

ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПРИ УМЕРЕННЫХ УРОВНЯХ ВОЗБУЖДЕНИЯ И РЕЗОНАНСНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЙЯНИЕ СВЕТА В СВЕРХРЕШЕТКАХ GaAs/AlGaAs

© Ю.А.Алещенко, Т.Н.Заварицкая, В.В.Капаев,
Ю.В.Капаев, Н.Н.Мельник

Физический институт им. П.Н.Лебедева Российской академии наук,
117924 Москва, Россия
(Получена 1 июня 1995 г. Принята к печати 7 июня 1994 г.)

В спектрах фотолюминесценции сверхрешеток GaAs/AlGaAs при умеренных уровнях возбуждения зарегистрированы дополнительные пики в области энергий выше положения пика квазидвумерного экситона. На основании расчетов структуры подзон и матричных элементов переходов методом огибающей, а также данных резонансного комбинационного рассеяния света эти пики отнесены к вкладам переходов между более высокими ($n \leq 3$) подзонами. Исследованы зависимости энергий этих переходов, заселенностей соответствующих подзон и локализации электронной волновой функции от толщины барьерных слоев. Обнаружен перенос электронов $X-\Gamma$ в реальном пространстве в структурах с широкими барьерными слоями AlGaAs.

Квантово-размерные структуры типа GaAs/AlGaAs являются основой нового класса оптоэлектронных приборов, чем объясняется большой интерес исследователей к их оптическим свойствам, а также к эффектам в них, которые могут быть использованы для создания новых приборов. Результаты многочисленных исследований процессов излучательной рекомбинации в структурах квантовых ям и сверхрешеток полупроводников $A^{II}B^V$ были обобщены в обзоре [1]. В нашей предыдущей работе [2] была показана возможность экспериментального наблюдения методом спектроскопии резонансного комбинационного рассеяния (КР) света эффекта передислокации максимума электронной волновой функции в квантовые ямы из барьерных слоев при сужении последних в сверхрешетках GaAs/AlGaAs. В настоящей работе представлены результаты исследований зависимости межподзонных переходов ($n \leq 3$), заселенностей подзон и локализации электронной волновой функции в сверхрешетках GaAs/AlGaAs от толщины барьерных слоев d_b методами фотолюминесценции при уровнях возбуждения $20 \div 500$ Вт/см² и резонансного КР в сочетании с расчетами методом огибающей.

