

ЭКСИТОННЫЕ СОСТОЯНИЯ В КВАНТОВЫХ ЯМАХ, СФОРМИРОВАННЫЕ ИЗ “НАДБАРЬЕРНЫХ” ЭЛЕКТРОННЫХ СОСТОЯНИЙ

Е.А.Муляров*, Н.Н.Сибельдин¹⁾, М.Л.Скориков, В.А.Цветков, Б.Этьен⁺²⁾

Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, 117924 Москва, Россия

* Институт общей физики РАН, 117942 Москва, Россия

⁺ Laboratoire de Microstructures et de Microelectronique, 92225 Bagneux, France

Поступила в редакцию 7 октября 1999 г.

В спектрах возбуждения фотолюминесценции GaAs/Al_{0.05}Ga_{0.95}As структур с квантовыми ямами (КЯ), содержащими по одному одночастичному уровню размерного квантования для носителей заряда каждого типа, обнаружены линии, отвечающие локализованным экситонным состояниям, сформированным из “надбарьерных” электронных и/или дырочных состояний (в частности, линии возбуждения экситонов, образованных локализованным в КЯ электроном и свободной тяжелой дыркой). Предложен метод расчета, позволяющий найти энергии связи и волновые функции экситонов в КЯ при самосогласованном учете кулоновского потенциала. Вычисленные значения энергий экситонных переходов достаточно хорошо согласуются с результатами эксперимента.

PACS: 71.35.-y, 73.20.Dx, 78.55.-m

Экситонные состояния в квантовых ямах (КЯ), сформированные из размерно-квантованных одночастичных состояний электронов и дырок, при определенных условиях достаточно хорошо описываются квазидвумерной моделью [1, 2]. В этом случае движение электрона и дырки в поперечном (перпендикулярном стенкам КЯ) направлении практически нескоррелировано и определяется, в основном, потенциальным рельефом гетероструктуры, тогда как кулоновское взаимодействие, ответственное за характер движения частиц в плоскости КЯ, почти не влияет на поперечную составляющую движения. Вместе с тем, в ряде работ было показано, что возможна иная ситуация, когда кулоновское взаимодействие играет значительную или даже главную роль в поперечном движении частиц, образующих экситон. Примерами таких экситонных состояний могут служить экситоны с легкой дыркой [3] и почти трехмерные возбужденные экситонные состояния [4] в КЯ напряженных InGaAs/GaAs гетероструктур, экситонные состояния в спиновых сверхрешетках [5] и др.

Следует заметить, что существование экситонных состояний, локализация которых в КЯ связана с влиянием межчастичного взаимодействия на поперечное движение, является общим свойством структур с КЯ, хотя физические условия образования таких состояний и сами эти состояния достаточно разнообразны. В частности, это могут быть локализованные в КЯ состояния, отвечающие экситонам, состоящим из частиц, одна из которых или обе не были бы связаны в КЯ в отсутствие кулоновского взаимодействия (“надбарьерные” электроны и дырки).

¹⁾ e-mail: sibeldin@sci.lebedev.ru

²⁾ B.Etienne.

В настоящей работе экспериментально и теоретически исследованы экситонные состояния в "классических" GaAs/AlGaAs структурах I рода с мелкими КЯ, содержащими по одному одночастичному уровню размерного квантования для частиц каждого типа (электронов, тяжелых и легких дырок). Такие структуры благодаря простоте их одночастичного электронного спектра наиболее удобны для обнаружения дополнительных экситонных состояний, локализованных в КЯ. Наблюдение в спектрах возбуждения фотолюминесценции линий, отвечающих этим экситонным состояниям, является основным экспериментальным результатом работы. Вычисленные в рамках самосогласованной модели значения энергий экситонных переходов достаточно хорошо согласуются с опытными данными.

Эксперименты были выполнены на образцах GaAs/Al_{0.05}Ga_{0.95}As структуры, выращенной методом молекулярно-лучевой эпитаксии, которая содержала две GaAs КЯ шириной 40 Å и 30 Å, разделенные AlGaAs барьером толщиной 600 Å. Экситонные состояния исследовались методами спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) и возбуждения ФЛ (ВФЛ) при температуре 2 К в магнитном поле напряженностью до 5.5 Тл, ориентированном либо перпендикулярно, либо параллельно слоям структуры. Образец возбуждался излучением Ti-сапфирового лазера, диапазон перестройки которого позволял осуществлять фотовозбуждение носителей заряда как на уровне размерного квантования в КЯ, так и в надбарьерные состояния непрерывного спектра. Излучение образца анализировалось светосильным монохроматором и регистрировалось охлаждаемым ФЭУ.

