

Накопление избытка одноименных носителей заряда и формирование трионов в мелких квантовых ямах GaAs/AlGaAs

М. В. Кочиев¹⁾, В. А. Цветков, Н. Н. Сибельдин

Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 апреля 2012 г.

В экспериментах, выполненных при различных частотах следования пикосекундных лазерных импульсов внутриямного, надбарьерного и “двухцветного” возбуждения, исследована динамика экситонов и трионов в структурах GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами (КЯ). Установлено, что ключевую роль в формировании и динамике экситон-трионной системы, определяющую ее парциальный состав и кинетические свойства, играют избыточные одноименные носители заряда, накапливающиеся в КЯ при надбарьерной накачке. Из экспериментальных данных оценено время существования в КЯ избыточных носителей заряда, которое превышает 10 мкс.

Линии, отвечающие трехчастичным экситонным комплексам (называемым заряженными экситонами или трионами) в квантовых ямах (КЯ), наблюдаются в спектрах поглощения [1], отражения [2, 3], фотолюминесценции [2–6], возбуждения фотолюминесценции [5] и резонансного рэлеевского рассеяния света [7], когда в КЯ имеется избыток свободных носителей заряда какого-либо знака – электронов или дырок, т.е. концентрации электронов и дырок различны. По видимому, свойства трионов изучены наиболее полно в легированных структурах, в КЯ которых содержится равновесный электронный или дырочный газ. Начиная с первых работ [1, 2, 4, 5], для исследования трионов в КЯ обычно используется модулированное легирование. Так, например, недавно в структурах GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As с КЯ были измерены зависимости энергии связи отрицательно заряженных трионов от расстояния между КЯ и тонким слоем (δ -слоем) ионизированных доноров, находящимся в барьерном слое [8]. В результате было показано, что эти трионы связаны кулоновским притяжением с положительно заряженными донорами. Наличие остаточных примесей в номинально не легированных структурах также может приводить к появлению равновесных электронов или дырок в КЯ.

При фотовозбуждении структуры концентрация избыточных носителей заряда может изменяться из-за преимущественного попадания в КЯ неравновесных носителей заряда того или иного знака. Можно даже осуществить “перезарядку” КЯ, когда в большинстве окажутся носители с противоположным по отношению к равновесным знаком заряда [9]. Тип и концентрация носителей заряда, накапливающихся в КЯ, зависят от энергии квантов и интенсивности воз-

буждающего света или дополнительной к основному возбуждению подсветки [3, 6, 9–14], а также от типа и концентраций легирующих примесей в барьерных слоях (см., например, [12, 13, 15]).

В структурах GaAs/AlGaAs с мелкими КЯ, являющихся объектом исследования в настоящей работе, при стационарном надбарьерном возбуждении фотонами, энергии которых лежат в некоторых определенных диапазонах, а также при надбарьерной подсветке, дополнительной к основному внутриямному фотовозбуждению, образуются положительно заряженные трионы [11]. Они формируются благодаря преимущественному захвату дырок в КЯ, происходящему с испусканием акустических фононов [11, 16].

В данной статье приводятся результаты исследования динамики экситонов и трионов в мелких КЯ номинально не легированной структуры GaAs/AlGaAs при ее внутриямном и надбарьерном возбуждении периодически повторяющимися пикосекундными лазерными импульсами. Продемонстрировано, что при надбарьерном возбуждении накопление в КЯ избытка неравновесных одноименных носителей заряда играет ключевую роль в формировании экситон-трионной системы и определяет не только ее парциальный состав, но и динамические свойства. В частности, показано, что времена затухания экситонной и трионной люминесценции сильно уменьшаются с ростом концентрации избыточных носителей заряда. Из экспериментальных данных оценено время существования (накопления) избыточного заряда в КЯ, которое в условиях наших опытов составило ~ 10 мкс.

Следует подчеркнуть, что “время жизни” избыточных носителей заряда, накопленных в КЯ, значительно превышает времена жизни экситонов и трионов (в нашем случае на 4–5 порядков величины) и

¹⁾ e-mail: kochievmv@mail.ru

может достигать сотен миллисекунд [15]. По-видимому, оно зависит от материалов, из которых изготовлена гетероструктура, ее дизайна, примесного состава в барьерных слоях и других факторов. По сути дела, в настоящей работе показано, каким образом эти долгоживущие носители заряда, сами оставаясь “за кадром”, проявляются в типичных экспериментах по исследованию кинетических процессов в неравновесной электронно-дырочной системе в КЯ на временах пикосекундного масштаба.

