

Модуляция спектров резонансного рэлеевского рассеяния света GaAs/AlGaAs структур с квантовыми ямами при надбарьерной подсветке

Н. Н. Сибельдин¹⁾, М. Л. Скориков, В. А. Цветков

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 октября 2002 г.

Обнаружено, что дополнительная подсветка излучением с энергией фотонов, превышающей ширину запрещенной зоны в барьерных слоях, приводит к сильной (глубиной до 40% при использовавшихся мощностях подсветки) модуляции интенсивности света, упруго рассеянного при резонансном возбуждении экситонных состояний в квантовых ямах GaAs/AlGaAs структур. Наблюдавшийся эффект связан, по-видимому, с перераспределением сил осцилляторов экситонных переходов вследствие образования заряженных трехчастичных экситонных комплексов (трионов), возникающих благодаря преимущественному захвату в квантовые ямы одноименно заряженных неравновесных носителей заряда (в нашем случае дырок).

PACS: 73.21.Fg, 78.35.+c, 78.67.De

Рассеяние света возникает благодаря статическим или динамическим флуктуациям показателя преломления среды. Интенсивность рассеянного света сильно возрастает, когда частота распространяющегося через среду света близка к частоте какого-либо оптического перехода в этой среде (резонансное рассеяние [1]). Резонансное рэлеевское²⁾ рассеяние (PPP) при возбуждении в состоянии экситонов с тяжелой дыркой в полупроводниковых структурах с квантовыми ямами (КЯ) впервые наблюдалось Хегарти и др. [2, 3] и было объяснено наличием латеральных флуктуаций ширины КЯ, которые приводят к разбросу энергетического положения экситонных уровней, то есть резонансной частоты экситонных переходов. Резонансное рассеяние может служить мощным методом изучения эффектов, связанных с неоднородностями в пространственном распределении плотности электронных состояний различного типа (локализованных и свободных экситонов, примесных центров и пр.), и довольно широко применяется в последнее время для исследования полупроводников и наноструктур на их основе (см., например, [4, 5] и ссылки там).

Внешние воздействия (магнитное или электрическое поле, деформация образца и др.) могут существенно влиять на электронный спектр полупроводника или полупроводниковой наноструктуры и, соответ-

ственно, на PPP. Одним из таких воздействий является дополнительная подсветка образца излучением с длиной волны, отличной от длины волны рассеиваемого света. Подобно тому, как это имеет место в экспериментах по фотоотражению и фотопоглощению [6], подсветка может приводить к изменению внутренних электрических полей, заполнению электронных состояний и пр. и, таким образом, влиять на спектр и интенсивность PPP. При внутриямном возбуждении экситонов в полупроводниковых структурах дополнительная подсветка излучением с энергией квантов, превышающей ширину запрещенной зоны в барьерных слоях, может вызывать образование или перезарядку трехчастичных экситонных комплексов (трионов) в КЯ, изменение концентрации которых приводит к соответствующей трансформации спектров фотолюминесценции (ФЛ) и возбуждения ФЛ (ВФЛ) [7, 8]. Следовало ожидать, что в этих условиях будут изменяться также и спектры PPP.

В данной работе мы сообщаем об обнаружении сильной модуляции интенсивности PPP света при возбуждении экситонов с тяжелой дыркой в мелких КЯ GaAs/AlGaAs структур под влиянием дополнительной надбарьерной подсветки образца в условиях, когда подсветка приводит к образованию трионов в КЯ. По-видимому, основной вклад в наблюдавшийся эффект связан с возникновением при подсветке дополнительного канала электрон-фотонного взаимодействия, а именно, с возможностью прямого (резонансного) возбуждения трионов. В результате PPP возникает на частоте “трионного” перехода, а силы

¹⁾ e-mail: sibeldin@mail1.lebedev.ru

²⁾ То есть упругое рассеяние на оптических неоднородностях с линейными размерами, много меньшими длины световой волны.

осцилляторов переходов в состояния свободного экситона и, соответственно, интенсивность света, рассеянного при этих переходах, уменьшаются.

