

УДК 538.975

РАССЕЯНИЕ ЭКСИТОНОВ В ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ (In,Ga)As/GaAs

© 2017 г. А. В. Трифонов, Ю. П. Ефимов, С. А. Елисеев, В. А. Ловцюс,
П. Ю. Шапочкин, И. В. Игнатьев

*Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
Санкт-Петербургский государственный университет.*

E-mail: i.ignatiev@spbu.ru

С помощью спектроскопии отражения изучено рассеяние экситонов на фонах, неизлучающих экситонах и свободных носителях в гетероструктуре с широкой квантовой ямой (In, Ga)As/GaAs. Для контролируемого создания экситонов и свободных носителей использована дополнительная монохроматическая подсветка образца излучением перестраиваемого лазера. Константы рассеяния экситонов на акустических и LO -фонах определены по температурным вариациям нерадиационного уширения экситонных резонансов. Спектры возбуждения нерадиационного уширения содержат узкие резонансы, обусловленные экситон-экситонным рассеянием, и плавно меняющийся фоновый сигнал, вызванный рассеянием на свободных носителях.

DOI: 10.7868/S0367676517120213

ВВЕДЕНИЕ

Динамика экситонов в полупроводниковых гетероструктурах может определяться процессами, имеющими фундаментальную природу, так и процессами, обусловленными различными несовершенствами структуры. В настоящее время развитие технологии выращивания гетероструктур методом молекулярной пучковой эпитаксии позволяет получать образцы с квантовыми ямами (КЯ) высокого кристаллического совершенства [1, 2]. В таких структурах фундаментальные процессы доминируют, что позволяет проводить их детальное изучение.

В данной работе рассматриваются процессы рассеяния оптически активных экситонов на различных квазичастицах, таких как фононы, неизлучающие экситоны и свободные носители. Экспериментальные исследования этих процессов проведены для гетероструктуры с КЯ (In, Ga)As/GaAs шириной $L = 95$ нм и концентрацией индия около 2%. Детальное описание структуры образца и его оптические характеристики приведены в статье [3]. Большая ширина КЯ позволяет наблюдать несколько квантово-размерных экситонных состояний в спектрах отражения и количественно изучать уширение экситонных резонансов, обусловленное различными процессами рассеяния.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Изучены спектры отражения в спектральной области экситонных переходов на размерно-квантованные уровни. В качестве источника сплошного спектра использовали фемтосекундный лазер, излучение которого направлялось приблизительно по нормали к образцу. Образец помещался в криостат замкнутого цикла охлаждения, позволяющий изменять температуру в широких пределах 4–300 К. Мощность излучения выбиралась достаточно низкой (единицы микроватт в пятне диаметром 50 мкм), при которой не происходит заметного уширения экситонных резонансов. Максимум спектра излучения смещался ниже нижайшего экситонного перехода, что позволяло избегать фоторождения заметной концентрации как экситонов, так и свободных электронов и дырок. Для контролируемого фоторождения экситонов и свободных носителей использовалось излучение непрерывного титан-сапфирового лазера, длина волны которого перестраивалась в широком диапазоне.

Пример спектра отражения изучаемой гетероструктуры показан на рис. 1. В спектре наблюдается 4 экситонных резонанса, помеченных X1, X2, X3 и X4. Резонансное отражение может быть смоделировано в феноменологической теории, описанной в [4] для одиночного экситонного перехода и обобщенной на случай нескольких переходов в работе [2]. Микроскопическое моделирование