В работе исследовалась кинетика фотолюминесценции (ФЛ) структуры GaAs/Al_{0.05}Ga_{0.95}As, содержащей две мелкие туннельно изолированные КЯ шириной $d = 3$ и 4 нм. Толщина барьерного слоя Al_{0.05}Ga_{0.95}As между ямами составляла 60 нм (ширина запрещенных зон $E_g^{\text{GaAs}} = 1.519$ эВ, $E_g^{\text{AlGaAs}} = 1.600$ эВ при $T = 4.2$ К)²⁾. Интегрированные по времени спектры ФЛ измерялись с помощью дифракционного спектрометра с охлаждаемой ПЗС-матрицей со спектральным разрешением 0.15 мэВ. Для регистрации спектрально-кинетических зависимостей ФЛ использовалась стрик-камера, сопряженная со спектрометром. Временное разрешение установки составляло ≈ 60 пс, спектральное – 0.4 мэВ. Для возбуждения ФЛ структуры использовались излучение перестраиваемого Ti-сапфирового лазера с синхронизацией мод, генерировавшего непрерывную периодическую последовательность импульсов длительностью 2.5 пс с частотой повторения, равной ≈ 76 МГц, и вторая гармоника этого излучения. Для генерации второй гармоники (ВГ) использовался нелинейный кристалл β -ВаВ₂О₄ (ВВО). Излучения лазера (первая гармоника, ПГ) и ВГ фокусировались в одну и ту же точку образца в пятно диаметром около 0.5 мм. Энергия в импульсе возбуждения ПГ составляла $E_{\text{FH}} \approx 14$ пДж, в импульсе ВГ – $E_{\text{SH}} \approx 56$ пДж. При “двухцветном” возбуждении структуры импульсами первой и второй гармоник временной интервал между ними можно было изменять с помощью оптической линии задержки, через которую проходил луч ПГ. Для изменения частоты следования импульсов возбуждения использовался акустооптический селектор лазерных импульсов (*pulse picker*), установленный перед удвоителем частоты. С его помощью частоту следования импульсов можно было ступенчато уменьшать в $16+2n$ раз ($n = 0, 1, 2, \dots$). Исследуемый

²⁾ Мелкие КЯ обладают простейшим электронным спектром. Они содержат по одному уровню размерного квантования для носителей заряда каждого типа: электронов, тяжелых и легких дырок. Параметры экситонных спектров в КЯ исследованной структуры приведены в работе [17].

образец находился в оптическом гелиевом криостате при температуре $T = 5$ К.

Были выполнены эксперименты трех типов, отличавшихся способом возбуждения образца: внутреннее возбуждение ($h\nu_{\text{FH}} \approx 1.595$ эВ) излучением ПГ; надбарьерное возбуждение ВГ этого излучения; “двухцветное” двухимпульсное возбуждение импульсами ПГ и ВГ, задержанными друг относительно друга.

На рис. 1 показаны интегрированные по времени спектры люминесценции структуры, нормированные

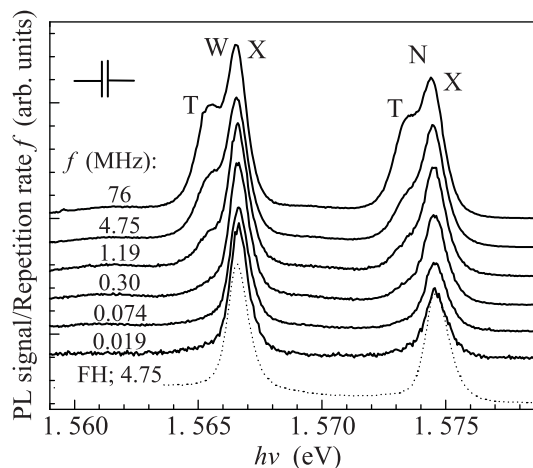


Рис. 1. Интегрированные по времени спектры люминесценции структуры при ее возбуждении импульсами ВГ (сплошные линии) при различных частотах следования импульсов f . Нижний спектр (точечная линия) – возбуждение импульсами ПГ с $f = 4.75$ МГц. Все спектры нормированы на частоту f