Спектры ФЛ и ВФЛ в отсутствие магнитного поля показаны на рис.1. В спектре ФЛ (рис.1а) видны две линии рекомбинационного излучения экситонов с тяжелой дыркой из широкой (HH₁) и узкой (HH₂) КЯ структуры (всюду индексом 1 отмечены линии, связанные с электронными переходами в широкой, а 2 – в узкой КЯ). При исследовании спектров ВФЛ спектральное положение выходной щели монохроматора фиксировалось примерно на середине длинноволнового крыла одной из линий ФЛ: HH₁ или HH₂. В результате при изменении энергии кванта возбуждения регистрировался спектр ВФЛ либо широкой (рис.1с), либо узкой (рис.1б) КЯ.

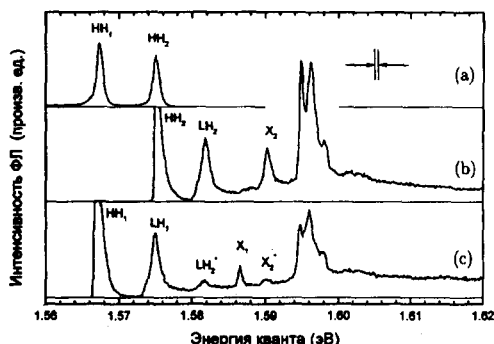


Рис.1. Спектры фотолюминесценции (возбуждение излучением с $h\nu = 1.65$ эВ) (а) и возбуждения фотолюминесценции узкой (б) и широкой (с) КЯ в отсутствие магнитного поля

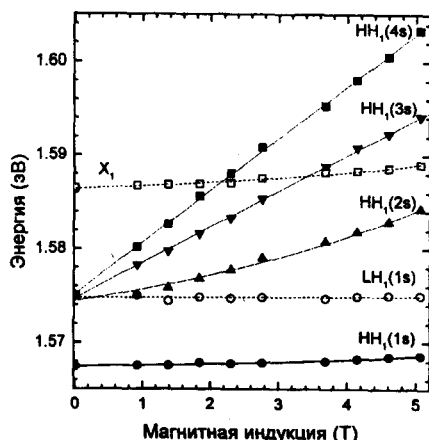


Рис.2. Зависимости энергетического положения линий тяжелых (HH₁) и легких (LH₁LH₂) экситонов в спектре ВФЛ широкой КЯ от индукции магнитного поля

В спектре ВФЛ каждой из ям наблюдаются линии возбуждения экситонов с тяжелыми (HN) и легкими (LH) дырками, отвечающие соответствующим парам уровней размерного квантования невзаимодействующих частиц (электронов и тяжелых или легких дырок). Кроме того, в спектрах ВФЛ обеих ям при энергиях, меньших ширины запрещенной зоны, в барьерном слое видны достаточно сильные X -линии (X_1 – в спектре широкой и X_2 – узкой ямы) и интенсивный триплет в области 1.594–1.599 эВ, а в спектре широкой КЯ – еще и относительно слабые линии LH_2^* и X_2^* .

В магнитном поле, ориентированном перпендикулярно слоям структуры, в спектрах ВФЛ появляются линии, отвечающие возбужденным состояниям магнитоэкситонов. На рис.2 показаны зависимости спектрального положения линий HN_1 , LH_1 , X_1 , а также энергий переходов в возбужденные $2s$, $3s$ и $4s$ состояния экситонов с тяжелыми дырками в широкой КЯ от индукции магнитного поля. Экстраполируя эти зависимости для возбужденных s -состояний (они показаны тонкими сплошными линиями) к нулевому полю, можно определить энергии переходов в возбужденные состояния экситонов с тяжелыми дырками в отсутствие магнитного поля и отсюда оценить их энергию связи. Аналогичное построение было выполнено для экситонных переходов в узкой яме. В результате для энергий связи экситонов, образованных из электрона и тяжелой дырки в широкой и узкой КЯ, были получены значения 7.2 мэВ и 6.4 мэВ, соответственно.

