

ЭКСИТОННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КВАЗИДВУМЕРНЫХ ТВЕРДЫХ РАСТВОРОВ

А.Ключихин⁺, А.Резницкий^{*1)}, Л.Тенишев*, С.Пермогоров*, С.Иванов*,
С.Сорокин*, Х.Муманис*, Р.Сейсян*, С.Клингширн^{□2)}

⁺ Институт ядерной физики РАН
188350 Гатчина, С.-Петербург, Россия

^{*} Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН
193021 С.-Петербург, Россия

[□] Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik
76128 Karlsruhe, Germany

Поступила в редакцию 20 декабря 1999 г.

После переработки 8 февраля 2000 г.

Исследовано поглощение и люминесценция квантовых ям, образованных твердыми растворами (Zn-Cd)Se и (Ga-In)As, в области основного состояния размерного квантования экситона. Показано, что наблюдаемые спектры можно описать в модели, предполагающей двумерный характер флуктуационных состояний, реализующихся в квантовых ямах, и наличие порога протекания в области контура полосы поглощения.

PACS: 71.55.Jv, 73.20.Dx, 78.66.-w

Оптические спектры экситонных состояний в квантовых ямах показывают, что двумерный экситон испытывает влияние флуктуаций потенциала в латеральной плоскости как в том случае, когда твердый раствор образует барьер [1–3], так и в том случае, когда материал ямы представляет собой твердый раствор [4]. Измерение однородного уширения и коэффициента диффузии экситонных состояний [1], образующих в квантовой яме GaAs/AlGaAs неоднородную полосу поглощения, показало, что обе характеристики резко изменяются в пределах полосы. Этот факт указывает на существенное изменение свойств экситонных состояний в сравнительно узкой области энергий, что связывается авторами с наличием в системе порога подвижности, который расположен примерно в центре этой полосы [1].

В настоящей работе мы рассмотрим более подробно влияние флуктуаций состава твердого раствора, образующего квантовую яму, на экситонные состояния этих систем. В оптических спектрах таких квантовых ям наблюдаются экспоненциальное убывание длинноволнового крыла спектра поглощения, зависящее от состава твердого раствора уширение этого спектра, а также появление полосы люминесценции, максимум которой смещен относительно максимума коэффициента поглощения в красную область. Величина стоковского смещения и ширина полосы люминесценции тоже зависят от концентрации компонент твердого раствора. Эти данные позволяют предположить, что причиной уширения спектра поглощения и возникновения соответствующей полосы люминесценции является образование вызванного беспорядком хвоста флуктуационных состояний у края экситонной зоны. Такого рода воздействие случайного потенциала на состояние экситона наблюдалось ранее для

¹⁾ e-mail: alexander.reznitsky@pop.ioffe.rssi.ru

²⁾ C.Klingshirn.

трехмерных неупорядоченных систем, таких как твердые растворы с анионным замещением $\text{Cd}(\text{S-Se})$, $\text{Zn}(\text{Se-Te})$ [5–8] и других аморфных и стеклообразных систем, в которых энергетический масштаб разупорядочения не является малым.

Отличительным свойством квантовых ям, образованных твердыми растворами, является проявление флуктуационных эффектов даже в случае замещения атомов катионной подрешетки. Известно, что в трехмерных твердых растворах с катионным замещением, таких как $(\text{Zn-Cd})\text{Se}$ и $(\text{Ga-In})\text{As}$, флуктуационные состояния не играют заметной роли в процессах рекомбинации даже при низких температурах [5, 9]. Естественно предположить, что это отличие обусловлено двумерным характером локализации носителей в квантовых ямах. Двумерность локализации может быть обоснована в том случае, если интервал энергий, где возникают флуктуационные состояния, существенно меньше энергии размерного квантования. В этом случае для описания флуктуационных состояний можно ограничиться рассмотрением движения экситона в двумерной зоне основного состояния. Это смягчает условия появления доступного наблюдению хвоста флуктуационных состояний по сравнению с трехмерной задачей [6–8].