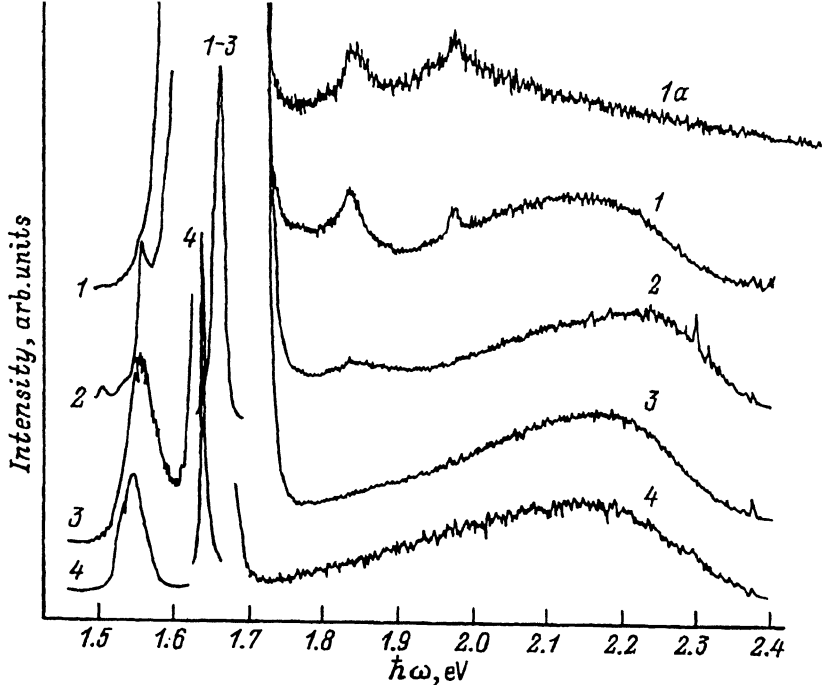


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции четырех сверхрешеток GaAs/AlGaAs с $d_b = 20, 8, 4$ и 2 нм (1-4 соответственно). Температура 80 К, возбуждение излучением с длиной волны 514.5 нм. $1a$ — спектр сверхрешетки с $d_b = 20$ нм при возбуждении излучением с длиной волны 488 нм.

Сверхрешетки GaAs/Al_xGa_{1-x}As, насчитывающие 40 периодов квантовых ям толщиной 3 нм и барьерных слоев с номинальным составом, соответствующим $x = 0.35$, толщина которых d_b для разных образцов составляла от 20 до 2 нм, выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках GaAs(100). Содержание AlAs x в барьерных слоях контролировалось с точностью не хуже 0.01 по разности частот AlAs- и GaAs-подобных LO-мод Al_xGa_{1-x}As в спектрах КР [3] и было близко к $x = 0.34$ для структур с $d_b = 20$ и 8 нм к $x = 0.32$ при $d_b = 4$ и 2 нм. Хорошая корреляция положения пика основного состояния экситона, образованного электроном и тяжелой дыркой из первых подзон размерного квантования, в спектрах фотолюминесценции с результатами расчетов структуры минизон методом огибающей при учете энергии связи экситона (~ 14 мэВ) из работы [4] свидетельствовала о близости толщин слоев квантовых ям GaAs/AlGaAs к номинальным. Спектры фотолюминесценции и КР при температурах 80 и 300 К возбуждались излучением He-Ne-лазера или ионного лазера на смеси Ar и Kr с дискретными длинами волн, перекрывающими диапазон $488 \div 676.4$ нм ($2.54 \div 1.83$ эВ), анализировались с помощью спектрометра Ramalog U1000 с разрешением $1 \div 3$ см⁻¹ и регистрировались по одноканальной схеме с калибровкой по линиям разряда Ne-лампы.

На рис. 1 приведены спектры фотолюминесценции четырех сверхрешеток GaAs/AlGaAs с $d_b = 20, 8, 4$ и 2 нм (спектры 1-4 соответственно), снятые при температуре 80 К и возбуждении излучением с длиной вол-

ны 514,5 нм и плотность мощности на образце 20 Вт/см². Следствием квазидвумерного ограничения волновых функций электронов и дырок в квазидвумерных системах является повышение энергии связи квазидвумерного экситона и силы осциллятора экситонного перехода, поэтому ионизация экситонов не происходит вплоть до комнатной температуры [1]. В спектрах на рис. 1 доминирует полоса в области 1.64÷1.66 эВ, обусловленная излучательной рекомбинацией свободного экситона в основном состоянии, включающего электрон и тяжелую дырку из первых подзон размерного квантования (переход $C1-H1$). Для удобства сравнения положений пиков в разных спектрах интенсивность этой полосы на рис. 1 уменьшена в $10^3 \div 10^4$ раз. Тщательный анализ контура этой линии позволяет выявить плечо в области высоких энергий, связанное с рекомбинацией экситона с участием легкой дырки (переход $C1-L1$). Малая интенсивность этой полосы объясняется слабым заселением подзоны $L1$ при температуре 80 К. Слабый пик при 1.508 эВ обусловлен люминесценцией подложки GaAs. В области 1.55 эВ проявляется полоса, сдвинутая для всех исследованных сверхрешеток в область низких энергий примерно на 100 мэВ относительно положения пика $C1-H1$. При температуре ниже 2 К эта полоса сближается с полосой $C1-H1$ и выглядит как ее слабое плечо. Подобная необычная температурная зависимость была отмечена и для нового излучательного перехода вблизи края зоны пленок $n-Al_{0.3}Ga_{0.67}As$, описанного в [5], где он был связан с неидентифицированными остаточными примесями. Не исключена возможность того, что обнаруженный нами пик в области 1.55 эВ обусловлен барьерными слоями AlGaAs и имеет аналогичную природу.