на частоту следования импульсов накачки f , при ее возбуждении импульсами ПГ или ВГ. Спектр люминесценции содержит две полосы. Одна из них (низкоэнергетическая) отвечает излучению широкой (W) КЯ, а вторая, расположенная примерно на 8 мэВ выше по энергии, – излучению узкой (N) КЯ. При возбуждении структуры импульсами ПГ в спектре люминесценции каждой из ям при всех частотах повторения импульсов f присутствует только линия рекомбинационного излучения свободных экситонов с тяжелой дыркой (нижний спектр на рис. 1, показанный точечной линией), интенсивность которой в расчете на один импульс возбуждения не зависит от f . Иная картина наблюдается при возбуждении образца импульсами излучения ВГ. В этом случае при увеличении частоты следования импульсов возбуждения в спектрах люминесценции обеих КЯ с низкоэнергетической стороны от экситонных линий появляются линии излучения трионов (рис. 1). Их интенсив-

ность, приведенная к одному импульсу возбуждения, возрастает при увеличении частоты следования импульсов, в отличие от интенсивностей линий излучения экситонов. Интенсивность последних достаточно слабо зависит от f . Возникновение в спектрах ФЛ линий люминесценции трионов свидетельствует о появлении в КЯ избытка носителей заряда одного знака (в нашем случае дырок [11]) при возбуждении структуры излучением ВГ. Увеличение же их интенсивности с ростом f говорит о накоплении избыточных носителей заряда в КЯ за время порядка их “времени жизни” τ_h . На низких частотах, $f \ll \tau_h^{-1}$, избыточного заряда не накапливается и концентрация трионов определяется избытком носителей заряда, созданным одним импульсом ВГ. Этого количества избыточных носителей заряда недостаточно для отчетливого наблюдения трионных линий излучения на фоне низкочастотных крыльев экситонных линий (два нижних спектра, изображенных на рис. 1 сплошными линиями; $f \leq 0.074$ МГц). Из приведенных на рис. 1 данных можно оценить время существования избыточных носителей заряда в КЯ как $\tau_h > 10$ мкс.

В целом, наблюдавшееся поведение спектров люминесценции КЯ соответствует результатам, полученным на этой же структуре в условиях стационарного внутриямного и надбарьерного фотовозбуждения [11].

При исследовании динамики ФЛ экситонов и трионов для каждой частоты следования импульсов возбуждения регистрировалась серия из трех спектрально-временных изображений интенсивности люминесценции КЯ структуры: при возбуждении импульсами излучения ПГ, импульсами ВГ и при двухцветном возбуждении структуры импульсами обеих гармоник (рис. 2). На рис. 2 приведены данные для более широкой ($d = 4$ нм) КЯ структуры. Поскольку результаты, полученные для обеих ям структуры, в качественном отношении практически идентичны, далее мы будем говорить о более широкой КЯ. К ней относятся и приведенные ниже численные значения различных величин.

Как и спектры ФЛ, интегрированные по времени (рис. 1), спектрально-временные изображения, полученные при возбуждении структуры импульсами ПГ и ВГ (рис. 2а, б), показывают, что в первом случае (внутриямное возбуждение) в спектре люминесценции КЯ имеется лишь линия излучения экситонов, а во втором (надбарьерная накачка) в нем содержатся линии экситонов и трионов. Кроме того, спектрально-временные изображения дают информацию о динамике рекомбинационного излучения экситонов и трионов в КЯ (рис. 3а). При возбуждении

