

ЭКСИТОН-ЭКСИТОННЫЕ СОУДАРЕНИЯ И КОНВЕРСИЯ ПРОСТРАНСТВЕННО НЕПРЯМЫХ ЭКСИТОНОВ В GaAs/AlGaAs СВЕРХРЕШЕТКАХ

А.И.Филин¹⁾, В.Б.Тимофеев, С.И.Губарев, Д.Биркедель^{*2)}, Дж.М.Хвам^{*2)}

*Институт физики твердого тела РАН
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

**Microelectronic Centret, Technical University of Denmark
DK 2800, Lyngby*

Поступила в редакцию 11 февраля 1997 г.

После переработки 18 марта 1997 г.

В широком диапазоне плотностей мощности оптического возбуждения исследовано соотношение концентраций прямых и пространственно не прямых экситонов в симметричной системе связанных квантовых ям – сверхрешетке на основе GaAs/AlGaAs гетероструктуры. При высоких концентрациях экситонов обнаружен эффект конверсии пространственно не прямых экситонов в прямые в результате экситон-экситонных соударений. Прямым свидетельством в пользу такого механизма конверсии является корневая зависимость концентрации не прямых экситонов от уровня оптического возбуждения. Уменьшение времени жизни не прямых экситонов с ростом плотности возбуждения, непосредственно измеренное методами времяразрешенной спектроскопии, подтверждает предлагаемое объяснение эффекта.

PACS: 78.47.+p, 78.66.Fd

1. Экситонные состояния в полупроводниковых сверхрешетках (СР) остаются предметом научного интереса в связи с важностью влияния экситонных эффектов на энергетический спектр носителей в таких системах. Перекрытие волновых функций размерно-квантовых состояний, отвечающих соседним ямам, приводит в полупроводниковых СР к появлению связанных экситонных состояний, в которых электроны и дырки пространственно разнесены и расположены в различных квантовых ямах [1–4]. Такие состояния называют пространственно непрямыми экситонами (interwell exitons). Пространственно не прямые экситоны играют важную роль при описании оптических и транспортных свойств полупроводниковых СР, в частности, именно они определяют спектр оптических переходов в случае ванье-штарковского квантования носителей в аксиальном электрическом поле [3–5]. Дополнительный интерес к исследованию не прямых экситонных состояний обусловлен экспериментами по обнаружению блоховских осцилляций и связанного с ними электромагнитного излучения [6, 7].

Пространственно не прямые экситоны могут существовать также в симметрично связанных квантовых системах: двойных квантовых ямах и сверхрешетках [3, 4, 8–10]. В последнем случае не прямые экситоны аналогичны ванье-штарковским экситонам в сверхрешетке с наклоненными зонами, однако в симметричном случае локализация имеет кулоновское происхождение. В этой ситуации ширина экситонной минизоны оказывается значительно меньше ширины соответствующих электронной и дырочной минизон.

¹⁾ e-mail: flin@issp.ac.ru

²⁾ D.Birkedal, J.M.Hvam.

В настоящей работе методами оптической время-разрешенной спектроскопии исследовались процессы, влияющие на времена жизни непрямых экситонов в симметричной системе связанных квантовых ям. Обнаружено тушение люминесценции непрямых экситонов с ростом концентрации, что связано с процессом их конверсии в прямые в результате экситон-экситонных соударений.

2. Исследовалась сверхрешетка на основе GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As гетероструктуры, выращенной методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Сверхрешетка представляла собой 20 симметрично связанных квантовых ям с ширинами GaAs-ям 80 Å и Al_{0.3}Ga_{0.7}As-барьеров между ямами 50 Å. Ранее по спектрам возбуждения люминесценции было показано, что в таких структурах реализуются близкие к оптимальным условия для наблюдения пространственно непрямых экситонов [10,11]. В частности, было установлено, что сила осциллятора непрямого экситона составляет около 10⁻¹ от соответствующей величины прямого экситона.