Исследованная структура содержала две туннельно-изолированные GaAs КЯ шириной 30 и 40 Å, разделенные барьером Al_{0.05}Ga_{0.95}As шириной 600 Å и ограниченные с обеих сторон барьерными слоями Al_{0.05}Ga_{0.95}As толщиной 1000 Å. Ширина запрещенной зоны в барьерных слоях E_{gb} составляла около 1.6 эВ, а глубина потенциальных ям для электронов и дырок – 45 и 30 мэВ, соответственно. КЯ с такими параметрами должны иметь по одному одночастичному уровню размерного квантования для частиц каждого сорта: электронов и тяжелых и легких дырок, хотя, на самом деле, их экситонный спектр более сложен, чем следует из этой простой одночастичной картины [9].

Источником возбуждающего излучения служил титан-сапфировый лазер, перестраиваемый в диапазоне от 1.49 до 1.77 эВ. Для дополнительной надбарьерной подсветки образца использовался He-Ne-лазер, энергия квантов которого (1.96 эВ) значительно превышает E_{gb} . Пучки обоих лазеров совмещались друг с другом и фокусировались на поверхность образца в пятно диаметром около 3 мм. Максимальная интенсивность падающего на образец излучения для Ti-сапфирового лазера составляла примерно 1 Вт/см², а для He-Ne-лазера – 10⁻² Вт/см². В большей части экспериментов мощность Ti-сапфирового лазера подбиралась таким образом, чтобы интенсивность люминесценции, возбуждаемой порознь обоими источниками, была примерно одинаковой. Пучок возбуждающего либо подсвечивающего лазера модулировался механическим прерывателем с частотой 1 кГц. Вторичное излучение (люминесценция и рассеянный свет) собиралось с возбуждаемой поверхности образца (то есть в геометрии “на отражение”), анализировалось монохроматором МДР-2 (относительное отверстие – 1:2.5, фокусное расстояние коллиматора – 400 мм, решетка – 600 штр./мм) и детектировалось охлаждаемым ФЭУ. Для регистрации сигнала фотоумножителя использовалась техника синхронного детектирования. При измерениях образец находился в сверхтекучем гелии при температуре ≈ 2 К.

Особенности излучательной рекомбинации в исследованной структуре были описаны нами ранее [8]. Было установлено, что при возбуждении структуры излучением He-Ne-лазера спектр рекомбинационного излучения каждой КЯ состоит из двух линий: высокоэнергетическая компонента отвечает люминесценции экситонов, а низкоэнергетичес-

кая – трионов; спектр люминесценции узкой (шириной 30 Å) КЯ структуры приведен на рис. 1а. В то же время, линии трионов отсутствовали в спектре ФЛ