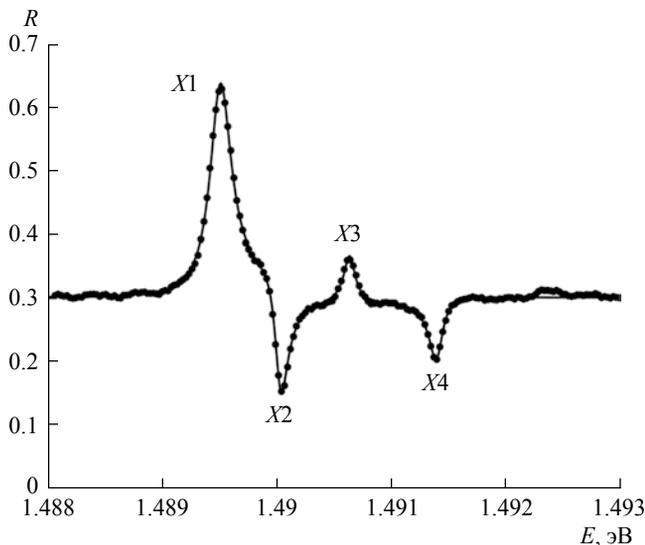


Рис. 1. Спектр отражения гетероструктуры с широкой квантовой ямой (In, Ga)As/GaAs в области экситонных переходов на размерно-квантованные состояния X1, ..., X4, измеренный в отсутствие дополнительной подсветки. Точки – эксперимент, сплошная линия – подгонка по формулам (1) и (2).

показывает, что эта теория применима для квантовых ям шириной вплоть до 150 нм [5].

В рамках феноменологической теории спектр отражения описывается выражениями:

$$R(\omega) = \left| \frac{r_s + r_{QW} e^{2i\psi}}{1 + r_s r_{QW} e^{2i\psi}} \right|, \quad (1)$$

$$r_{QW} = \sum_{N=1}^{N_{\max}} \frac{i(-1)^{(N-1)} \Gamma_{0N} e^{i\phi} N}{(\omega_{0N} - \omega) - i(\Gamma_{0N} + \Gamma_N)}. \quad (2)$$

Здесь r_s описывает амплитудное отражение от поверхности образца, r_{QW} – резонансное отражение от КЯ, ψ – набег фазы световой волны при ее прохождении от поверхности образца до слоя КЯ. Частоты ω_{0N} описывают спектральное положение экситонных резонансов, фазы ϕ_N – дополнительный набег фазы в КЯ, который может быть разным для различных экситонных резонансов в случае асимметрии потенциала КЯ [3]. Константы Γ_{0N} и Γ_N описывают радиационное и нерadiационное уширение резонансов, соответственно. Строго говоря, модель применима только для однородно уширенных резонансов. При наличии неоднородного уширения, т.е. статистического разброса частот экситонных переходов, коэффициент отражения определяется сверткой выражения (2) по неоднородно уширенному контуру. Для описания высококачественных структур, характеризующихся малым неоднородным уширением, можно в первом приближении пользоваться выражением (2),

понимая под нерadiационным уширением сумму однородной и неоднородной ширины экситонных резонансов. В дальнейшем основное внимание будет уделено поведению нерadiационного уширения Γ_N , характеризующего процессы экситонного рассеяния.

На рис. 1 показана подгонка спектра отражения, выполненная по формулам (1) и (2). Видно, что модельный спектр хорошо описывает все значимые особенности резонансов. Это позволяет получить достаточно надежные данные об уширении экситонных резонансов и, тем самым, количественно изучать процессы рассеяния.

ЭКСИТОН-ФОНОННОЕ РАССЕЯНИЕ

Рассеяние экситонов на фононах в гетероструктурах на основе GaAs при низких температурах характеризуется относительно малым сечением по сравнению с сечением аналогичных процессов в полупроводниках других типов. В частности, процессы релаксации горячих экситонов с испусканием акустических фононов характеризуются временами релаксации в несколько десятков пикосекунд [6], что соответствует нерadiационному уширению экситонных резонансов в единицы мкэВ. Такое уширение мало по сравнению с радиационным уширением экситонных резонансов. В частности, $\Gamma_{01} \approx 50$ мкэВ в изучаемой структуре.