Изучались спектры фотолюминесценции (ФЛ) при изменении плотности мощности непрерывного (He-Ne-лазер, $\hbar\omega = 1.959$ эВ) и импульсного (пикосекундная лазерная система, $\hbar\omega = 2.033$ эВ) возбуждения. Для возбуждения и сбора сигнала ФЛ использовалась световодная техника. Регистрация сигнала ФЛ велась методом времякоррелированного счета фотонов, что позволяло регистрировать как кинетику люминесценции, так и спектры ФЛ с определенной задержкой во времени (временное разрешение 0.3 нс), включая интегральные по времени спектры.

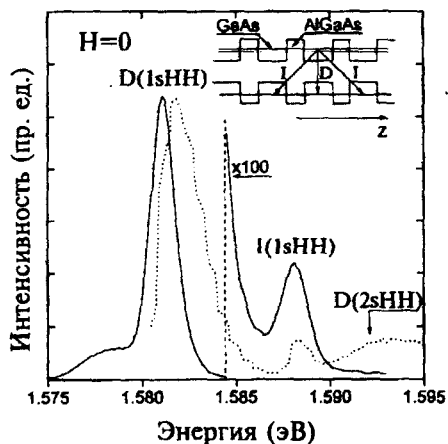


Рис. 1. Спектр ФЛ (сплошная кривая) и фрагмент спектра возбуждения ФЛ (пунктир) экситонов с тяжелыми дырками. На вставке изображена схема исследуемой структуры

3. На рис. 1 показан спектр ФЛ (сплошная кривая) и фрагмент спектра возбуждения ФЛ (пунктирная кривая) экситонов с тяжелыми дырками. Наиболее интенсивной линией в спектре является $D(1sHH)$ – состояние прямого экситона. В спектрах возбуждения ФЛ проявляется также возбужденное состояние – $D(2sHH)$, расположенное вблизи диссоциированных состояний прямых экситонов. Между линиями $D(1sHH)$ и $D(2sHH)$ наблюдается линия непрямых экситонов – $I(1sHH)$. Идентификация этих линий была проведена на основании исследования спектров возбуждения ФЛ в магнитных полях [11]. Сравнение интенсивностей линий ФЛ прямого и непрямого экситонов на рис. 1 показывает, что непрямые экситоны не находятся в тепловом равновесии с прямыми, и фактическая заселенность состояний, отвечающих непрямым экс-

тонам при $T=1.5$ К, на много порядков превосходит термически равновесную. Отметим, что в спектре ФЛ отсутствует линия $D(2sHH)$. Это означает, что релаксация прямых экситонов из возбужденного в основное состояние происходит гораздо быстрее. Относительно медленная релаксация непрямого экситона в прямой в исследуемой системе не представляется неожиданной, поскольку при слабых стационарных накачках основным механизмом релаксации является нерезонансное туннелирование электрона под барьер, что является медленным процессом. Для имеющейся в нашей системе ширины барьеров оценки времени туннелирования дают величину $\tau_{tun} \sim 10^{-9}$ с.

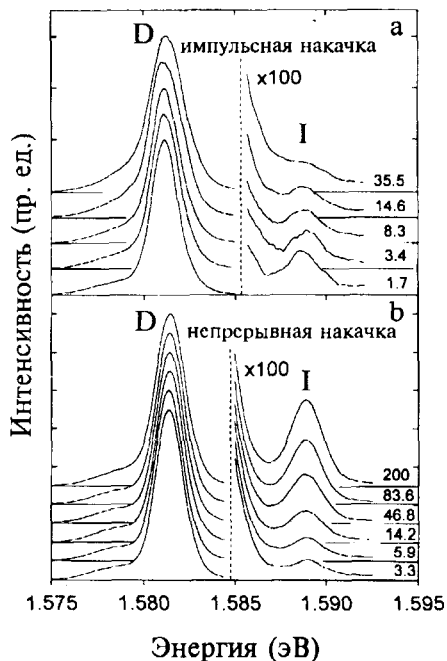


Рис. 2. а - изменение формы спектров ФЛ с ростом средней плотности мощности импульсного возбуждения P . Справа от спектров указана величина P в единицах $\text{Вт}/\text{см}^2$. Все спектры нормированы на интенсивность линии прямого экситона. б - то же при непрерывном возбуждении