Диаманитные сдвиги линий X_1 и X_2 в поперечном поле ($\simeq 2.4$ мэВ и $\simeq 2.6$ мэВ при $B = 5.06$ Тл) существенно больше, чем линий HN_1 и HN_2 ($\simeq 1.2$ мэВ и $\simeq 1.4$ мэВ), соответственно, но значительно меньше, чем линий возбужденных состояний экситонов с тяжелыми дырками (рис.2). Это говорит о том, что X -линии отвечают состояниям, связанным слабее, чем экситон с тяжелой дыркой в основном состоянии, но сильнее, чем его возбужденные состояния. В параллельном слоям структуры магнитном поле с индукцией $B = 5.06$ Тл диаманитные сдвиги линий HN_1 и HN_2 равны $\simeq 0.7$ мэВ, а линий X_1 и X_2 , соответственно, $\simeq 1.8$ мэВ и $\simeq 2.3$ мэВ. Заметное уменьшение диаманитных сдвигов линий HN_1 и HN_2 при изменении ориентации магнитного поля находится в соответствии с тем обстоятельством, что экситоны с тяжелой дыркой в обеих ямах квазидвумерны и их боровские радиусы в плоскости КЯ существенно превышают ширину последних. Тогда как слабая зависимость диаманитных сдвигов X -линий от ориентации поля свидетельствует о приблизительно одинаковой протяженности в плоскости КЯ и в поперечном направлении волновых функций частиц в состояниях, которым отвечают эти линии. Исходя из сказанного, мы полагаем, что линии X_1 и X_2 обусловлены возбуждением экситонов, образованных из частицы одного знака (электрона), находящейся в КЯ на уровне размерного квантования, и свободной “надбарьерной” частицы противоположного знака, которая “затягивается” в область ямы силой кулоновского притяжения.

Наконец, происхождение линий LH_2^* и X_2^* в спектре ВФЛ широкой ямы, которые по своему спектральному положению в точности совпадают, соответственно, с линиями LH_2 и X_2 в спектре ВФЛ узкой ямы, но имеют почти на порядок меньшие интенсивности, по-видимому, связано с резонансным возбуждением легких экситонов в широкой КЯ при поглощении рекомбинационного излучения тяжелых экситонов узкой ямы. Как видно из рис. 1, энергии этих переходов в исследуемой структуре практически совпадают.

Рассмотрим теперь экситонные состояния в КЯ, взяв гамильтониан электронно-дырочной пары (с нулевым магнитным моментом) в приближении эффективной массы:

$$\hat{H} = \hat{H}_e(z_e) + \hat{H}_h(z_h) + \hat{H}_\rho(\rho) + V(z_e, z_h, \rho) + E_g^{bar}, \quad (1)$$

где $\hat{H}_{e(h)}$ – гамильтониан поперечного движения электрона (дырки) с учетом лишь гетероструктурного (ступенчатого) потенциала, \hat{H}_ρ – оператор кинетической энергии относительного движения в плоскости ямы, V – кулоновский потенциал, $z_{e(h)}$ – координата электрона (дырки) в поперечном направлении, ρ – расстояние между ними в плоскости ямы, E_g^{bar} – ширина запрещенной зоны в барьере.

Будем считать, что волновая функция экситона может быть представлена в виде

$$\Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \psi_e(z_e)\psi_h(z_h)\phi(\rho). \quad (2)$$

Тогда, последовательно умножая уравнение Шредингера $\hat{H}\Psi = E\Psi$ на $\psi_h(z_h)\phi(\rho)$, $\psi_e(z_e)\phi(\rho)$ и $\psi_e(z_e)\psi_h(z_h)$ и интегрируя по парам координат (z_h, ρ) , (z_e, ρ) и (z_e, z_h) , соответственно получим систему из трех уравнений вида

$$(\hat{H}_e + \langle V \rangle_{h,\rho})\psi_e = E_e\psi_e, \quad (\hat{H}_h + \langle V \rangle_{e,\rho})\psi_h = E_h\psi_h, \quad (\hat{H}_\rho + \langle V \rangle_{e,h})\phi = E_\rho\phi, \quad (3)$$

где

$$E_e = E - \langle \hat{H}_h \rangle_h - \langle \hat{H}_\rho \rangle_\rho, \quad E_h = E - \langle \hat{H}_e \rangle_e - \langle \hat{H}_\rho \rangle_\rho, \quad E_\rho = E - \langle \hat{H}_e \rangle_e - \langle \hat{H}_h \rangle_h. \quad (4)$$