Экситон-фононное рассеяние можно значительно усилить путем нагрева образца, сопровождающегося увеличением заселенности фононных состояний. На рис. 2 приведены результаты

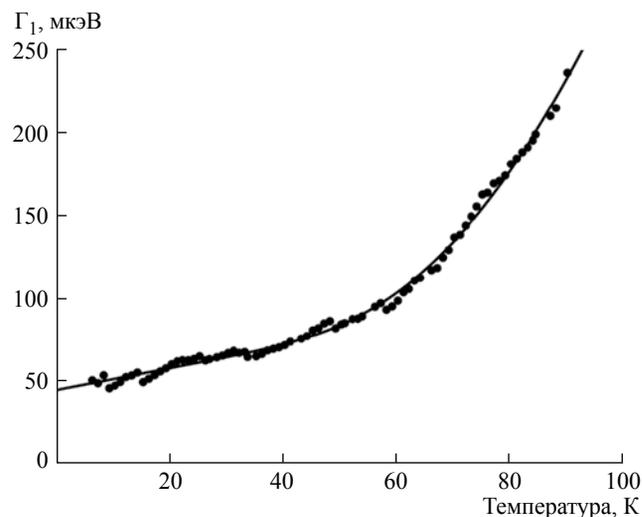


Рис. 2. Температурная зависимость нерadiационного уширения экситонного резонанса X1. Точки – значения Γ_1 , полученные из подгонки спектров отражения формулами (1) и (2); сплошная линия – подгонка по формуле (3).

измерений и анализа спектров отражений при различных температурах образца. Показана температурная зависимость нерадиационного уширения нижайшего по энергии экситонного резонанса, полученная с помощью подгонки каждого измеренного спектра формулами (1) и (2). Эта зависимость хорошо подгоняется стандартным выражением [1, 7]:

$$\hbar\Gamma_N(T) = \hbar\Gamma_N(0) + \hbar\gamma_{ac}T + \frac{\hbar\gamma_{LO}}{\exp(kT/E_{LO}) - 1}. \quad (3)$$

Здесь первый член описывает нерадиационное уширение при нулевой температуре, второй и третий члены описывают увеличение уширения за счет рассеяния экситонов на акустических и оптических фононах соответственно.

Как видно из рисунка, уширение линейно растет с температурой вплоть до $T \approx 60$ К и, тем самым, определяется рассеянием преимущественно на акустических фононах. Константы рассеяния $\hbar\gamma_{ac}$ имеют близкие значения для всех исследованных экситонных состояний. Например, $\hbar\gamma_{ac} = 0.65$ мкэВ · К⁻¹ для резонанса X1 и $\hbar\gamma_{ac} = 0.75$ мкэВ · К⁻¹ для резонанса X4. Эти величины немного меньше, чем значение $\hbar\gamma_{ac} = 1.1$ мкэВ · К⁻¹, полученное в работе [1] для узких КЯ.

При более высоких температурах наблюдается резкий рост нерадиационного уширения. Он объясняется рассеянием экситонов на термически активированных оптических фононах, преимущественно продольных оптических (LO) фононах [7], и хорошо описывается последним членом выражения (3). Подгонка дает следующие значения параметров: $\hbar\gamma_{LO} = 5.3$ мэВ и $E_{LO} = 29$ мэВ для резонанса X1, $\hbar\gamma_{LO} = 13$ мэВ и $E_{LO} = 33$ мэВ для резонанса X4. Эти данные хорошо согласуются с данными работы [1]. Полученные значения энергии LO-фононов немного ниже значения для кристалла GaAs: $E_{LO} = 37$ мэВ [8].

