

## ЛОКАЛИЗАЦИЯ ОТРИЦАТЕЛЬНО ЗАРЯЖЕННЫХ ЭКСИТОНОВ В КВАНТОВЫХ ЯМАХ GaAs/AlGaAs

О.В.Волков, С.В.Товстоног, И.В.Кукушкин, К.фон Клитцинг\*<sup>1)</sup>, К.Эберл\*<sup>1)</sup>

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

\* Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 70569 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 24 сентября 1999 г.

В одиночных квантовых ямах GaAs/AlGaAs исследована локализация отрицательно заряженных экситонов на одиночных заряженных донорах, расположенных в барьере на различных фиксированных расстояниях  $L$  от гетерограницы. Изучена зависимость энергетического сдвига циклотронной реплики в спектрах излучения локализованного экситонного комплекса от величины  $L$ . Показано, что в нелегированных образцах локализация заряженных экситонов происходит на остаточных донорах, расположенных на расстояниях  $L > 350 \text{ \AA}$ , что связано с образованием  $D^-$ -комплексов на меньших расстояниях. Установлено, что циклотронная реплика возникает при рекомбинации возбужденного состояния экситонного комплекса, а не основного, как считалось ранее.

PACS: 71.35.Cc, 78.66.Fd

1. Нелегированные одиночные квантовые ямы интересны тем, что в условиях фотовозбуждения в них происходит образование электронно-дырочных комплексов, состоящих из нескольких частиц, связанных между собой силами кулоновского притяжения. При этом оказывается, что в двумерных системах с избытком электронов или дырок наиболее энергетически выгодным является образование трехчастичных комплексов (заряженных экситонов или трионов), состоящих из двух электронов и одной дырки ( $X^-$ ) или двух дырок и одного электрона ( $X^+$ ), соответственно. Эти образования, аналогичные ионам водорода  $H^-$  и  $H_2^+$ , были предсказаны Лампертом почти 50 лет назад [1], однако лишь недавно появились сообщения об их экспериментальном обнаружении [2]. В то же время, как было показано в наших работах [3, 4], трион, будучи тяжелой заряженной частицей, всегда локализуется в кулоновском потенциале находящейся в барьере заряженной примеси (концентрация неконтролируемых остаточных примесей значительно выше в барьере AlGaAs, чем в яме GaAs). Таким образом, трионы  $X^-$  ( $X^+$ ) при более детальном рассмотрении являются экситонами, связанными на нейтральном примесном центре в барьере  $D_b^0 X$  ( $A_b^0 X$ ), где электрон (дырка), нейтрализующий примесный центр, расположен в квантовой яме, так же, как и фотовозбужденный экситон. В этой связи ключевым является вопрос о том, на каком расстоянии от ямы расположены ответственные за локализацию примесные центры. В случае  $A_b^0 X$ -комплексов для ответа на этот вопрос нами была использована методика [4], основанная на изучении энергии расщепления между основной линией рекомбинации комплекса и ее циклотронной репликой, связанной с переходом  $A^0$  в возбужденное состояние после акта рекомбинации. Применение аналогичной методики для случая  $D_b^0 X$ -комплексов затруднено вследствие малости характерных энергетических расщеплений, свидетельствующей о значительной

---

<sup>1)</sup> K.von Klitzing, K.Eberl.

удаленности примесного центра. Для решения данной проблемы мы исследовали специально разработанную серию образцов с  $\delta$ -слоем доноров, расположенным в барьере на строго определенном расстоянии от гетерограницы.

Сравнение экспериментальных данных с результатами вычислений позволило нам уточнить механизм возникновения циклотронной реплики, изучить изменение ее свойств для различных расстояний  $L$  и найти характерную величину расстояния до примесного центра в нелегированных образцах. Показано, что поскольку в нелегированных образцах число электронов в яме значительно превосходит число близко расположенных к гетерогранице примесей, то существует критическое расстояние  $L = 350 \text{ \AA}$ , ближе которого доноры образуют  $D^-$ -комплексы и не оказывают влияния на экситонную систему.