4. Поведение спектров люминесценции прямых (D) и непрямых (I) экситонов при изменении плотности мощности стационарного и импульсного возбуждений в диапазоне от 10^{-3} до $10^{-1} \text{ Вт}/\text{см}^2$ иллюстрируют рис. 2а, б. Концентрация прямых экситонов n_d менялась при этом от 10^5 до 10^7 см^{-2} в случае непрерывной накачки и от 10^8 до 10^{10} см^{-2} при импульсном возбуждении. Оценка n_d сделана в предположении, что вся энергия лазерного излучения, поглощаемая в образце, расходуется на образование экситонов. Установлено, что интенсивность люминесценции прямых экситонов с хорошей точностью линейно зависит от накачки во всем исследованном диапазоне плотностей мощности. Вместе с тем люминесценция непрямых экситонов демонстрирует явно нелинейный характер: сверхлинейный рост интенсивности непрямого экситона при малых уровнях возбуждения и сублинейный рост - при высоких (рис. 3).

Тушение люминесценции непрямых экситонов при больших накачках мы связываем с процессами неупругих экситон-экситонных столкновений. С ростом концентрации непрямых экситонов заметно растет вероятность их парных соударений с преобразованием в прямые. Схематически такой процесс

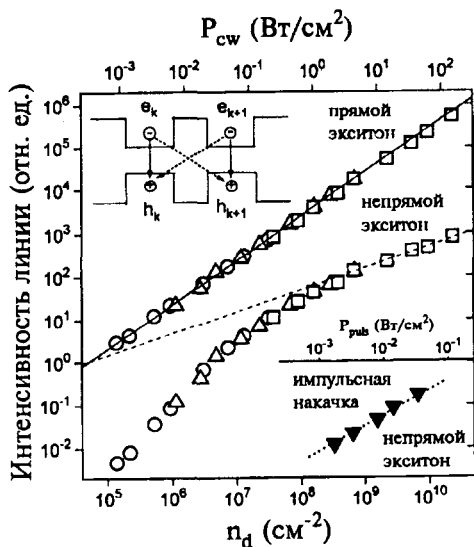


Рис. 3. Светлые символы – интенсивность линий прямого (верхний набор точек) и непрямого (нижний набор точек) экситонов в зависимости от концентрации прямых экситонов. На верхней оси показана плотность мощности непрерывного возбуждения. Темные символы – интенсивность линии непрямого экситона при импульсном возбуждении в той же шкале концентраций. Соответствующая шкала плотностей мощности приведена на дополнительной оси в нижней правой части рисунка. Прямые линии отвечают зависимостям вида $y = x^\alpha$: сплошная – $\alpha = 1.0$ (линейная зависимость); пунктирная – $\alpha = 0.5$ (корневая зависимость); точечная – $\alpha = 0.85$ (сублинейная зависимость). На вставке приведена схема процесса конверсии не прямых экситонов в прямые