Особенностью представленных на рис. 1 спектров является появление дополнительных пиков при энергиях, превышающих энергию перехода $C1-H1$. Положение этих пиков практически не изменяется с ростом плотности мощности возбуждающего излучения на образце в интервале 20÷500 Вт/см². При повышении температуры образца пики размываются и смещаются в более низкие энергии. Для их интерпретации использовались расчеты методом огибающей энергий межподзонных переходов и соответствующих матричных элементов, а также энергии связи экситона, измеренные в [4]. Оказалось, что положение пиков фотолюминесценции в области 1.84 и 1.98 эВ в спектре 1 структуры с невзаимодействующими квантовыми ямами ($d_b = 20$ нм) хорошо коррелирует с рассчитанными энергиями переходов $C1-H3$ и $C2-H2$ свободных экситонов. Широкая полоса в этом же спектре неплохо аппроксимируется двумя гауссовыми контурами, отражающими вклады переходов из квазиконтинуума электронных состояний выше барьера в верхние подзоны тяжелых и легких дырок соответственно. Как показывают расчеты, пику в области 1.84 эВ в спектре 2 сверхрешетки с $d_b = 8$ нм отвечает переход $C1-H3$ свободного экситона, широкая асимметричная полоса содержит вклады переходов свободных экситонов $C2-L2$ (2.04 эВ) и $C3-L3$ (2.23 эВ), сильно размытых в k -пространстве по сравнению с переходами в зону тяжелых дырок, а матричный элемент перехода $C2-H2$ (~ 2.0 эВ) становится настолько малым, что соответствующий пик не проявляется в спектре. Согласно расчетам методом огибающей в области широкого пика в спектре 3 образца с $d_b = 4$ нм находятся переходы свободного экситона $C2-H2$ (2.02 эВ) и $C2-L2$ (2.09 эВ), характеризующиеся наибольшими матрич-

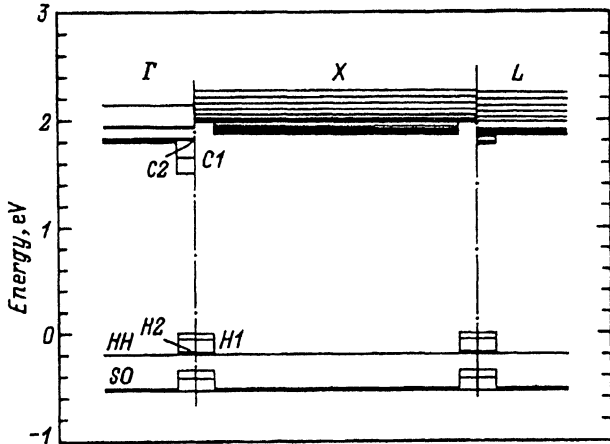


Рис. 2. Рассчитанная методом огибающей структура минизон в Γ -, X - и L -долинах зоны проводимости, а также в зоне тяжелых дырок (HH) и отщепленной спин-орбитальным взаимодействием валентной зоне (SO) в долине Γ для структуры с $d_b = 20$ нм. Отсчет энергии — от потолка валентной зоны тяжелых дырок объемного GaAs.

ными элементами по сравнению с остальными оптическими переходами для этой сверхрешетки; эти же переходы, но уже при энергиях 2.07 эВ ($C2-H2$) и 2.19 эВ ($C2-L2$), дают наибольший вклад в спектр фотolumинесценции 4 образца с $d_b = 2$ нм.