Тонкий слой твердого раствора, внедренный в более широкозонную матрицу, можно рассматривать как квантовую яму, когда в нем появляется уровень размерного квантования, который закономерным образом смещается как с изменением концентрации компонент, то есть уровня среднего потенциала в яме, так и при вариациях ширины квантовой ямы. Само понятие среднего потенциала в яме, образованной твердым раствором, приобретает ясный физический смысл в том случае, когда образуются состояния, охватывающие в латеральной плоскости ее фрагменты макроскопического масштаба. В то же время, эта ситуация означает появление квантового протекания [19–12], подобно тому как классическое протекание возникает при образовании кластера, охватывающего весь кристалл. Литературные данные (см., например, [12]) указывают на то, что для сопоставимых моделей квантовый порог протекания несколько смещен по сравнению с классическим в область больших концентраций активной компоненты. Для квадратной решетки образование квантовой ямы в задачах протекания по узлам ближайших соседей или по связям между ближайшими соседями следовало бы ожидать при концентрациях узкозонной компоненты $c > 0.59$ или $c > 0.5$, соответственно. В действительности же в исследуемых системах уровни размерного квантования возникают при концентрациях, значения которых по оценкам, основанным на данных работы [13], по крайней мере на порядок меньше приведенных величин. Возникновение протекания в области столь малых концентраций означает, что микроскопический механизм протекания связан с перекрытием волновых функций локализованных состояний, радиус которых заметно превышает постоянную решетки.

В этой связи представляет интерес вопрос о концентрационной зависимости количества локализованных состояний и такого параметра спектра флуктуационных состояний как энергия Урбаха. В трехмерных твердых растворах максимальные значения общего числа флуктуационных состояний и параметра Урбаха достигаются при приближении концентрации узкозонной компоненты к критическому значению, соответствующему порогу протекания по ближайшим узлам, а при ее дальнейшем росте быстро уменьшаются [5]. По аналогии можно было бы ожидать, что и в квазидвумерной системе флуктуации будут давать максимальный эффект в области концентраций узкозонной компоненты между ее критическими значениями для

трехмерной и двумерной решеток. Однако в квазидвумерной системе существует дополнительная причина зависимости упомянутых выше величин от концентрации. Роль возмущения, вносимого потенциалом атома узкозонной компоненты $\delta U(z)$, в данном случае играет матричный элемент от этого потенциала по волновым функциям $\phi_0(z)$ основного состояния поперечного движения

$$\{\delta U\}_{00} = \int_{-\zeta/2}^{\zeta/2} \phi_0(z) \delta U(z) \phi_0(z) dz, \quad (1)$$

где ζ – ширина потенциальной ямы. Если радиус потенциала возмущения a_U меньше характерной длины экспоненциального спада волновой функции $\phi_0(z)$, то

$$\{\delta U\}_{00} \approx \phi_0^2(0) \delta U(0) a_U. \quad (2)$$

Величина возмущения есть $\delta U(z) = (U(z) - \bar{U})$, где \bar{U} – среднее значение потенциала в яме. С ростом концентрации атомов, являющихся центрами притяжения, \bar{U} стремится к предельному значению, равному значению потенциала в узкозонной компоненте твердого раствора. Это как и в трехмерном случае [6–8], должно уменьшать абсолютное значение $\delta U(z)$. Вместе с тем, с понижением среднего уровня потенциала возрастает глубина квантовой ямы, понижается энергия основного состояния размерного квантования и, как следствие, увеличивается значение $\phi_0^2(z)$ в пределах квантовой ямы. Этот фактор может приводить к значительному росту амплитуды потенциала возмущения (2), что и отличает рассматриваемую ситуацию от трехмерной.