Средние $\langle \dots \rangle_{i,j}$ и $\langle \dots \rangle_i$ в уравнениях (3) и (4) означают величины, усредненные по соответствующим однокоординатным волновым функциям. Самосогласованно решая систему одномерных уравнений (3), можно найти точную волновую функцию экситона вида (2) и энергию экситонного перехода E . В качестве нулевого приближения для $\psi_e(z_e)$ и $\psi_h(z_h)$ можно взять одночастичные волновые функции электрона и дырки, связанных в КЯ, или задать произвольно начальные функции необходимой симметрии. Последовательные приближения выполняются до тех пор, пока расхождение в значениях E , определяемых уравнениями (4), не окажется в пределах заданной ошибки вычислений. Заметим, что в первых двух уравнениях (3), описывающих движение электрона и дырки поперек плоскости КЯ, помимо гетероструктурного потенциала входят также $\langle V \rangle_{e,\rho}$ и $\langle V \rangle_{h,\rho}$, отвечающие электронно-дырочному взаимодействию. Дальнедействующий характер слагаемых $\langle V \rangle_{e,\rho}$, $\langle V \rangle_{h,\rho}$ приводит к возникновению целого ряда дополнительных экситонных состояний, связанных в КЯ.

На рис.3 показаны энергии (за вычетом ширины запрещенной зоны в барьерном слое $E_g^{bar} = 1.6006$ эВ) и силы осцилляторов экситонных переходов $1s$ -типа для GaAs/AlGaAs структуры I рода с КЯ глубиной 50.3 мэВ для электронов и 30.8 мэВ для дырок. Как видно из этого рисунка, экситонные переходы возможны как между состояниями, связанными в КЯ в отсутствие кулоновского взаимодействия (электронное состояние $1e$ и дырочные — $1hh$ и $1lh$), так и между состояниями, для локализации которых одного только гетероструктурного потенциала оказывается недостаточно. К примеру, третий уровень размерного квантования для тяжелой дырки ($3hh$) перестает существовать (выталкивается из ямы) при ширине КЯ $L \leq 120$ Å (отмеченной стрелкой на кривой энергии межзонного перехода $1e-3hh$), а для легкой дырки ($3lh$) — уже при $L = 200$ Å. Тем не менее, экситонные состояния $1e3hh$ и

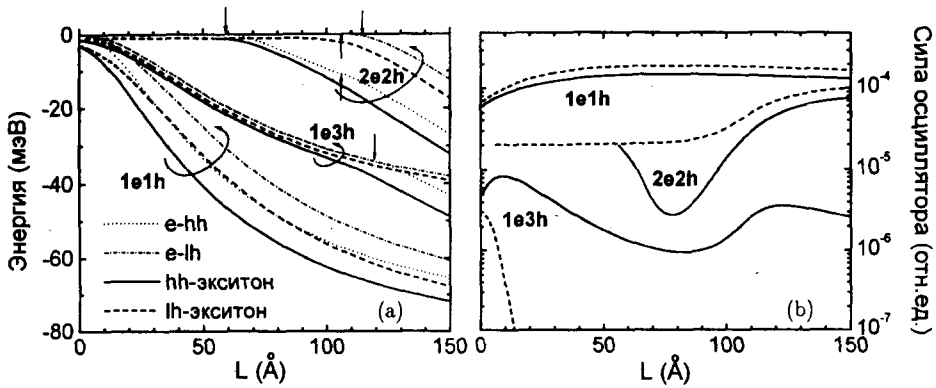


Рис.3. Зависимости энергий (а) и сил осцилляторов (б) экситонных переходов от ширины квантовой ямы L , а также зависимости энергий переходов между уровнями размерного квантования невзаимодействующих электронов и дырок ($e-hh$ и $e-lh$) в КЯ (а). Стрелками отмечены значения L , при которых исчезают связанные в КЯ одночастичные состояния электрона (\uparrow) или дырки (\downarrow); части кривых, расположенные левее соответствующих стрелок, показывают ход оставшегося уровня размерного квантования

$1e3lh$, отвечающие электрону на первом и, соответственно, тяжелой и легкой дыркам на третьих уровнях размерного квантования, существуют вплоть до $L = 0$. Видно также, что при любой ширине КЯ возможны переходы в экситонное состояние $2e2lh$ (построенное на антисимметричных волновых функциях $\psi_e(z_e)$ и $\psi_h(z_h)$), для которого при $L < 105 \text{ \AA}$ изначально отсутствуют как электронный, так и дырочный уровни размерного квантования. Такое состояние имеет сугубо экситонную природу: его энергия практически не зависит от L , а сама КЯ в данном случае играет роль плоского дефекта, нарушающего трансляционную инвариантность и локализирующего экситон в поперечном направлении. Как показывает расчет, для экспериментально исследованных КЯ с $L = 30 \text{ \AA}$ и 40 \AA имеются и другие возбужденные состояния (например, $1e5hh$, $1e7hh$ и $3e1lh$), энергия связи которых меньше 1 мэВ и характерный размер в плоскости КЯ составляет сотни \AA ; однако силы осцилляторов для переходов в эти состояния на несколько порядков меньше, чем для переходов, перечисленных на рис.3, и они не проявляются в оптических спектрах. Переход в состояние $1e3lh$ также имеет очень малую силу осциллятора, так как волновые функции электрона и легкой дырки почти ортогональны из-за небольшого различия их эффективных масс.