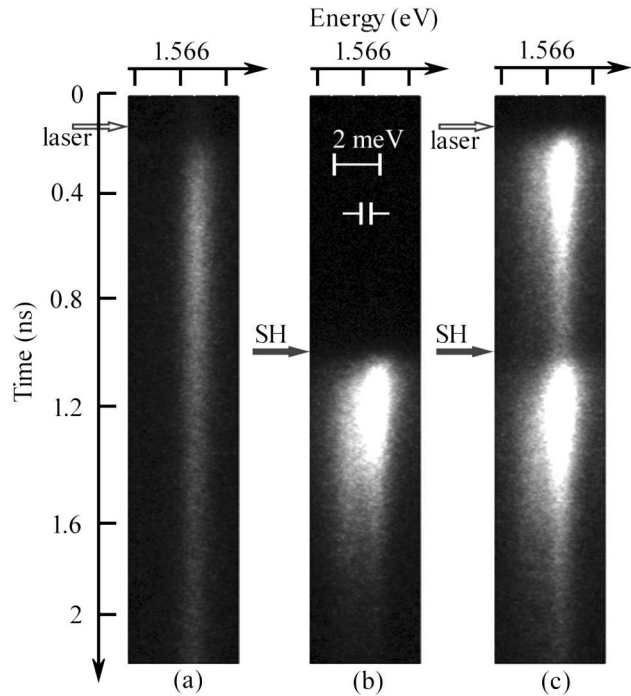


Рис. 2. Спектрально-временные изображения интенсивности люминесценции более широкой ($d = 4$ нм) КЯ структуры при возбуждении импульсами излучения ПГ (а), импульсами ВГ (б) и двухцветном возбуждении импульсами обеих гармоник (с). Распределение интенсивности люминесценции характеризуется изменением яркости изображения. Стрелками отмечены моменты возбуждения образца импульсами ПГ (лазер) и ВГ (SH). Частота следования $f = 4.75$ МГц

структуры импульсами ПГ импульсы люминесценции экситонов имеют относительно затянутый передний фронт, почти плоскую вершину и длинный экспоненциальный задний фронт (постоянная времени затухания люминесценции $\tau_X^{FH} = 1.2$ нс; здесь и далее численные значения постоянных времени приведены для частоты $f = 4.75$ МГц). Форма импульса люминесценции экситонов при возбуждении импульсами ВГ существенно иная. Он имеет более резкий передний фронт, острый максимум и значительно более короткий также экспоненциальный задний фронт (постоянная времени затухания $\tau_X^{SH} = 260$ пс). Возрастание интенсивности экситонной люминесценции после импульса ВГ сопровождается ростом интенсивности рекомбинационного излучения трионов, которая достигает максимума на 130 пс позже, чем интенсивность излучения экситонов (рис. 3а).

В соответствии с приведенными на рис. 1 данными при увеличении частоты следования импульсов возбуждения ВГ возрастает отношение интенсивностей в максимумах кинетических зависимостей три-

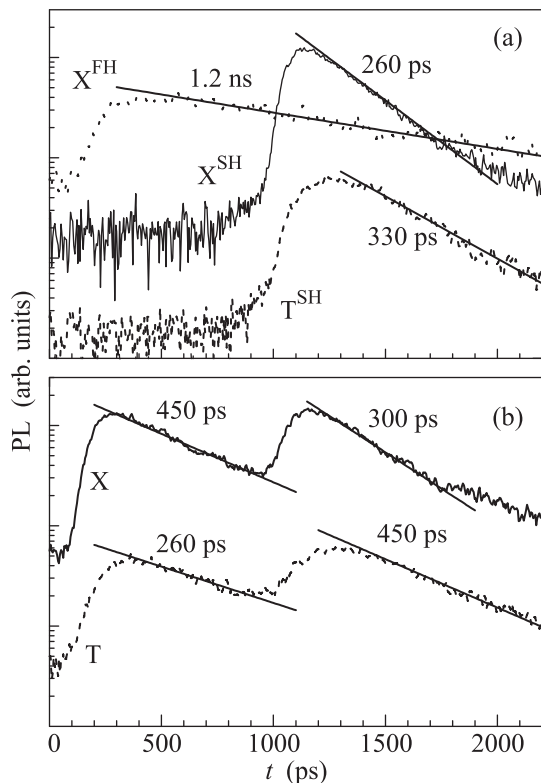


Рис. 3. Кинетические зависимости интенсивностей люминесценции экситонов (x) и трионов (t), полученные путем обработки спектрально-временных изображений, показанных на рис. 2. (a) – Возбуждение импульсами излучения одной из гармоник: ПГ (FH) или ВГ (SH). (b) – Возбуждение импульсами обеих гармоник. Прямые линии – аппроксимация экспоненциальным затуханием (соответствующие постоянные времени приведены на рисунках). Для удобства кинетики люминесценции экситонов на обоих рисунках сдвинуты вверх

онной и экситонной люминесценции (рис. 4). Как уже было отмечено выше, это говорит о накоплении в КЯ избытка дырок, концентрация которых увеличивается с ростом частоты повторения f . Рост частоты повторения приводит также к существенному уменьшению постоянных времени затухания люминесценции экситонов и трионов (рис. 4). Последнее связано с тем, что вследствие рассеяния экситонов на дырках возрастает эффективность их релаксации в излучательные состояния вблизи дна экситонной зоны и, таким образом, ускоряется процесс излучательной гибели экситонов [18]. При этом долгоживущие дырки за время между последовательными импульсами возбуждения успевают прийти в тепловое равновесие с кристаллической решеткой, тогда как экситоны, созданные текущим импульсом накачки, разогреты. Сказанное относится и к излучательному