2. Мы исследовали нелегированные GaAs одиночные квантовые ямы с барьерами из  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ , выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МВЕ) на нелегированной подложке GaAs по следующей схеме: буферный слой GaAs толщиной  $3000 \text{ \AA}$ , нелегированная сверхрешетка GaAs – AlGaAs ( $30 - 100 \text{ \AA}$ ) общей толщиной  $13000 \text{ \AA}$ , квантовая яма GaAs толщиной  $200 \text{ \AA}$ , AlGaAs спейсер толщиной  $600 \text{ \AA}$ , защитный слой GaAs толщиной  $100 \text{ \AA}$ . В трех образцах в спейсере был сформирован  $\delta$ -слой доноров (Si) с плотностью  $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$  на расстояниях  $L = 150, 200$  и  $250 \text{ \AA}$  от границы ямы, четвертая структура была оставлена нелегированной. Все структуры, включая нелегированный образец, содержали двумерный электронный канал малой плотности (с концентрацией носителей  $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ). Характерная ширина линий люминесценции в исследованных структурах составляла  $0.1 \dots 0.2 \text{ мэВ}$  в магнитном поле  $\sim 10 \text{ Тл}$ , что говорит об их высоком качестве. Оптическое возбуждение системы осуществлялось Ti/Sp-лазером с энергией фотонов  $1.65 \text{ эВ}$ . Спектральным прибором служил двойной монохроматор Ramalog U-1000, который в сочетании с полупроводниковым детектором с зарядовой связью (CCD) обеспечивал разрешение  $0.03 \text{ мэВ}$ . Измерения проводились при температуре  $1.5 \text{ К}$  в диапазоне магнитных полей  $0 \div 11 \text{ Тл}$ .

3. На рис.1а показан спектр фотолюминесценции, измеренный в магнитном поле  $2.5 \text{ Тл}$  для двух циркулярных поляризаций в квантовой яме с  $L = 250 \text{ \AA}$ . В магнитных полях до  $4 \text{ Тл}$  в спектре доминируют две основные линии – свободного экситона  $X$  и основного состояния экситонного комплекса  $D_b^0 X$  – синглета  $S_0$ . Наличие двух эквивалентных электронов в  $D_b^0 X$ -комплексе разрешает процесс рекомбинации с переходом оставшегося электрона в возбужденное состояние. При этом в спектре излучения появляются сателлиты основной линии рекомбинации, отражающие спектр возбужденных состояний  $D_b^0$  центра (или свободного электрона в предельном случае несвязанного триона). Первый, наиболее яркий сателлит  $SU_1$ , показанный на рис.1а, смещен относительно основной линии излучения комплекса вниз по энергии на величину, примерно равную одному кванту циклотронной энергии. Это хорошо видно из рис.1б, где показана магнитополевая зависимость энергии обсуждаемых линий излучения. Циклотронные сателлиты были исследованы в работе [5] и использовались для доказательства трехчастичной природы экситонного комплекса. До настоящего времени общепринятой являлась точка зрения, что сателлиты возникают в результате рекомбинации основного состояния экситонного комплекса – синглета  $S_0$ . Однако такая модель при интерпретации экспериментальных данных встречает серьезные трудности, изложенные ниже. Во-первых, интенсивность ли-