Спектры фотolumинесценции на рис. 1 свидетельствуют о заселенности в рассматриваемых условиях возбуждения (при плотности мощности возбуждающего излучения на образце 20 Вт/см² и температуре 80 К) вторых подзон зон проводимости, тяжелых и легких дырок для сверхрешеток с узкими барьерами ($d_b = 4$ и 2 нм), а для сверхрешетки с $d_b = 8$ нм наблюдаются переходы $C1-H1$ и $C3-L3$, указывающие на заселенность и третьих подзон зоны проводимости, тяжелых и легких дырок. Для близкого к структуре изолированных квантовых ям образца с $d_b = 20$ нм оказываются заселенными вторая подзона проводимости, третья подзона тяжелых дырок и верхняя подзона легких дырок.

Для структуры с $d_b = 20$ нм нами наблюдался интересный эффект при возбуждении фотolumинесценции излучением с длиной волны 488 нм, которой отвечает энергия кванта 2.54 эВ (спектр 1а на рис. 1). В указанных условиях возбуждения в спектре 1а не проявляется широкая полоса, вызванная переходами из квазиконтинуума электронных состояний выше барьера в верхние подзоны тяжелых и легких дырок и хорошо заметная в спектре 1 той же структуры, который был измерен при возбуждении на длине волны 514.5 нм (энергия кванта 2.41 эВ). С ростом избыточной энергии фотовозбужденных носителей повышается вероятность их рассеяния в X - и L -долины, минимумы которых для исследуемых структур находятся вблизи дна зоны проводимости барьерных слоев AlGaAs в точке Γ . При энергии кванта 2.54 эВ становится также возможным фотовозбуждение электронов из отщепленной спин-орбитальным взаимодействием валентной зоны в подзоны барьерных слоев. В качестве примера на рис. 2 изображена рассчитанная методом огибающей структура минизон зоны проводимости в Γ -

X - и L -долинах, а также зоны тяжелых дырок (HH) и отщепленной спин-орбитальным взаимодействием валентной зоны (SO) в Γ -точке для образца с $d_b = 20$ нм. Как видно из рисунка, в рассматриваемых структурах происходит обращение квантовых ям и барьеров в X -долине зоны проводимости, в результате чего в широких квантовых ямах в X -точке образца с $d_b = 20$ нм формируются близко расположенные подзоны. В структуре с $d_b = 20$ нм подзона $C2$ в точке Γ зоны проводимости оказывается ниже дна X -долины примерно на 50 мэВ, т.е. на величину порядка энергии оптического фонона GaAs и AlGaAs. Вследствие близости этой подзоны к краю барьера AlGaAs может образоваться квазисвязанное состояние [6], для которого волновая функция достигает максимума на границах квантовой ямы, поэтому вероятность нахождения электрона в слое GaAs высока, несмотря на локализацию подзоны $C2$ в барьерном слое. Скорость рассеяния электронов из низшей подзоны X -долины в подзоны $C1$ и $C2$ Γ -долины определяется пространственным перекрытием соответствующих электронных огибающих волновых функций [7] и, по нашей оценке, за счет слабой локализации электронов в квантовых ямах шириной 20 нм в X -долинах и возможности туннелирования через узкие барьеры GaAs должна быть выше, чем для структур с $d_b = 8, 4$ и 2 нм. Для сохранения импульса при переходе $X-\Gamma$ должен испускаться оптический фонон с большим волновым вектором. Однако в структуре с $d_b = 8$ нм подзона $C2$ в точке Γ отстоит от низшей подзоны долины X на расстояние, меньшее энергии LO-фонона GaAs, и по мере сужения барьерного слоя оказывается выше этой подзоны, поэтому следует ожидать существенного замедления рассеяния $X-\Gamma$ в структурах с узкими барьерными слоями. Именно с конкуренцией не прямых переходов, сопровождающихся быстрым переносом электронов из X - в Γ -долину зоны проводимости в реальном пространстве, мы связываем исчезновение широкой полосы в области 2.14 эВ, обусловленной переходами из квазиконтинуума электронных состояний выше барьера для структуры с $d_b = 20$ нм в верхние подзоны тяжелых и легких дырок, при возбуждении фотolumинесценции излучением с длиной волны 488 нм (спектр 1а на рис. 1). Так как расстояние между подзонами $C2$ и $C1$ в точке Γ структуры с $d_b = 20$ нм составляет 154 мэВ, т.е. превышает энергию LO-фонона, наиболее быстрый захват электронов в квантовые ямы также будет происходить с испусканием LO-фононов. Участие оптических фононов в рассеянии $X-\Gamma$ подтверждает широкая полоса, формирующаяся в области пика перехода $C2-H2$ (1.98 эВ) в этом спектре. Эта полоса, по нашему мнению, является фононной боковой полосой перехода $X-\Gamma$ и отражает плотность фононных состояний в структуре с $d_b = 20$ нм. Анализ контура этой полосы показывает, что пик перехода $C2-H2$ в спектре 1а сохраняет ту же полуширину, что и при возбуждении с энергией кванта 2.41 эВ, т.е. не происходит размытия электронного перехода в фононной боковой полосе. Такое размытие иногда наблюдается в спектрах фотolumинесценции легированных полупроводников $A^{II}B^{VI}$ и объясняется электрон-фононным взаимодействием типа взаимодействия Фано [8]. Отсутствие заметного уширения пика перехода $C2-H2$ связано с малостью вызванного фононами «перемешивания» состояний при переходе $X-\Gamma$, вероятно, из-за их расположения в различных точках реального пространства (в барьерных слоях AlGaAs и квантовых ямах GaAs соответственно).