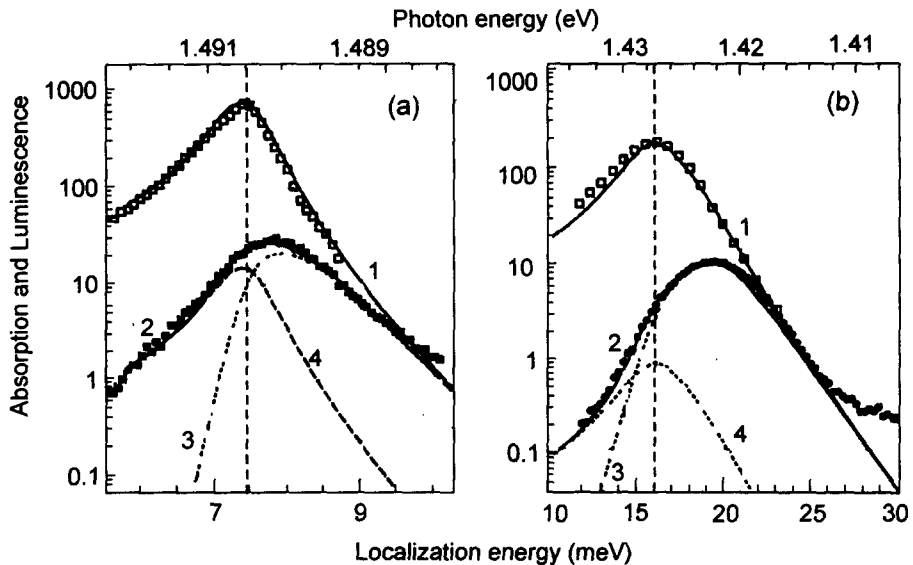


Рис.1. Экспериментальные спектры поглощения и люминесценции квантовых ям $\text{Ga}_{1-c}\text{In}_c\text{As}$ (светлые и темные точки, соответственно): а – $c = 0.033$, б – $c = 0.16$. Энергия локализации (нижняя шкала) отсчитывается от уровня размерного квантования в яме без флуктуаций (см. текст). Вертикальная пунктирная линия указывает положение порога подвижности

В настоящей работе мы исследовали оптические спектры квантовых ям $(\text{Ga-In})\text{As}/\text{GaAs}$ и $(\text{Zn-Cd})\text{Se}/\text{ZnSe}$. Экспериментальные данные по люминесценции и поглощению в системе $(\text{Ga-In})\text{As}/\text{GaAs}$ для двух относительно малых концентраций

In 3.3 и 16.1% приведены на рис.1. Соответствующие образцы состояли из 30 квантовых ям (Ga-In)As шириной 7.5 и 9.3 nm, разделенных барьерами GaAs шириной 33 и 90 nm. Как видно из рисунка, увеличение концентрации In приводит к росту ширины области флуктуационных состояний и величины стока сдвига полос люминесценции относительно поглощения.

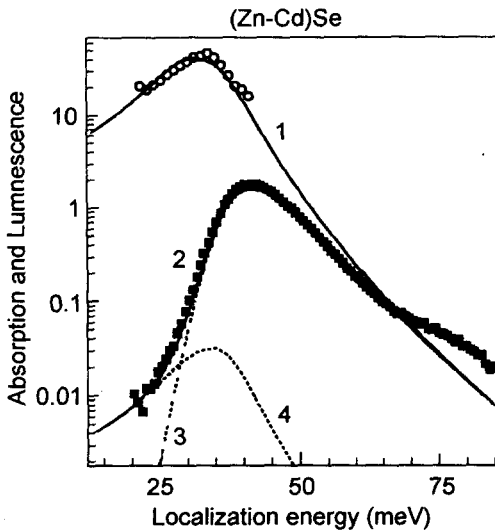


Рис.2. Спектры люминесценции (темные точки) и возбуждения люминесценции (светлые точки) образца с 0.5-монослойными вставками CdSe в ZnSe. Обозначения те же, что и на рис.1

Сходную структуру (рис.2) имеют спектры люминесценции и возбуждения люминесценции образца, состоящего из 11 квантовых ям, образованных 0.5-монослойными вставками CdSe в ZnSe, с периодом 5 nm. Средняя концентрация Cd в яме, с учетом того, что он распределяется реально в пределах четырех – шести монослоев [14], составляет примерно 10%.

Для анализа формы и взаимного расположения спектров поглощения и люминесценции в спектрах исследованных структур мы предположим, что полоса поглощения образована двумя типами состояний, качественно отличающимися друг от друга по своей способности релаксировать с передачей энергии. Такое предположение справедливо при наличии порога квантового протекания в области контура спектра поглощения. Для количественного описания вкладов в поглощение и люминесценцию этих двух разных типов флуктуационных состояний мы используем двумерную континуальную классическую теорию протекания. Как и в трехмерном случае [6–8], допустим, что спектральная плотность экситона формируется флуктуационными состояниями, которые можно разделить на два типа: основная часть – это подвижные состояния, способные релаксировать с передачей энергии решетке, а меньшая доля состояний – это изолированные в пространстве локализованные “излучающие” состояния, для которых при $T = 0$ нет возможности для безызлучательных переходов.