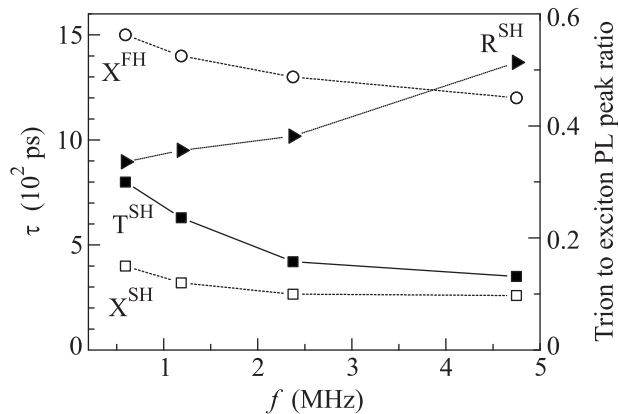


Рис. 4. Зависимости времен жизни (шкала слева) экситонов при возбуждении импульсами ПГ (пустые кружки) и ВГ (пустые квадраты) и трионов (заполненные квадраты), а также отношения максимальных значений интенсивностей излучения трионов и экситонов на соответствующих кинетических зависимостях (шкала справа, треугольники) от частоты повторения импульсов возбуждения. Экспериментальные значения соединены отрезками для удобства восприятия

распаду трионов. Хотя они благодаря наличию третьей частицы, которая может унести импульс триона после его гибели с испусканием фотона, оптически активны в большей по сравнению с экситонами области k -пространства, вероятность излучательного распада максимальна для трионов с малыми волновыми векторами. К тому же количество “холодных” трионов может возрастать за счет связывания дырок с экситонами, термализованными благодаря столкновениям с дырками. Отметим, что полученные нами данные об уменьшении времени затухания люминесценции трионов с ростом концентрации избыточных дырок в КЯ (с ростом частоты следования импульсов ВГ) находятся в качественном согласии с результатами измерений зависимости времени жизни трионов от интенсивности стационарной надбарьерной подсветки [18].

Заметим, что время жизни экситонов, образовавшихся в КЯ при внутриямном возбуждении структуры импульсами ПГ, также уменьшается при возрастании частоты следования импульсов f , хотя и не падает до значений, отвечающих возбуждению структуры импульсами ВГ (рис. 4). По-видимому, это означает, что при данной энергии квантов возбуждения в КЯ также накапливается некоторый избыток одноименных носителей заряда. Однако его недостаточно для формирования трионов в количестве, доступном для наблюдения, а также для уменьшения

времени жизни экситонов до значений, наблюдающихся при возбуждении структуры импульсами ВГ.

Наиболее ярко эффект накопления в КЯ избытка одноименных носителей заряда проявляется в экспериментах с “двухцветным” возбуждением структуры импульсами ПГ и ВГ, задержанными друг относительно друга³⁾. Из сравнения спектрально-временных изображений (рис. 2) видно, что дополнительное возбуждение импульсами ПГ слабо изменяет спектр и кинетику люминесценции, возникающей при накачке только импульсами ВГ (ср. изображения на рис. 2с и b). В то же время спектр, интенсивность и динамика излучения, вызванного возбуждением образца только импульсами ПГ, при двухцветной накачке изменяются кардинально (ср. рис. 2а и с). Теперь импульс экситонной люминесценции, возникающей после импульса возбуждения ПГ, имеет примерно такую же форму (резкий передний фронт, острая вершина и довольно быстрый спад), что и при накачке импульсами одной ВГ (рис. 3b). Постоянная времени затухания излучения экситонов (450 пс) стала примерно в 2.7 раза меньше, чем при возбуждении импульсами одной ПГ, а пиковая интенсивность экситонной люминесценции возросла почти в три раза. Кроме того, как видно из рис. 2с, в спектре люминесценции, возбуждаемой ПГ при двухцветной накачке, появляется линия излучения трионов. Кинетические зависимости интенсивности излучения экситонов и трионов для двухцветного возбуждения представлены на рис. 3b. Сравнение кинетических зависимостей, приведенных на рис. 3а и b, показывает, что форма импульсов излучения экситонов и трионов, возникающих после импульса ВГ при двухцветном возбуждении, не отличается заметно от формы этих импульсов, полученных при возбуждении только импульсами ВГ, если не считать некоторого изменения времен нарастания и спада.