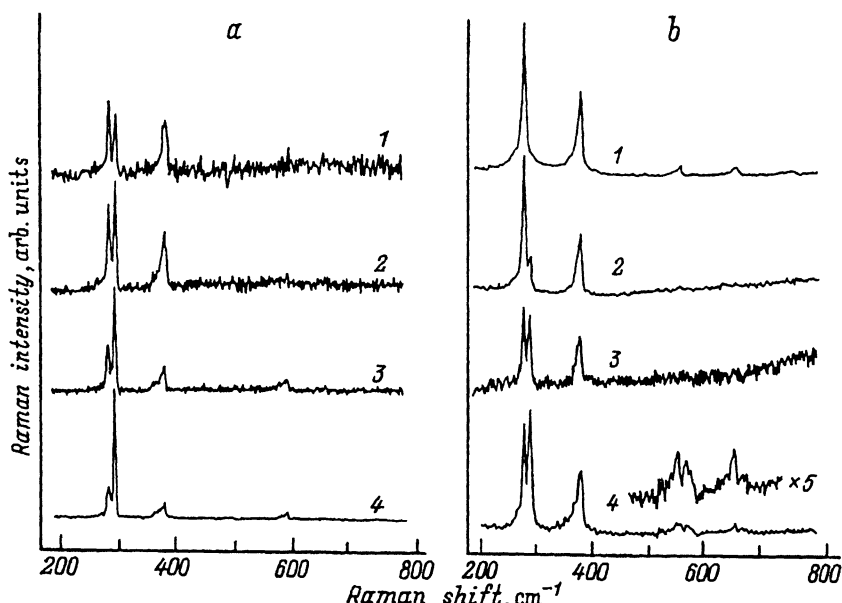


Рис. 3. Спектры КР четырех сверхрешеток GaAs/AlGaAs с $d_b = 20, 8, 4$ и 2 нм (1–4 соответственно). Температура, К: a — 80 , b — 300 . Возбуждение излучением с длиной волны 647.1 нм.