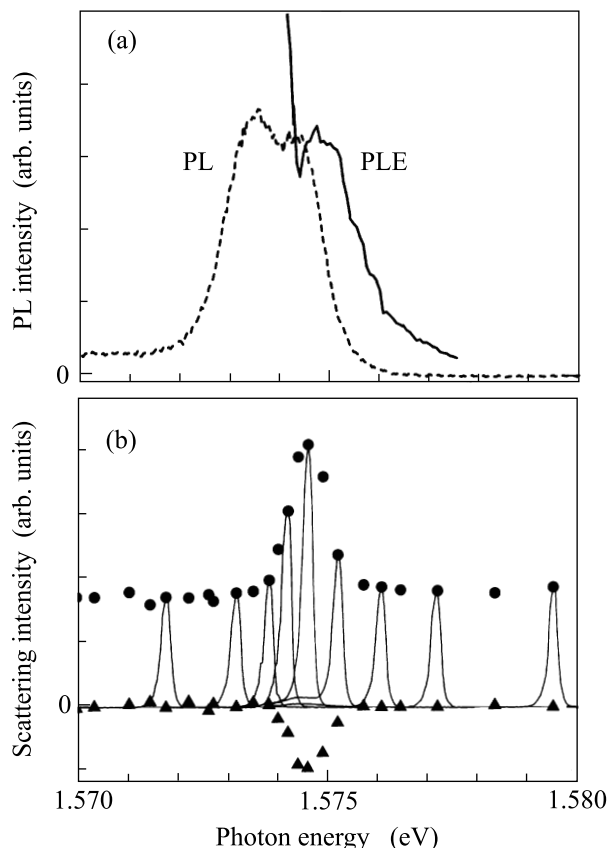


Рис.1. (а) Спектр ФЛ при возбуждении излучением He-Ne-лазера (штриховая кривая) и спектр ВФЛ в области переходов в состояния экситонов с тяжелой дыркой (сплошная кривая) узкой КЯ структуры. (б) Зависимости интенсивности РРР света в отсутствие подсветки I_{off} (кружки) и ее изменения $\Delta I = I_{on} - I_{off}$ при включении подсветки излучением He-Ne-лазера (треугольники) от энергии фотонов возбуждающего света $\hbar\omega_{exc}$; тонкие сплошные линии – спектры вторичного излучения при некоторых значениях $\hbar\omega_{exc}$

при резонансном возбуждении излучением Ti-сапфирового лазера свободных экситонов с тяжелой дыркой в КЯ; участок спектра ВФЛ узкой КЯ, отвечающий этому экситонному переходу, также представлен на рис. 1а. Эти результаты показывают, что в отсутствие освещения образца концентрация носителей заряда (электронов или дырок) в КЯ, при связывании экситонов с которыми образуются трионы, достаточно мала. При надбарьерном возбуждении излучением He-Ne-лазера вследствие различия в эффективности захвата в КЯ электронов и дырок в ямах появляется

избыток носителей заряда того или иного знака (по-видимому, в нашем случае дырок), и, таким образом, создаются условия для образования трионов. При одновременном возбуждении образца светом обоих лазеров соотношение между интенсивностями экситонной и трионной компонент спектра люминесценции определяется скоростями кинетических процессов (захват носителей заряда в КЯ, формирование экситонов и трионов, рекомбинационные процессы) в неравновесной электронно-дырочной системе и зависит от плотности возбуждения каждым из этих лазеров [8].

На рис.1b тонкими линиями показаны несколько спектров вторичного свечения узкой КЯ структуры, полученных при возбуждении излучением Ti-сапфирового лазера с различной энергией световых квантов. Энергетическое положение максимума каждой спектральной линии отвечает энергии квантов возбуждения $\hbar\omega_{\text{exc}}$, а ее ширина определяется аппаратной функцией спектрометра. То есть во всех спектрах доминирует вклад упругого рассеяния возбуждающего света. При $\hbar\omega_{\text{exc}}$, попадающих в полосу резонансного ВФЛ экситонов с тяжелой дыркой (рис.1a), в спектре вторичного излучения также присутствует низкоэнергетическое крыло значительно меньшей, чем у линии рассеяния, интенсивности, обусловленное люминесценцией (при данном усилении оно заметно проявляется у третьей и четвертой кривых справа). Кружками на рис.1b дана зависимость интенсивности рассеянного света от $\hbar\omega_{\text{exc}}$ (чтобы не загромождать рисунок, спектры приводятся не для всех значений $\hbar\omega_{\text{exc}}$). Отчетливо видно резонансное возрастание интенсивности рассеяния вблизи энергии экситонного перехода. Малый (меньший 0.2 мэВ) стоковский сдвиг максимума сигнала РРР относительно максимума спектра ВФЛ свидетельствует о высоком качестве структуры [10]. Вдали от резонанса интенсивность рассеянного света практически не зависит от энергии кванта и определяется неселективным (“паразитным”) рассеянием на поверхности образца и элементах оптической системы.