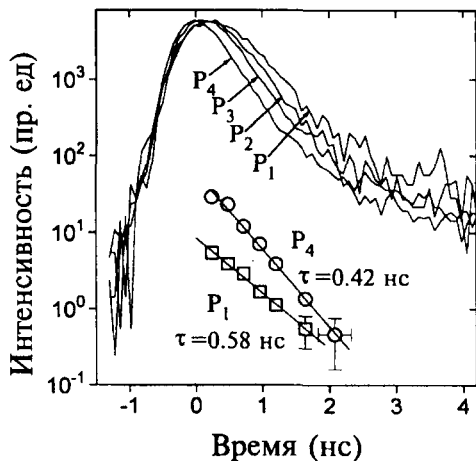


Рис. 4. Изменение кинетики ФЛ непрямого экситона с ростом накачки от $P_1 = 1.7 \cdot 10^{-3}$ до $P_4 = 3.5 \cdot 10^{-2}$ Вт/см². В нижней части рисунка – зависимости от времени интенсивностей линии непрямого экситона для двух накачек, полученные из времязадержанных спектров методом спектральной деконволюции. Прямые линии отвечают спаду с характерным временем $\tau = 0.58$ нс для P_1 и $\tau = 0.42$ нс для P_4 . Экспериментальная погрешность по оси X одинакова для всех точек и соответствует ширине временных ворот. Погрешность по оси Y указана для тех точек, где она превышает размеры символа

изображен на вставке к рис.3 и может быть записан следующим образом: $e_k h_{k+1} + e_{k+1} h_k \rightarrow e_k h_k + e_{k+1} h_{k+1}$, где $e_k h_{k+1}$ и $e_{k+1} h_k$ – не прямой экситон, состоящий из электрона и дырки, локализованных в различных (k -й и $k+1$ -й) ямах, а $e_k h_k$ и $e_{k+1} h_{k+1}$ – прямой экситон, состоящий из электрона и дырки, локализованных в одной и той же яме. Такой механизм конверсии не требует туннелирования электрона или дырки под барьер и может быть весьма эффективен при высоких концентрациях не прямых экситонов.

Кинетическое уравнение, описывающее концентрацию не прямых экситонов n_i , имеет вид

$$\frac{dn_i}{dt} = g_i - \frac{n_i}{\tau_{rad}} - \frac{n_i}{\tau_{tun}} - \frac{n_i}{\tau_{con}},$$

где g_i – член, отвечающий за генерацию не прямых экситонов, τ_{rad} – излучательное время жизни, τ_{tun} – время квантового туннелирования, τ_{con} – время конверсии не прямых экситонов в прямые. Здесь мы пренебрегаем иными каналами безызлучательного ухода не прямых экситонов, кроме туннелирования

и конверсии. Полагая, что τ_{con} есть среднее время неупругих столкновений непрямых экситонов, можно записать: $\tau_{con}^{-1} = \sigma_{ex-ex} V_{ex} n_i$, где σ_{ex-ex} - сечение экситон-экситонного рассеяния, а V_{ex} - тепловая скорость экситонов. В стационарных условиях имеем

$$g_i = \left(\frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{1}{\tau_{tun}} \right) n_i + (\sigma_{ex-ex} V_{ex}) n_i^2.$$

При высоких концентрациях линейными по n_i членами можно пренебречь. Тогда $n_i \sim (g_i)^{1/2}$. Полагая, что $g_i \sim P \sim n_d$, где P - плотность мощности возбуждения, а n_d - концентрация прямых экситонов, и учитывая, что интенсивность I_i линии непрямых экситонов $I_i = n_i / \tau_{rad}$, получаем $I_i \sim n_d^{1/2} \sim P^{1/2}$, то есть в пределе высоких концентраций интенсивность линии непрямых экситонов асимптотически стремится к корневой зависимости от плотности мощности возбуждения (пунктир на рис. 3).

Сверхлинейный рост интенсивности непрямого экситона при малых плотностях возбуждения может быть обусловлен локализацией электронов и дырок на флуктуациях случайного потенциала (флуктуациях рельефа на гетерограницах квантовых ям). При сильной локализации перекрытие волновых функций электрона и дырки в плоскости ям уменьшается, и излучательная вероятность непрямого экситона падает. С ростом накачки локализованные состояния заполняются, и основная часть непрямых экситонов оказывается выше порога подвижности. Для подвижных экситонов становится возможным механизм экситон-экситонного рассеяния, поэтому дальнейший рост плотности мощности возбуждения приводит к смене сверхлинейной зависимости интенсивности на сублинейную.