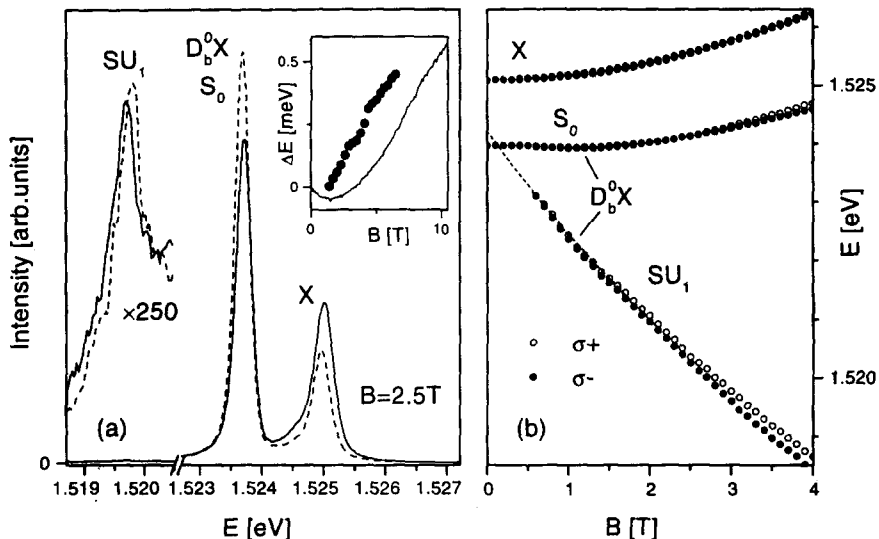


Рис.1. а) Спектры фотолуминесценции, измеренные для квантовой ямы с  $L = 250 \text{ \AA}$  в магнитном поле 2.5 Тл в  $\sigma^-$  (сплошная линия) и  $\sigma^+$  (штриховая линия) поляризации. На вставке показана зависимость энергии расщепления между спектральными линиями в  $\sigma^-$  и  $\sigma^+$  поляризации от магнитного поля, измеренная для  $D_0^0X$  (линия) и  $SU_1$  (точки). б) Зависимость энергии оптических переходов от магнитного поля, измеренная для нелегированной квантовой ямы в  $\sigma^-$  (точки) и  $\sigma^+$  (кружки) поляризации

ний  $S_0$  и  $SU_1$  демонстрирует совершенно разную температурную зависимость. Так, при изменении температуры от 1.5 до 20 К интенсивность линии  $S_0$  падает почти на порядок вследствие термодиссоциации комплекса, в то время как интенсивность линии  $SU_1$  уменьшается лишь незначительно (см. рис.4б в [3]). Во-вторых, если линии  $S_0$  и  $SU_1$  отличаются лишь конечным состоянием электрона, то они должны иметь одинаковое зеемановское расщепление (разность энергий в двух циркулярных поляризациях). Однако, как нетрудно видеть из рис.1а, в поле 2.5 Тл это расщепление оказывается различным не только по величине, но и по знаку, демонстрируя принципиально разные зависимости от магнитного поля, показанные на вставке. В-третьих, разность энергий линий  $S_0$  и  $SU_1$ , которая должна отражать разность энергий между основным и возбужденным состояниями оставшегося после рекомбинации электрона, не соответствует ни модели локализованного комплекса, ни модели свободного триона. Действительно, рассмотрим структуру уровней энергии электрона, локализованного в потенциале заряженного донора, расположенного в барьере на некотором расстоянии от гетерограницы. Эта структура показана на рис.2а и была рассчитана нами с помощью численного метода, аналогичного использованному в [4] для акцептора. Спектр состоит из невырожденных уровней энергии, имеющих определенное значение проекции углового момента  $M$ , выходящих с ростом магнитного поля на линейные асимптотические зависимости, соответствующие уровням Ландау с номерами  $N = n + (|M| - M)/2$ , где  $n = 0, 1, \dots$  – радиальное квантовое число. Согласно общепринятой модели, линии  $S_0$  и  $SU_1$  отвечают конечному состоянию с  $M = 0$  ( $D_0$ ) и  $n = 0, 1$  соответственно. В случае свободного электрона разность энергий между ними должна быть равна  $\hbar\omega_c$ , в случае же электрона, локализованного на доноре,

разность оказывается всегда больше  $\hbar\omega_c$ . Энергетическое расщепление при  $B \rightarrow 0$  равно энергии локализации комплекса. Зависимость этой энергии от расстояния  $L$ , измеренная для всех исследованных образцов, представлена в нижней части рис.3а. Как видно, в нелегированном образце, которому соответствует точка  $L = 350 \text{ \AA}$  (по причинам, изложенным ниже), величина отсечки оказывается отрицательной. Это также хорошо видно и из рис.1b, где показана измеренная для нелегированного образца экстрополяция полевой зависимости (к  $B \rightarrow 0$ ) энергии  $SU_1$  перехода.