В нулевом приближении флуктуационные состояния ниже некоторой энергии ω_0 будем считать пространственно изолированными и хаотически расположенными в плоскости квантовой ямы. Энергию локализации примем положительной и будем отсчитывать от уровня размерного квантования в идеальной квантовой яме без флуктуаций. Для всех флуктуационных потенциальных ям с энергией локализации $\omega > \omega_0$ введем единый геометрический размер $R_{int}/2$, такой, что если любая

из этих потенциальных ям или их комплекс отделены расстоянием, превышающим R_{int} , от всех остальных флуктуационных ям с большей энергией локализации, то такие состояния являются пространственно изолированными. Граничная энергия ω_0 выбирается из условия $\mathcal{N}(\omega_0)a_{\omega_0}^2 < 1$, где $\mathcal{N}(\omega_0)$ – интегральная плотность состояний с энергией локализации, превышающей ω_0 , и $a_{\omega_0} = \sqrt{\hbar^2/2M\omega_0}$ – радиус волновой функции состояния с энергией локализации ω_0 . Положение порога подвижности такой системы ω_{ME} предполагается в области энергий локализации, превышающих ω_0 .

Континуальная теория протекания дает возможность найти количество потенциальных ям с данной энергией локализации, которые не перекрываются с состояниями с большей энергией локализации, а также количество суперкластеров, то есть изолированных пар, троек и т.д. ям, основные состояния которых также не имеют возможности для релаксации. В результате можно установить соотношение между количеством изолированных и подвижных состояний в широком интервале энергий. Зависимость вклада изолированных ям и основных состояний пар от энергии локализации может быть представлена как

$$P(\omega) = [\exp\{-2\mathcal{P}(\omega)\} + \mathcal{P}(\omega) \exp\{-2.841 \mathcal{P}(\omega)\}], \quad (3)$$

где $\mathcal{P}(\omega) = \frac{1}{2}[R_{int}/\overline{r(\omega)}]^2$, и

$$\overline{r(\omega)} = \left(\frac{1}{\pi} \frac{1}{\mathcal{N}(\omega)}\right)^{1/2}.$$

Интегральная плотность состояний $\mathcal{N}(\omega)$ дает концентрацию потенциальных ям с энергией локализации, ограниченной с одной стороны величиной ω и с другой – границей Лифшица [15]. Первое слагаемое в (3) представляет собой точное значение концентрации изолированных единичных состояний, второе слагаемое – это экстраполяция степенного ряда, полученного в [16] для изолированных пар. В наших расчетах мы использовали для плотности экситонных состояний на пороге протекания значение $\mathcal{P}(\omega_{ME}) = 2.3$ [16]. Как и в трехмерном случае, изолированные состояния составляют основную часть состояний ниже порога протекания, где их число достигает максимума, а затем экспоненциально убывает с уменьшением ω .

Главный вклад в полосу люминесценции дают изолированные в пространстве состояния единичных кластеров, а основные состояния суперкластеров приводят к ряду поправочных членов, быстро сходящемуся за счет дополнительных экспоненциально малых множителей [6–8]. В то же время, в оптическое поглощение дают вклад все состояния, независимо от их способности к релаксации.

Пренебрегая слабым в этих системах экситон-фононным взаимодействием и учитывая связь вероятности излучения с коэффициентом бесфононного поглощения $\alpha_{1s}^0(\omega)$ при переходе в $1s$ -состояние экситона, мы можем представить спектр люминесценции в виде

$$I_{1s}^0(\omega) \sim \alpha_{1s}^0(\omega) \tau_{rad} \{P(\omega) + \tau_{rel}/\tau_{rad}[1 - P(\omega)]\}, \quad (4)$$

где первое слагаемое в фигурных скобках $P(\omega)$ – описываемый выражением типа (3) вклад состояний с энергией локализации ω , принадлежащих изолированным флуктуационным ямам и основным состояниям суперкластеров. Второе слагаемое представляет собой излучение состояний, имеющих возможность релаксировать без излучения, поэтому вклад этих состояний пропорционален отношению времени релак-

сации и времени излучательной рекомбинации, τ_{rel}/τ_{rad} . Вклад в излучение релаксирующих состояний при прочих равных условиях определяется масштабом энергий, передаваемых в процессах безызлучательной релаксации, то есть шириной области флуктуационных состояний.