В пределе низких концентраций в кинетическом уравнении можно пренебречь квадратичным по n_i членом. Тогда, учитывая, что $\tau_{rad} \gg \tau_{tun}$, получаем $I_i \sim g_i \tau_{tun} / \tau_{rad}$. Таким образом, при низких концентрациях сверхлинейный рост интенсивности может быть связан с уменьшением τ_{rad} .

Предположение об уменьшении времени конверсии непрямых экситонов в прямые в результате экситон-экситонных соударений при высоких концентрациях подтверждается измерениями кинетики затухания ФЛ. В верхней части рис. 4 показаны кривые затухания ФЛ непрямого экситона. Уменьшение времени жизни видно уже из кинетических кривых, снятых для четырех различных накачек. Однако линия непрямого экситона расположена на сравнительно интенсивном коротковолновом плече линии прямого экситона, динамика которого может вносить искажения в кинетику исследуемой линии. В нижней части рис. 4 показаны временные зависимости интенсивности линии непрямого экситона для двух накачек, полученные из времязадержанных спектров методом спектральной деконволюции. Незначительное уменьшение времени жизни от $\tau = 0.58$ нс для $P_1 = 1.7 \cdot 10^{-3}$ до $\tau = 0.42$ нс для $P_4 = 3.5 \cdot 10^{-2}$ Вт/см² связано с тем, что в этом диапазоне накачек время жизни обусловлено в основном временем τ_{tun} , тогда как τ_{con} меняется по нашим оценкам от 15 до 5 нс.

В нижней правой части рис.3 показана зависимость интенсивности линии ФЛ непрямых экситонов от пиковой концентрации прямых экситонов при импульсном возбуждении. (Зависимость интенсивности линии прямых экситонов, имеющая, как и при непрерывной накачке, линейный характер, для простоты не приводится на рисунке.) Шкала пиковых концентраций при импульсной

накачке совмещена со шкалой концентраций при непрерывной накачке. Показанная зависимость имеет отчетливо выраженный сублинейный характер (см. также спектры на рис. 2а), описываемый степенным законом $y = x^\alpha$ с $\alpha = 0.85$. Такое значение α согласуется с тем, что пиковая концентрация в импульсном эксперименте отвечает переходной области от сверхлинейного к корневому закону.

5. В заключение отметим, что предлагаемый механизм конверсии непрямых экситонов в прямые за счет экситон-экситонных соударений наиболее эффективен в симметрично связанной системе квантовых ям с плоскими зонами. В системах с наклонными зонами такой механизм должен подавляться в результате поляризации электрона и дырки электрическим полем.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант 96-02-17535, INTAS, грант 576i95, и МНТП "Наноструктуры". Авторы благодарят К. Соренсена (K. Sørensen) за изготовленные гетероструктуры, использованные в работе.

-
1. A.Chomette, B.Lambert, B.Deveaud et al., Europhys. Lett. **4**, 461 (1989).
 2. H.Chu and Y.-C.Chang, Phys. Rev. **B39**, 10861 (1989).
 3. D.M.Whittaker, Phys. Rev. **B41**, 3238 (1990).
 4. M.M.Dignam and J.E.Sipe, Phys. Rev. **B41**, 2865 (1990); Phys. Rev. **B43**, 4097 (1991).
 5. E.Mendez, F.Agulli-Rueda and F.Hong, Phys. Rev. Lett. **60**, 3426 (1988).
 6. K.Leo, P.Bolivar, F.Bruggemann, and R.Schwedler, Solid State Commun. **84**, 943 (1992).
 7. H.Roskos, M.C.Nuss, J.Shah et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 2216 (1992).
 8. L.V.Butov, A.Zrenner, G.Abstreiter et al., Phys. Rev. **B52**, 12 153 (1995).
 9. M.Bayer, V.B.Timofeev, F.Faller et al., Phys. Rev. **B54**, 8799 (1996).
 10. D.Birkedal, K.El Sayed, G.Sanders et al., Phys. Rev. **B54**, N15 (1996).
 11. А.И.Тартаковский, В.Б.Тимофеев, В.Г.Лысенко и др., ЖЭТФ, в печати (1997).