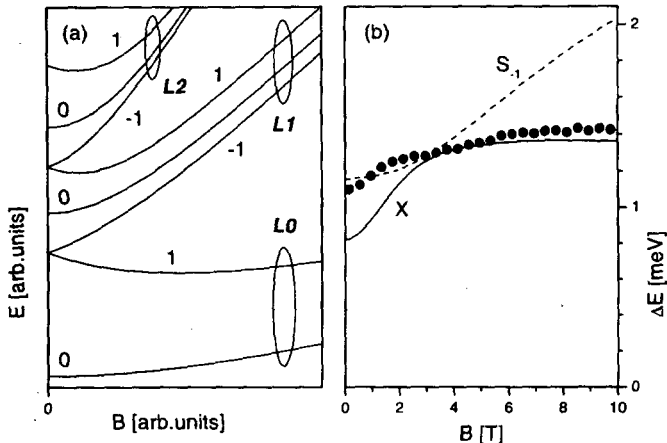


Рис.2. а) Схема уровней энергии электрона, рассчитанная для донора, находящегося на расстоянии  $L = 100 \text{ \AA}$  от ямы. Показаны состояния с моментом  $M = 0, \pm 1$ , формирующие первые 3 уровня Ландау  $L0, 1, 2$ . б) Магнитополевая зависимость энергии связи экситонного комплекса (разности энергий экситона и основного состояния  $S_0$ ), измеренная (точки) в квантовой яме с  $L = 250 \text{ \AA}$  и рассчитанная теоретически (сплошная линия). Штриховой линией показана полевая зависимость разности энергий возбужденного,  $S_{-1}$ , и основного,  $S_0$ , состояний экситонного комплекса

Таким образом, экспериментальные данные свидетельствуют о том, что начальным состоянием для циклотронной реплики  $SU_1$  является не основное состояние синглета  $S_0$ , а другое, имеющее большую энергию. Причем, эти возбужденные состояния экситонного комплекса не проявляются в спектрах люминесценции (рис.1а), так как выше основной линии рекомбинации  $S_0$  не наблюдаются какие либо дополнительные спектральные линии, кроме линии свободного экситона. Кроме того, полученный вывод об отрицательных значениях энергии локализации заставляет предположить, что и конечным состоянием является возбужденное состояние донора. Для проверки этого предположения мы разработали численный метод, основанный на гамильтониане Латтинжера  $4 \times 4$  [6] и учитывающий как сложную структуру валентной зоны, так и трехмерный характер движения частиц в яме. Матричные элементы гамильтониана вычислялись в цилиндрической калибровке аналогично [7], но в отличие от этого и других расчетов, мы записывали трехмерные базисные функции в виде произведения известных в численном виде решений одномерных дифференциальных уравнений, получаемых методом релаксации [8]. Трехчастичная волновая функция записывалась в базисе из произведений одночастичных функций. Для сокращения вычислительных затрат на диагонализацию использовался усовершенствованный вариант процедуры селекции базисных функций, описанной в [9]. В качестве зонных параметров материалов был взят один из общепринятых набо-

ров, использованный в [7]. Для проверки вычислительного метода мы рассчитали полевую зависимость энергии связи основного состояния комплекса  $S_0$ , которая легко поддается измерению как разность энергий линий рекомбинации экситона  $X$  и комплекса  $S_0$ . Результат показан на рис.2b в сравнении с экспериментальными точками. Хорошее согласие рассчитанной и измеренной энергий связи демонстрирует работоспособность метода. Мы также рассчитали энергию комплекса для различных значений полного момента  $J = M + S$ , равного сумме орбитального момента комплекса  $M$  и спинового момента дырки  $S = \pm 3/2$ . Оказалось, что первое после синглета  $S_0$  с  $M = 0$  и триплета  $T_1$  с  $M = 1$  [10] возбужденное состояние системы – синглет  $S_{-1}$  с  $M = -1$  обладает необходимыми свойствами. Действительно, в соответствии с законом сохранения углового момента это состояние может рекомбинировать только в состояние донора с  $M = -1$  ( $D_{-1}$ ), которое является возбужденным (рис.2a). Разница энергий состояния  $S_{-1}$  и основного состояния  $S_0$  показана на рис.2b штриховой линией. Как видно, это состояние близко по энергии к экситону и, вероятно, является промежуточным метастабильным состоянием в процессе энергетической релаксации горячих экситонов в состояние  $S_0$ . Оно является достаточно долгоживущим, поскольку релаксация в состояние  $S_0$  сопряжена с изменением углового момента. Хотя оно и не является устойчивым по отношению к распаду на электрон и экситон, появление его в спектрах рекомбинации вполне вероятно, так же, как и высокоэнергетических циклотронных реплик [3], связанных с рекомбинацией из вышележащих возбужденных состояний комплекса.