Дополнительным подтверждением справедливости нашей интерпретации пиков фотолюминесценции в области энергий, превышающих энергию перехода $C1-H1$, как вкладов экситонных переходов с участием более высоких подзон служат результаты измерений спектров резонансного КР, выполненных на тех же образцах. Действительно, при подборе энергии кванта возбуждающего излучения вблизи положений пиков фотолюминесценции, отвечающих, например, переходам $C1-H3$ и $C2-H2$ свободного экситона, следует ожидать резонансного усиления КР на оптических фононах сверхрешетки и появления в спектрах их обертонов и составных частот [12]. С помощью расчетов методом огибающей нами было установлено, что энергия перехода $C1-H3$ при температуре 77 К возрастает с 1.84 эВ (пик в спектре 1 на рис. 1) до 1.89 эВ при сужении барьерных слоев сверхрешетки от 20 до 2 нм, поэтому для возбуждения резонансного КР удобно использовать излучение с длиной волны 647.1 нм, которой соответствует энергия кванта 1.916 эВ. При этом наименьшая отстройка от резонанса и соответственно наибольший рост интенсивности КР должны наблюдаться для сверхрешетки с $d_b = 2$ нм. Спектры резонансного КР приведены на рис. 3, a , где нумерация спектров соответствует тем же сверхрешеткам, что и для спектров фотолюминесценции на рис. 1. В спектре 1 структуры с $d_b = 20$ нм проявляются пики в области 280 и 380 cm^{-1} , обусловленные соответственно GaAs- и AlAs-подобными ЛО-модами твердого раствора AlGaAs [3], который служит материалом барьерных слоев, пик ЛО-моды GaAs в области 292 cm^{-1} , отражающий вклад квантовых ям, и слабая полоса в области 585 cm^{-1} , являющаяся обертоном 2ЛО последней. По мере уменьшения d_b наблюдается резонансный рост

интенсивности фоновых пиков в спектрах КР, что согласуется с рассчитанной зависимостью от d_b энергии экситонного перехода $C1-H3$ и подтверждает связь с этим переходом пика фотолюминесценции в области 1.84 эВ на рис. 1. В спектрах на рис. 3,а обращает на себя внимание наибольшее резонансное усиление КР на LO-моды квантовых ям GaAs, которая становится доминирующей при уменьшении отстройки от резонанса с переходом $C1-H3$, причем обертоном 2LO удается зарегистрировать только для этой моды. Расчеты показывают, что относительная вероятность нахождения электрона в квантовых ямах для подзон $C1$ исследуемых структур практически не изменяется при уменьшении d_b , оставаясь на уровне ~ 0.7 , а относительная вероятность локализации дырок в квантовых ямах оказывается вблизи нуля для подзон $H3$ сверхрешеток с $d_b = 20$ и 8 нм и только при дальнейшем уменьшении d_b начинает возрастать, достигая значения ~ 0.3 при $d_b = 2$ нм. На этом основании мы связываем наблюдаемую селективность резонансного усиления фоновых мод в спектрах КР с преимущественной локализацией электронной волновой функции в квантовых ямах. Представляется интересным сравнить полученные данные с результатами измерений резонансного КР при комнатной температуре, выполненных нами ранее на тех же образцах.

Мы уже сообщали [2] об особенностях резонансного КР в рассматриваемых сверхрешетках при комнатной температуре. В этом случае резонансное КР наблюдалось вблизи перехода $C2-H2$, формируемого состояниями с преимущественным распределением волновых функций в области барьера для структур с толстыми барьерными слоями (см. рис. 1,а и 1,б в [2]). Это обстоятельство отражает рис. 3,б, где приведены спектры резонансного КР тех же сверхрешеток, измеренные при 300 К и возбуждении излучением с длиной волны 647.1 нм. Так как температурный сдвиг фоновых пиков не превышает $1 \div 2 \text{ см}^{-1}$, предложенная выше для спектров, снятых при 80 К, идентификация пиков КР 1-го порядка остается справедливой. Как видно из рис. 3,б, в спектрах 1 и 2 структур с толстыми барьерными слоями происходит резонансное усиление только LO-фононов AlGaAs с появлением в спектре новых пиков в области 558, 657 и 756 см^{-1} , обусловленных соответственно обертоном 2LO GaAs-подобной моды, составной модой $LO_{\text{GaAs}} + LO_{\text{AlAs}}$ и обертоном 2LO AlAs-подобной моды твердого раствора. При сужении барьерных слоев наблюдается эффект передислокации электронных (экситонных) возбуждений из области барьера в квантовые ямы (рис. 1,б в [2]), и вклад LO-моды квантовых ям GaAs в резонансные спектры быстро растет. При этом в спектре 4 образца с $d_b = 2$ нм (рис. 3, б) в области 570 см^{-1} проявляется составная мода LO-фонона ямы GaAs и GaAs-подобного LO-фонона барьера AlGaAs, однако обертона 2LO квантовой ямы зарегистрировано не было. Данные на рис. 3,а и б свидетельствуют об эффективности спектроскопии резонансного КР для зондирования локализации электронной волновой функции в квантово-размерных структурах.

