру линии. Таким образом, значения энергий переходов, а значит, и величина разрыва валентной зоны, полученные в [12], могут быть несколько занижены. В противном случае следует признать, что так называемые «запрещенные» переходы имеют другую природу, например обусловлены сингулярностями плотности состояний в валентной зоне при $k \neq 0$, связанными с замешиванием масс тяжелых и легких дырок [13].

Таким образом, в данной работе исследованы особенности методики спектроскопии возбуждения люминесценции неидеальных квантово-размерных гетероструктур. Показано, что эффекты локализации и транспорта неравновесных носителей и экситонов могут играть опре-

деляющую роль в СВЛ. Для количественного анализа наблюдаемых в СВЛ пиков необходимы детальные исследования СВЛ, снятых по контуру линии ФЛ, либо сопоставление СВЛ со спектрами поглощения (или спектрами подавления люминесценции буферных слоев). Расчеты, проведенные на основе таких исследований, указывают на то, что эффективная масса тяжелой дырки в гетероструктурах GaAs-AlGaAs составляет $m_{hh}/m_0 = 0.32$, а величина разрыва валентной зоны составляет 48% от величины полного разрыва зон.

Список литературы

- [1] R.C. Miller, D.A. Kleinman. *J. Luminesc.*, **30**, 520 (1988).
- [2] S. Permogorov. *Phys. St. Sol. (b)*, **68**, 9 (1975).
- [3] C. Weisbuch. *Sol. St. Election.*, **21**, 179 (1978).
- [4] A. Chomette, B. Lambert, B. Clerjand, F. Clerot, H.W. Lui, A. Regreny. *Semicond. Sci. Techn.*, **3**, 351 (1988).
- [5] K.J. Moore, G. Duggan, P. Dawson, C.T. Foxon. *Phys. Rev. B*, **39**, 1219 (1989).
- [6] D.N. Mirlin, Kop'ev P.S., I.I. Reshina, V.F. Sapega, A.A. Sirenko. In: *Proc. XX Int. Conf. on Phys. Semicond. Thessaloniki, Greece (August 6-10, 1990)* (ed. by J.D. Jannopoulos). *World Scientific, Singapore-New Jersey-London-Hong-Kong*, **2**, 1037 (1990).
- [7] N.N. Ledentsov, R. Notzel, Kop'ev P.S., Ploog. *K. Appl. Phys. A*, **55**, 533 (1992).
- [8] R. Notzel, N.N. Ledentsov, L. Daweritz, W. Hohentein, Ploog. *K. Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3812 (1991).
- [9] R. Notzel, N.N. Ledentsov, L. Daweritz, K. Ploog, W. Hohentein. *Phys. Rev. B*, **45**, 3507 (1992).
- [10] R. Notzel, N.N. Ledentsov, K. Ploog. *Phys. Rev. B*, **47**, 1299 (1993).
- [11] S.V. Ivanov, Kop'ev P.S., B.Ya. Meltser, N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, A.M. Vasiliev. *Phys. St. Sol. (a)*, **118**, 169 (1990).
- [12] R.C. Miller, D.A. Kleinmann, A.C. Gosrd. *Phys. Rev. B*, **29**, 7085 (1984).
- [13] U. Ekenberg, M. Altarelli. *Phys. Rev. B*, **30**, 3569 (1984).

Редактор В.В. Чалдышев