При включении дополнительной стационарной подсветки образца излучением He-Ne-лазера наблюдается весьма существенное изменение интенсивности рассеянного света. Уменьшение интенсивности рассеянного света при подсветке в максимуме резонансной кривой составляло при использовавшихся интенсивностях возбуждения и подсветки около 40% от амплитуды резонанса. В то же время, вне области резонанса интенсивность рассеяния практически не изменяется. Изменение интенсивности рассеянного света $\Delta I = I_{\text{он}} - I_{\text{оф}}$ под действием

подсветки показано на рис.1b треугольниками ($I_{\text{оф}}$ и $I_{\text{он}}$ – интенсивность при отсутствии и при наличии подсветки, соответственно). Видно, что зависимость ΔI от $\hbar\omega_{\text{exc}}$ примерно повторяет зависимость $I_{\text{оф}}$ за вычетом интенсивности фонового нерезонансного рассеяния.

Опыты по рассеянию света, описанные выше, были выполнены с использованием модулированного возбуждающего излучения Ti-сапфирового лазера и стационарной He-Ne-подсветки. Для более надежного и точного выделения слабых разностных сигналов, то есть для непосредственной регистрации возникающих при подсветке изменений интенсивности рассеянного света ΔI , была применена дифференциальная методика, обычно используемая в модуляционной спектроскопии, когда модулируется не возбуждающий, а подсвечивающий лазерный пучок. В этом случае и в спектрах люминесценции будут регистрироваться изменения ее интенсивности, вызванные дополнительной подсветкой.

На рис.2 показаны дифференциальные спектры вторичного излучения узкой КЯ, измеренные при

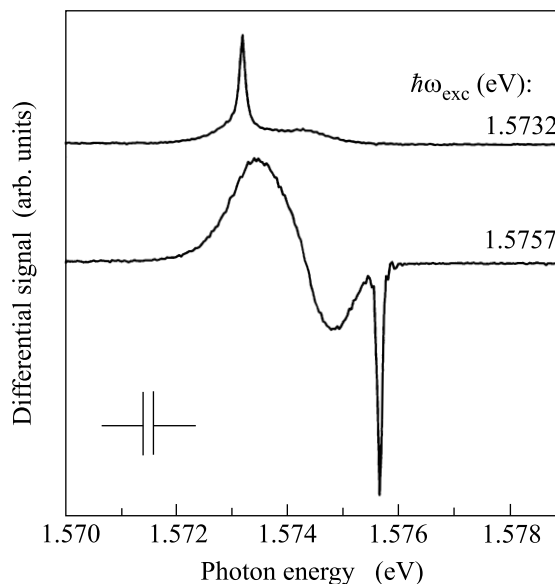


Рис.2. Дифференциальные спектры РРР и ФЛ при двух значениях энергии кванта возбуждающего света

двух значениях энергии фотонов возбуждающего света $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.5757$ эВ и 1.5732 эВ, первое из которых близко к энергетическому положению максимума спектра ВФЛ свободных экситонов, а второе – максимума линии ФЛ трионов (см. рис.1a). Как видно из рис.2, при возбуждении в состояние свободного экситона (нижний спектр) дополнительная подсветка приводит к уменьшению интенсивности РРР све-

та (узкий пик), сопровождаемому падением интенсивности линии люминесценции свободных экситонов (оба сигнала – РРР и ФЛ – отрицательны), тогда как трионная компонента спектра ФЛ возрастает (сигнал положителен). Уже было отмечено, что надбарьерная подсветка приводит к появлению в КЯ избытка неравновесных дырок. Экситоны, рождающиеся при резонансном возбуждении, связываются с этими дырками, образуя положительно заряженные трионы. Поэтому интенсивность экситонной люминесценции уменьшается, а трионной – возрастает [8].

Когда возбуждение осуществляется вблизи максимума линии ФЛ трионов (верхняя кривая на рис.2), в дифференциальном спектре наблюдаются пик РРР света, а также линии люминесценции экситонов и трионов, причем все сигналы положительны. Заметим, что в этом случае основной вклад в спектр люминесценции возникает благодаря непосредственному возбуждению образца He–Ne подсветкой. Как было сказано выше, равновесная концентрация носителей заряда в КЯ слишком мала, чтобы внутриямное возбуждение излучением Ti-сапфирового лазера могло привести к образованию заметного количества трионов. С другой стороны, при возбуждении в состоянии с энергией, меньшей энергии свободного экситона (например, в состоянии локализованных экситонов), линия люминесценции свободных экситонов должна иметь малую интенсивность при низких температурах, так как она может появиться только в результате теплового опустошения нижележащих состояний (делокализации экситонов).