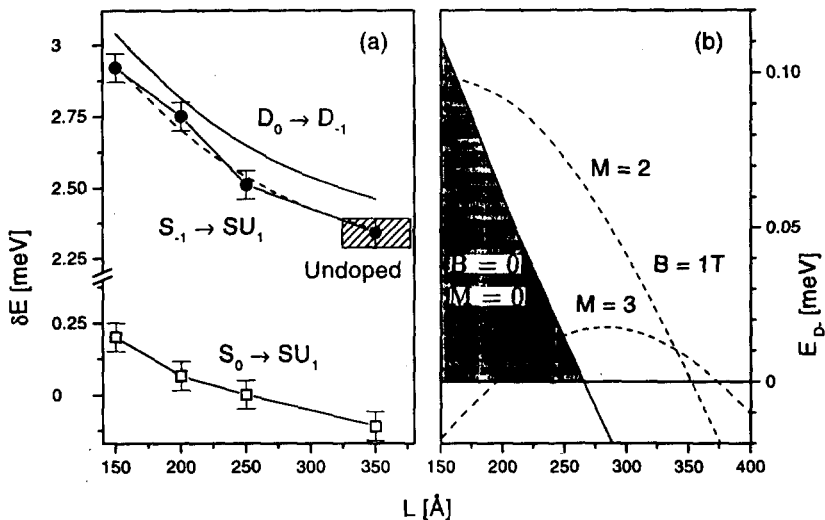


Рис.3. а) Зависимости энергии локализации  $\delta E$  заряженных экситонов от расстояния  $L$  от донора до гетерограницы, измеренная для всех исследованных образцов. Величины  $\delta E$ , полученные из расщепления между основным состоянием  $S_0$  комплекса и циклотронной репликой  $SU_1$ , показаны квадратами, а из расщепления между возбужденным состоянием  $S_{-1}$  и репликой  $SU_1$  – точками. Сплошной линией показана теоретическая зависимость  $\delta E(L)$ , вычисленная для разности энергий между состояниями электрона на доноре с моментами  $M = -1$  и 0. б) Зависимость энергии связи второго электрона на доноре ( $D^-$ -центре) от расстояния  $L$  от донора до гетерограницы, рассчитанная для магнитного поля  $B = 0$  (сплошная линия) и  $B = 1$  Тл (пунктир)

Чтобы убедиться, что состояние  $S_{-1}$  действительно является начальным для линии  $SU_1$ , мы сравнили ожидаемое в этом случае расщепление между линией  $SU_1$  и основной линией рекомбинации  $S_0$  с наблюдаемым в эксперименте, воспользовавшись следующей методикой. Поскольку линии  $S_0$  отвечает процесс рекомбинации  $S_0 \rightarrow D_0 + h\nu_1$ , а линии  $SU_1$  – процесс  $S_{-1} \rightarrow D_{-1} + h\nu_2$ , то  $\Delta E_D = \Delta E_S + (h\nu_1 - h\nu_2)$ , где  $\Delta E_D$  и  $\Delta E_S$  – разность энергий состояний с  $M = -1$  и  $0$  для донора и синглетного комплекса соответственно. Мы определили правую и левую части этого равенства как функции магнитного поля  $B$  для всех исследованных образцов, затем аппроксимировали их по формуле  $\Delta E(B)^2 = (\alpha B)^2 + \delta E^2$ , определив тем самым энергию локализации  $\delta E$  как функцию расстояния до донора. Результаты показаны на рис.3а, где сплошная линия – результат расчета для донора, а темные кружки получены в результате обработки экспериментальных данных с учетом поправки на  $\Delta E_S$ . Как видно из рисунка, предложенная модель гораздо лучше описывает экспериментальные данные, чем предположение о том, что реплика  $SU_1$  возникает в результате рекомбинации  $S_0$  (квадраты на рис.3а). Оставшаяся систематическая ошибка 0.1 мэВ связана, по-видимому, с неточностью численной модели и была учтена при подгонке теоретической зависимости (показана штриховой кривой на рис.3а) к экспериментальным данным. Из величины энергии локализации, измеренной в нелегированном образце, мы оценили по аппроксимированной теоретической зависимости характерное расстояние до донора  $L$ , реализующееся в этой структуре (заштрихованный прямоугольник на рис.3а). Видно, что характерное расстояние  $L \approx 350 \text{ \AA}$ , а энергия локализации  $\delta E \approx 2.3 \text{ мэВ}$ . Тот факт, что  $\delta E$  существенно больше, чем энергия связи экситона на доноре (1.2 мэВ), означает невозможность наблюдения триона в нелокализованной форме. В этих условиях повышение температуры будет приводить скорее к эффективной диссоциации экситона и нейтрального донора, чем к ионизации комплекса с образованием свободного триона и заряженной примеси. Именно такое поведение и было обнаружено в нашем эксперименте [3].