РАССЕЯНИЕ ЭКСИТОНОВ НА ЭКСИТОНАХ И НОСИТЕЛЯХ

При оптическом возбуждении выше нижайшего экситонного перехода могут рождаться экситоны с большим волновым вектором вдоль слоя КЯ, превышающим волновой вектор света в этом слое. Такие экситоны не взаимодействуют со светом и могут жить десятки наносекунд в высококачественных гетероструктурах [2]. В результате образуется резервуар неизлучающих экситонов, плотность которых может на несколько порядков превышать плотность излучающих экситонов. Поэтому даже при слабом оптическом возбуждении возможно накопление неизлучающих экситонов,

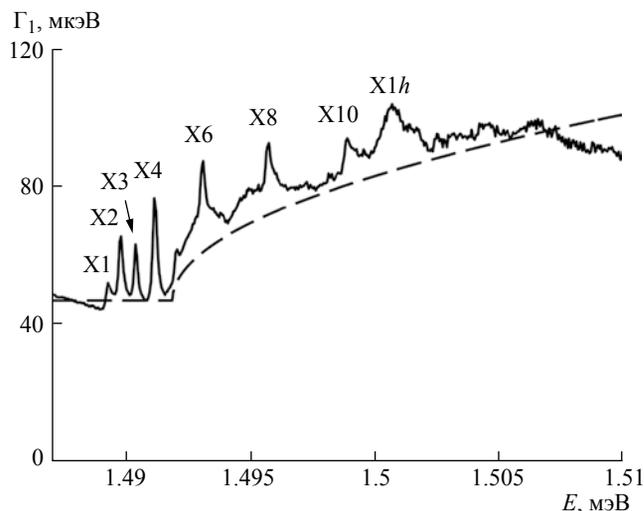


Рис. 3. Спектр возбуждения нерадиационного уширения экситонного резонанса X1 (сплошная линия). Штриховая линия – спектральный ход плотности состояний носителей, описываемый формулой (4).

столкновение с которыми может приводить к сильному уширению экситонных линий.

Для изучения рассеяния экситонов на неизлучающих экситонах и свободных носителях использовалась монохроматическая подсветка образца, энергия фотонов которой плавно сканировалась. Для каждой энергии фотонов подсветки измерялся спектр отражения, и определялось неоднородное уширение резонансов. В результате строилась спектральная зависимость неоднородного уширения, которую, по аналогии со спектром возбуждения люминесценции, можно называть спектром возбуждения неоднородного уширения.

Пример такого спектра для резонанса X1 показан на рис. 3, на котором хорошо виден ряд максимумов, помеченных X1, ..., X10 и X1h. Спектральное положение этих максимумов совпадает с положением экситонных резонансов в спектрах отражения. Поэтому их можно интерпретировать как результат резонансного возбуждения экситонов, сопровождаемого их выходом из светового конуса вследствие различных процессов рассеяния. Образующиеся при этом неизлучающие экситоны эффективно накапливаются в резервуаре. Пополнение резервуара за счет таких процессов проявляется в резонансном увеличении константы нерадиационного уширения. Аналогичный эффект наблюдается и при фоторождении экситона с легкой дыркой. Соответствующая особенность помечена на рис. 3 как X1h.

Помимо резонансных особенностей наблюдается также сплошной спектр возбуждения экситонного рассеяния в виде постоянной подставки порядка 50 мкэВ, а также плавно нарастающего фона, показанного на рис. 3 штриховой линией.

Этот фон хорошо аппроксимируется корневой зависимостью:

$$\Gamma_N = A_c \sqrt{E - E_g}, \quad (4)$$

где E_g – ширина запрещенной зоны в КЯ и A_c – подгоночный параметр. Наблюдаемый эффект плавного нарастания интенсивности экситонного рассеяния можно интерпретировать как результат фоторождения несвязанных (свободных) электронов и дырок. Плотность состояний свободных носителей и, соответственно, коэффициент поглощения света в прямозонных полупроводниках зависят по корневому закону (4) от энергии фотонов [8]. Соответственно по такому же закону происходит увеличение концентрации носителей при сохранении мощности оптической подсветки. Эффективность рассеяния экситонов свободными носителями значительно выше, чем неизлучающими экситонами [9, 10], поэтому даже малое, по сравнению с резонансным, поглощение приводит к легко наблюдаемому эффекту. Нужно отметить, что в КЯ спектр поглощения с рождением свободных носителей имеет ступенчатый характер [11]. Для изучаемой широкой КЯ, в которой наблюдается много уровней размерного квантования, энергетическое расстояние между ступеньками невелико, поэтому аппроксимация корневой функцией является хорошим приближением. Эксперимент показывает, что величины резонансных особенностей, подставки и нарастающего фона очень чувствительны к температуре образца и плотности мощности оптической подсветки. Это открывает возможности количественного изучения сечения экситон-экситонного рассеяния и рассеяния экситонов на свободных носителях в различных экспериментальных условиях. Изучение этих эффектов является предметом дальнейших исследований.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненное исследование показывает, что спектроскопия отражения в сочетании с дополнительным оптическим возбуждением позволяет изучать различные процессы рассеяния экситонов в полупроводниковых гетероструктурах. Измерение отражения при различных температурах образца позволяет изучать рассеяние экситонов на фонах и определять константы рассеяния. Полученные в данной работе константы рассеяния на акустических фонах являются рекордно низкими среди данных, опубликованных в настоящее время. Спектроскопия возбуждения нерадиационного уширения позволяет изучать спектральные зависимости экситон-экситонного рассеяния, а также рассеяния на свободных носителях. Экситон-экситонное рассеяние приводит в спектре возбуждения нерадиационного уширения к появлению узких резонансов на энергиях

размерно-квантованных экситонных состояний. Рассеяние на свободных носителях обуславливает плавно меняющийся фон в этом спектре. Количественное исследование констант рассеяния на экситонах и носителях требует дальнейшего развития экспериментальных методов, обеспечивающих определение концентрации экситонов в неизлучающем резервуаре и концентрации свободных носителей.

Изучение нерадиационного уширения с использованием методов спектроскопии отражения возможно только для высококачественных гетероструктур, в которых неоднородное уширение экситонных линий существенно меньше, чем однородное. В случае, если неоднородное уширение сопоставимо с однородным, возможно усложнение процедуры анализа спектров отражения. В частности, в формулах (1) и (2) должна быть учтена статистика разброса энергий экситонных переходов. Анализ показывает, что достоверность получаемых при этом результатов быстро снижается с увеличением неоднородного уширения.

Авторы благодарят Ф. С. Григорьеву и И.Я. Герловина за плодотворное обсуждение работы, а также ресурсный центр “Нанофотоника” СПбГУ (сайт www.photon.spbu.ru) за образец, исследованный в данной работе. Работа была выполнена в рамках совместного Российско-Греческого проекта, поддержанного Министерством Обрнауки РФ (проект № RFMEFI61617X0085).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Poltavtsev S.V., Efimov Yu.P., Dolgikh Yu.K. et al. // Sol. St. Commun. 2014. V. 199. P. 47.*
2. *Trifonov A.V., Korotan S.N., Kurdyubov A.S. et al. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. P. 115307.*
3. *Grigoryev P.S., Kurdyubov A.S., Kuznetsova M.S. et al. // Superlat. and Microstr. 2016. V. 97. P. 452.*
4. *Ivchenko E.L. Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2004.*
5. *Григорьев Ф.С. Спектроскопия экситонов в гетероструктурах с квантовыми ямами в магнитном поле // Автореферат диссертации. 2016. СПбГУ.*
6. *Shah J. Ultrafast spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures. Heidelberg: Springer-Verlag, 1996.*
7. *Lee J., Koteles E.S., Vassell M.O. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. P. 5512.*
8. *Кардона М. Основы физики полупроводников. М.: Физматлит, 2002.*
9. *Honold A., Schultheis L., Kuhl J., Tu C.W. // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. P. 6442.*
10. *Bajoni D., Senellart P., Perrin M. et al. // Phys. Stat. Solidi. (b). 2006. V. 243. P. 2384.*
11. *Davies J.H. The physics of low-dimensional semiconductors. An introduction. Cambridge university press. 1998.*