Таким образом, в данной работе в спектрах фотолюминесценции сверхрешеток GaAs/AlGaAs, снятых при умеренных уровнях возбуждения, зарегистрированы дополнительные пики в области энергий выше положения пика квазидвумерного свободного экситона $C1-H1$. На основании расчетов структуры минизон и матричных элементов пере-

ходов методом огибающей с учетом энергий связи экситонов из [4] и данных резонансного КР эти пики связываются с вкладами экситонных переходов между подзонами $n \leq 3$. Изучены зависимости энергий переходов и заселенностей соответствующих подзон от толщины барьерных слоев. Обнаружен перенос электронов в реальном пространстве между X - и Γ -долинами зоны проводимости в структурах с широкими барьерными слоями. Методом спектроскопии резонансного КР исследована локализация электронной волновой функции в структурах GaAs/AlGaAs.

Авторы выражают благодарность Н.Н. Сибельдину и В.А. Цветкову за обсуждение результатов.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (коды проектов 93-02-2361, 93-02-2362 и 93-02-2356) и Министерства науки и технической политики РФ по Программе «Физика твердотельных наноструктур», INTAS.

Список литературы

- [1] R. Cingolani, K. Ploog, Adv. Phys., **40**, 535 (1991).
- [2] Ю.А. Алешенко, Т.Н. Заварицкая, В.В. Капаев, Ю.В. Копаев, Н.Н. Мельник. Письма ЖЭТФ, **59**, 235 (1994).
- [3] N. Saint-Cricq, G. Landa, J.B. Renucci, I. Hardy, A. Muñoz-Yagüe. J. Appl. Phys., **61**, 1206 (1987).
- [4] G. Oelgart, M. Proctor, D. Martin, F. Morier-Genaud, F.-K. Reinhart, B. Orschel, L.C. Andreani, H. Rhan. Phys. Rev. B, **49**, 10456 (1994).
- [5] E. Calleja, C. Fontaine, E. Muñoz. A. Muñoz-Yagüe, M. Fockele, J.-M. Spaeth. Semicond. Sci. Technol., **6**, 1006 (1991).
- [6] P.W.M. Blom, C. Smit, J.E.M. Haverkort, J.H. Wolter. Phys. Rev. B, **47**, 2072 (1993).
- [7] J. Feldmann, R. Sattmann, E.O. Göbel, J. Kuhl, J. Hebling, K. Ploog, R. Muralidharan, P. Dawson, C.T. Foxon. Phys. Rev. Lett., **62**, 1892 (1989).
- [8] R. Boyn, H. Zimmermann. Phys. St. Sol. (b), **140**, 163 (1987).

Редактор Л.В. Шаронова

Photoluminescence under moderate levels of excitation and resonant Raman scattering in GaAs/AlGaAs superlattices

Yu.A. Aleshchenko, T.N. Zavaritskaya, V.V. Kapayev, Yu.V. Kopaev, N.N. Mel'nik

P.N. Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, 117924 Moscow, Russia

Additional peaks at energies exceeding the quasi two-dimensional exciton peak position have been detected in photoluminescence spectra of GaAs/AlGaAs superlattices under moderate levels of excitation. On the basis of subband structure and matrix elements of transition calculations in the envelope function approximation, as well as on the basis of resonant Raman scattering data, the peaks were treated as contributions of the transitions between higher ($n \leq 3$) subbands. Dependences of the energies of these transitions, populations of the corresponding subbands and the electron wave function localization on the barrier layer width were studied. The X - Γ transport of electrons in real space was found in structures with thick AlGaAs barrier layers.