В связи с полученными нами результатами возникает вопрос – почему при равномерном распределении остаточных примесей в нелегированном образце (характерная объемная концентрация доноров в барьере  $N_D \sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ ) мы можем определить конкретную пороговую величину  $L_{cr}$ , отличную от нуля, и не видим значительного уширения линий  $S_0$  и  $SU_1$ , вызванного сильной зависимостью энергии связи от расстояния при малых  $L$ ? Наше объяснение заключается в том, что в нелегированных квантовых ямах концентрация остаточных близкорасположенных ( $L < L_{cr}$ ) доноров существенно меньше ( $n_D = N_D L_{cr} \sim 10^9 \text{ см}^{-2}$ ) концентрации двумерных электронов, и эти заряженные примесные центры захватывают по 2 электрона, образуя  $D^-$  комплексы [11]. Из-за принципа Паули энергия связи экситона на  $D^-$  комплексе оказывается отрицательной и поэтому экситоны локализуются лишь на донорах, расположенных на границе стабильности  $D^-$ , где энергия локализации, падающая с ростом  $L$ , максимальна. Поскольку при больших  $L > L_{cr}$  зависимость энергии локализации экситона является слабоизменяющейся функцией  $L$ , то и уширение линий  $S_0$  и  $SU_1$  оказывается слабым. Для проверки этого предположения мы рассчитали зависимость энергии связи второго электрона в  $D^-$  от  $L$ . Результаты показаны на рис.3б. Видно, что в нулевом магнитном поле граница стабильности  $D^-$  проходит на расстоянии  $\approx 265 \text{ \AA}$  от ямы, в полном согласии с расчетами [11]. В магнитном поле

1 Тл это расстояние увеличивается до 375 Å, что хорошо согласуется с результатом, полученным нами для нелегированной квантовой ямы.

Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и программы "Физика твердотельных наноструктур".

- 
1. M.A.Lampert, *Phys.Rev.Lett.* **1**, 450 (1950).
  2. K.Kheng, R.T.Cox, Y.M.d'Aubique et al., *Phys.Rev.Lett.* **71**, 1752 (1993); A.J.Shields, J.L.Osborne, M.Y.Simmons et al., *Rhys. Rev.* **B52**, R5523 (1995).
  3. О.В.Волков, В.Е.Житомирский, И.В.Кукушкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **66**, 730 (1997).
  4. О.В.Волков, И.В.Кукушкин, К.фон Клитцинг и др., *Письма в ЖЭТФ* **68**, 223 (1998).
  5. G.Finkelstein, H.Shtrikman, and I.Bar-Joseph, *Phys. Rev. B* **B53**, 12593 (1996).
  6. J.M.Luttinger, *Phys. Rev.* **102**, 1030 (1956).
  7. G.E.W.Bauer and T.Ando, *Phys. Rev.* **B38**, 6015 (1988).
  8. O.V.Volkov, V.E.Zhitomirskii, I.V.Kukushkin et al., *Phys. Rev.* **B56**, 7541 (1997).
  9. D.M.Whittaker and A.J.Shields, *Phys. Rev.* **B56**, 15185 (1997).
  10. A.J.Shields, M.Pepper, M.Y.Simmons et al., *Phys. Rev.* **B52**, 7841 (1995).
  11. H.L.Fox and D.M.Larsen, *Phys. Rev.* **B51**, 10709 (1995).