При достаточно высоких частотах следования импульсов возбуждения ($f \gg \tau_h^{-1}$) наблюдавшаяся при двухцветном возбуждении картина практически не зависела от задержки между импульсами ПГ и ВГ, и даже от того, в какой последовательности они попадали на структуру. Это означает, что сильнее изменения парциального состава (появление трионов) и динамики экситонной системы, созданной импульсом ПГ, при двухцветном возбуждении связаны с накоплением в КЯ долгоживущих избыточных ды-

рок, которое происходит при возбуждении структуры импульсами ВГ. Обсуждение результатов опытов с двухцветным возбуждением сводится, по существу, к сказанному выше по поводу экспериментов с накачкой структуры импульсами ВГ. Поэтому здесь мы только добавим, что почти пропорциональное возрастание пиковой интенсивности экситонной люминесценции, сопровождающее уменьшение времени жизни экситонов, созданных импульсом ПГ при дополнительном возбуждении импульсами ВГ, подтверждает данную выше интерпретацию ускорения процесса излучательной гибели экситонов.

Таким образом, в экспериментах с внутриямным, надбарьерным и двухцветным возбуждением пикосекундными лазерными импульсами структуры с мелкими квантовыми ямами установлено, что избыток неравновесных одноименных носителей заряда, накапливающихся в КЯ при надбарьерном возбуждении, играет ключевую роль в формировании и динамике экситон-трионной системы, определяя не только ее парциальный состав, но и кинетические свойства.

Авторы благодарны М.Л. Скорикову и В.В. Белых за плодотворные обсуждения и замечания. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 11-02-01310), программы Президиума РАН # 24, ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России” (гос. контракт # П 546) и Учебно-научного комплекса ФИАН.

1. K. Kheng, R. T. Cox, M. Y. d'Aubigne et al., *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1752 (1993).
2. A. J. Shields, M. Pepper, D. A. Ritchie, and M. Y. Simmons, *Adv. Phys.* **44**, 47 (1995).
3. D. R. Yakovlev, V. P. Kochereshko, R. A. Suris et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3974 (1997).
4. K. Kheng, R. T. Cox, V. P. Kochereshko et al., *Superlatt. Microstruct.* **15**, 253 (1994).
5. G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 976 (1995).
6. J. L. Osborne, A. J. Shields, M. Pepper et al., *Phys. Rev. B* **53**, 13002 (1996).
7. Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков, В. А. Цветков, *Письма в ЖЭТФ* **76**, 732 (2002).
8. V. V. Solovyev and I. V. Kukushkin, *Phys. Rev. B* **79**, 233306 (2009).
9. О. В. Волков, В. Е. Житомирский, И. В. Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **67**, 707 (1998).
10. О. В. Волков, В. Е. Житомирский, И. В. Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **66**, 730 (1997).
11. N. N. Sibeldin, M. L. Skorikov, and V. A. Tsvetkov, *Nanotechnology* **12**, 591 (2001).

³⁾ Недавно “одноцветное” двухимпульсное внутриямное лазерное возбуждение пикосекундными импульсами ПГ было использовано для выжигания провалов в динамике экситонов в КЯ и поляритонов в микрорезонаторе с встроенными КЯ [19].

12. R. T. Cox, R. B. Miller, K. Saminadayar, and T. Baron, *Phys. Rev. B* **69**, 235303 (2004).
13. M. T. Portella-Oberli, J. Berney, L. Kappei et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 096402 (2009).
14. M. D. Fraser, H. H. Tan, and C. Jagadish, *Phys. Rev. B* **84**, 245318 (2011).
15. A. Naumov, D. Mi, M. D. Sturge et al., *J. Appl. Phys.* **78**, 1196 (1995).
16. П. С. Алексеев, М. С. Кипа, В. И. Перель, И. Н. Ясевич, *ЖЭТФ* **133**, 921 (2008).
17. Е. А. Муляров, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков и др., *Письма в ЖЭТФ* **70**, 613 (1999).
18. D. Vajoni, M. Perrin, P. Senellart et al., *Phys. Rev. B* **73**, 205344 (2006).
19. A. Amo, D. Sanvitto, and L. Viña, *Semicond. Sci. Technol.* **25**, 043001 (2010).