На рис.1 и 2 наряду с экспериментальными данными приведены также результаты расчета спектров поглощения и люминесценции (кривые 1 и 2), а также вклады излучающих (3) и релаксирующих (4) состояний экситона в спектр люминесценции. При сопоставлении данных рис.1а и 1б обращает на себя внимание тот факт, что с ростом концентрации In уменьшается вклад в излучение релаксирующих состояний. Этот результат можно связать с тем, что протяженность хвоста флуктуационных состояний и, как следствие, энергия акустических фононов, которые могут обеспечить передачу энергии решетке в процессах релаксации, растут с увеличением концентрации In, что и приводит к росту вероятности процессов релаксации. Следует обратить внимание на то, что, как и в системе GaAs-AlGaAs [1], положение порога протекания, полученное в результате моделирования оптических спектров, во всех случаях с хорошей точностью совпадает с максимумом коэффициента поглощения. Это совпадение может быть обусловлено тем, что в окрестности порога протекания характерные размеры волновых функций локализованных экситонов достигают размеров, сопоставимых с длиной волны света, а подвижные состояния выше порога протекания могут приближенно характеризоваться волновым вектором, сравнимым по величине с волновым вектором фотона.

В заключение отметим, что оптические спектры обеих исследованных систем удается описать в рамках единого подхода, однако энергетический масштаб флуктуационного потенциала δU_{00} в случае (Zn-Cd)Se оказывается в 2 – 2.5 раз больше по сравнению с (Ga-In)As, что примерно соответствует отношению $\phi_0^2(0)$ в этих ямах и связано с большей величиной энергии локализации экситона в квантовой яме (Zn-Cd)Se $\delta E = E_{ZnSe}^G - E_{(Zn-Cd)Se}^{1s}$ по сравнению с аналогичной величиной в исследованных образцах (Ga-In)As.

Эта работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований #97-02-18138 и грантом МНТП “Физика твердотельных наноструктур” #99-1114.

-
1. J.Hegarty, L.Goldner, and M.D.Sturge, Phys. Rev. **B30**, 7346 (1984).
 2. T.Takagahara, Phys. Rev. **B32**, 7013 (1993).
 3. U.Jahn, M.Ramsteiner, R.Hey et al., Phys. Rev. **B56**, R4387 (1997).
 4. Fang Yang, M.Wilkinson, E.J.Austin et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 323 (1993).
 5. S.Permogorov and A.Reznitsky, J. of Luminescence **52**, 201 (1992).
 6. А.А.Клочихин, С.А.Пермогоров, А.Н.Резницкий, ФТТ **39**, 1170 (1997).
 7. А.А.Клочихин, С.А.Пермогоров, А.Н.Резницкий, ЖЭТФ **120**, вып.3 (1999).
 8. A.Klochikhin, A.Reznitsky, S.Permogorov et al., Phys. Rev. **B59**, 12947 (1999).
 9. S.Permogorov, A.Yu.Naumov, L.N.Tenishev et.al., Phys. Solid State **37**, 1350 (1995).
 10. Y.Shapir, A.Aharony, and A.B.Harris, Phys. Rev. Lett. **49**, 486 (1982).
 11. Y.Meir, A.Aharony, and A.B.Harris, Europhys. Lett. **10** (3), 275 (1989).
 12. I.Chang, Zvi Lev, A.B.Harris et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 2094 (1995).
 13. S.V.Ivanov, A.A.Toropov, T.V.Shubina et al., J. Appl. Phys. **83**, 3168 (1998).
 14. R.N.Kyutt, A.A.Toropov, S.V.Sorokin et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 373 (1999).
 15. И.М.Лифшиц, УФН **83**, 617 (1964).
 16. S.W.Haan and R.Zwanzig, J. Phys. A: Math. Gen. **10**, 1547 (1977).