Таким образом, применение дифференциальной методики позволяет установить, что под действием подсветки интенсивность рассеянного света может как уменьшаться, так и увеличиваться в зависимости от $\hbar\omega_{exc}$.

На рис.3 показана серия дифференциальных спектров, зарегистрированных при различных значениях энергии квантов возбуждающего Ti-сапфирового лазера. При уменьшении энергии квантов возбуждения амплитуда отрицательного сигнала, отвечающего уменьшению интенсивности РРР света при дополнительной подсветке, вначале возрастает, затем начинает падать и изменяет знак, когда энергия квантов $\hbar\omega_{exc}$ попадает в область энергий, в которой расположена линия люминесценции трионов. Вид дифференциальных спектров ФЛ при двух значениях $\hbar\omega_{exc}$ достаточно подробно описан и объяснен в двух предыдущих абзацах. Результаты, представленные на рис.3, позволяют проследить, как трансформируются эти спектры при изменении $\hbar\omega_{exc}$. Спектральная зависимость амплитуды

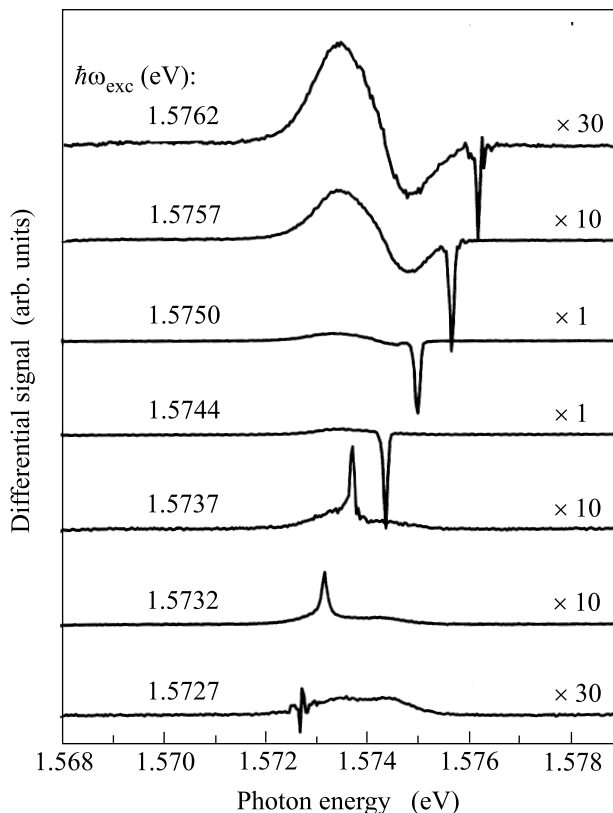


Рис.3. Зависимость дифференциальных спектров вторичного свечения узкой КЯ структуры от энергии квантов возбуждающего света

дифференциального сигнала РРР (пропорциональной изменению интенсивности рассеянного света под действием подсветки), полученная из данных, подобных приведенным на рис.3, показана на рис.4. Видно, что максимальная величина отрицательного сигнала РРР более чем на порядок превосходит максимальную величину положительного сигнала.

Приведенные выше результаты относятся к узкой КЯ. Результаты для широкой (шириной 40 Å) КЯ структуры находятся в качественном согласии с ними и не приводятся здесь из-за экономии места. Заканчивая описание экспериментальных данных, отметим, что амплитуда дифференциального сигнала РРР прямо пропорциональна интенсивности возбуждения, тогда как ее зависимость от интенсивности подсветки имеет более сложный немонотонный характер и в настоящий момент нуждается в более тщательном изучении.

Обсудим возможное качественное объяснение обнаруженного эффекта. Интенсивность рассеянного света, характеризуемая коэффициентом экстинкции h , который определяется как отношение полной интенсивности рассеянного в единице объема сре-

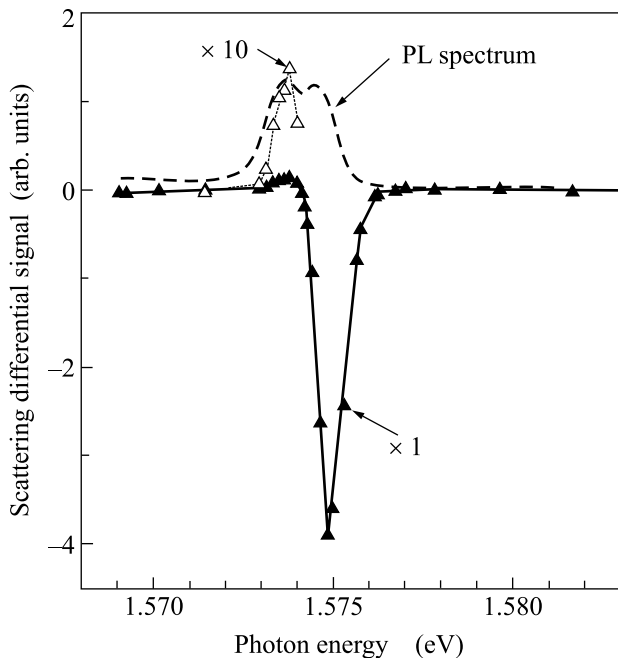


Рис.4. Зависимость амплитуды дифференциального сигнала РРР от энергии кванта возбуждающего излучения (черные треугольники). Участок кривой в десятикратно увеличенном масштабе показан светлыми треугольниками. Для сравнения штриховой кривой показан спектр ФЛ узкой КЯ при возбуждении структуры излучением He-Ne-лазера

ды по всем направлениям света к плотности потока падающего света, пропорциональна среднему квадрату флуктуации диэлектрической проницаемости $\langle(\delta\varepsilon)^2\rangle_V$ в объеме V [11]:

$$h = (\omega^4 V / 6\pi c^4) \langle(\delta\varepsilon)^2\rangle_V. \quad (1)$$

Вклад в диэлектрическую проницаемость кристалла каждого из электронных переходов пропорционален его силе осциллятора. Если флуктуации ε обусловлены флуктуациями частоты экситонных переходов [2], то вблизи экситонного резонанса $(\delta\varepsilon)^2 \propto f^2$, где f – сила осциллятора этого перехода.

Обозначим силу осциллятора экситонного перехода в отсутствие подсветки (то есть, в отсутствие носителей заряда в КЯ) через f_0 ; при этом сила осциллятора трионного перехода равна нулю. При включении подсветки в КЯ появляются носители заряда, и вследствие этого возникает возможность прямого резонансного возбуждения трионов. Поэтому трионный переход приобретает некоторую силу осциллятора f_{tr} . В силу правила сумм, сила осциллятора экситонного перехода уменьшается, так как открывается дополнительный канал электрон-фотонного взаимо-

действия. Обозначим изменение силы осциллятора экситонного перехода через $\Delta f_{ex} = f_{ex} - f_0$, где f_{ex} – экситонная сила осциллятора при наличии подсветки. В итоге при подсветке возникает РРР света вблизи перехода в трионные состояния, интенсивность которого пропорциональна $h_{tr} \propto f_{tr}^2$, а интенсивность РРР вблизи экситонного перехода изменяется на величину пропорциональную $\Delta h_{ex} \propto f_{ex}^2 - f_0^2 \cong 2f_0 \cdot \Delta f_{ex}$ (при малых Δf_{ex}). Относительное изменение интенсивности рассеянного света вблизи экситонного резонанса $\Delta h_{ex}/h_0 \cong 2\Delta f_{ex}/f_0$, где h_0 – коэффициент экстинкции в области экситонного резонанса в отсутствие подсветки.

Из экспериментальных данных при максимальных уровнях возбуждения и подсветки (рис.1b) имеем $\Delta h_{ex}/h_0 \approx -0.4$, и оценка изменения силы осциллятора экситонного перехода дает $\Delta f_{ex} \approx -0.2f_0$. Считая, что резонансные частоты и коэффициенты затухания для экситонных и трионных переходов почти одинаковы, из приведенных выше соотношений получим: $\Delta h_{ex}/h_{tr} \cong 2f_0 \Delta f_{ex}/f_{tr}^2$. Из дифференциального спектра РРР (рис.4) имеем $\Delta h_{ex}/h_{tr} \approx -28$; отсюда с использованием приведенного выше значения Δf_{ex} оценка f_{tr} дает $f_{tr} \approx 0.12f_0$.

Таким образом, f_{tr} составляет примерно 60% от Δf_{ex} , то есть большая часть силы осциллятора экситонного перехода передается трионам. По-видимому, это означает, что в условиях, когда под действием подсветки возможно формирование трионов, рассмотренный выше эффект перераспределения сил осцилляторов переходов в экситонной области спектра дает основной вклад в сильную фотомодуляцию интенсивности РРР света. Однако в действительности реальная ситуация более сложна. Так, избыточные носители заряда, появляющиеся при подсветке, не заполняют КЯ равномерно, а скапливаются в областях с большей локальной шириной ямы. Это значит, что только в этих областях возможна резонансная фотогенерация трионов. Поэтому кроме флуктуаций энергии экситонных переходов возникают пространственно коррелированные с ними флуктуации силы осциллятора, что также должно оказывать влияние на интенсивность рассеяния. Кроме того, неоднородность распределения носителей заряда в плоскости ямы приводит к появлению электрических полей, которые могут изменять локальные значения ε . Возможны и другие эффекты, способные привести к изменению интенсивности РРР.

Таким образом, в представленной работе экспериментально обнаружена сильная фотомодуляция спектра резонансного рэлеевского рассеяния света в области экситонных переходов в квантовых ямах под

действием подсветки структуры излучением с энергией квантов, превышающей ширину запрещенной зоны в барьерных слоях. Наблюдавшийся эффект объяснен перераспределением сил осцилляторов экситонных и трионных переходов вследствие накопления в ямах избыточных дырок и появляющейся при этом возможностью прямой (резонансной) фотогенерации трионов. Заметим, что аналогичный эффект должен наблюдаться и в спектрах резонансного отражения света.

Мы глубоко признательны Л. В. Келдышу за плодотворное обсуждение, Б. Этьену за предоставление структур, Н. В. Замковец и Б. Д. Копыловскому за техническую помощь.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 02-02-17033), Минпромнауки России (Комплексная научная проблема “Физика твердотельных наноструктур”), Программы поддержки научных школ (проект # 00-15-96568) и Программы Российской академии наук “Низкоразмерные квантовые структуры”.

1. Р. Лоудон, *Квантовая теория света*, М.: Мир, 1976, гл. 11 (R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, 1973).
2. J. Hegarty, M. D. Sturge, C. Weisbuch et al., *Phys. Rev. Lett.* **49**, 930 (1982).
3. J. Hegarty, L. Goldner, and M. D. Sturge, *Phys. Rev.* **B30**, 7346 (1984).
4. В. А. Кособукин, А. В. Селькин, *ФТТ* **42**, 1863 (2000).
5. V. Savona, E. Runge, and R. Zimmermann, *Phys. Rev.* **B62**, R4805 (2000).
6. Ж. Панков, *Оптические процессы в полупроводниках*, М.: Мир, 1973, гл. 18 (J. Pankove, *Optical Processes in Semiconductors*, Prentice-Hall, 1971).
7. О. В. Волков, В. Е. Житомирский, И. В. Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **67**, 707 (1998).
8. N. N. Sibeldin, M. L. Skorikov, and V. A. Tsvetkov, *Nanotechnology* **12**, 591 (2001).
9. Е. А. Муляров, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков и др., *Письма в ЖЭТФ* **70**, 613 (1999).
10. V. I. Belitsky, A. Cantarero, S. T. Pavlov et al., *Phys. Rev.* **B52**, 16665 (1995).
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1982, гл. XV.