Заметим, что использованные в расчете величина разрыва запрещенной зоны (81.1 мэВ) на гетерогранице и ее распределение между зоной проводимости и валентной зоной (62% и 38%, соответственно) найдены из сопоставления теоретически рассчитанных и экспериментально полученных энергий межзонных переходов между размерно-квантованными состояниями электронов и тяжелых дырок в каждой из КЯ. Значения эффективных масс взяты в пределе сильного квантования [6]: $m_{hh}^z(lh) = (\gamma_1 \mp 2\gamma_2)^{-1}$, $m_{hh}^p(lh) = (\gamma_1 \pm \gamma_2)^{-1}$ с параметрами объемного GaAs $\gamma_1 = 6.790$, $\gamma_2 = 1.924$ и $m_e = 0.0665$ [7] (в единицах массы свободного электрона). Ввиду малого содержания Al в барьере мы пренебрегли различием этих параметров в слоях GaAs и AlGaAs. Какие-либо подгоночные параметры при расчете экситонных состояний не использовались.

В таблице приведены значения энергий, отвечающие положению экситонных линий в спектрах ВФЛ, и теоретически рассчитанные энергии экситонных переходов в КЯ шириной 30 и 40 Å. Видно, что спектральные позиции линий X_1 и X_2 хорошо совпадают с вычисленными энергиями переходов $1e3hh$ для обеих ям. Столь же хорошее согласие наблюдается и для переходов в основные состояния экситонов с легкой и тяжелой дырками.

Энергии экситонных переходов (за вычетом ширины запрещенной зоны барьера 1600.6 мэВ) в одиночных КЯ шириной $L = 40$ Å и 30 Å

$L, \text{Å}$	Эксперимент		Теория	
	линия	энергия (мэВ)	состояние	энергия (мэВ)
40	HH_1	-33.3	$1e1hh$	-33.6
30	HH_2	-25.5		-25.3
40	LH_1	-25.6	$1e1lh$	-25.7
30	LH_2	-18.8		-18.6
40	X_1	-14.1	$1e3hh$	-14.1
30	X_2	-10.4		-10.0
40			$2e2lh$	-0.9
30				-0.9

Для того чтобы объяснить происхождение и спектральное положение компонент триплета, одна из которых, видимо, является линией свободного экситона в барьерном слое (с энергией связи ≈ 5 мэВ [8]), необходимы дополнительные исследования. Заметим, что полученные в модели одиночной КЯ состояния $2e2lh$ для широкой и узкой ям простираются глубоко в барьер (их среднеквадратичная протяженность в поперечном направлении составляет около 200 Å) и, в действительности, должны весьма сильно взаимодействовать как между собой, так и с объемным экситоном в разделяющем ямы барьере. Расчеты показывают, что туннельная связь между ямами приводит к формированию в исследуемой структуре двух высоколежащих экситонных состояний с легкой и тяжелой дырками, имеющих энергии связи 1.35 мэВ и 2.3 мэВ, соответственно, и локализованных преимущественно в барьере. Первое из них образуется в результате взаимодействия почти резонансных состояний $2e2lh$ в широкой и узкой ямах (в результате расщепления верхний уровень выталкивается в континуум). Аналогичную природу имеет и второе состояние, несмотря на то, что в одиночных ямах с $L < 55 \text{ Å}$ состояние $2e2hh$ оказывается несвязанным из-за большого различия значений эффективных масс электрона и тяжелой дырки. В то же время, в ту же область энергий попадают делокализованные (объемные) экситонные состояния, которые могут проявляться в оптических спектрах благодаря резонансам в надбарьерных отражениях. Следует также учесть, что благодаря большой пространственной протяженности высоколежащие состояния весьма чувствительны к полю поверхностных зарядов, всегда присутствующему в объеме структуры.

В заключение заметим следующее. В настоящей работе исследовались достаточно мелкие КЯ в структурах с низким содержанием Al в барьерных слоях. Однако ясно, что роль кулоновского взаимодействия электрона и дырки в формировании связанных в КЯ состояний, особенно существенная для состояний с энергиями, близкими к вершине КЯ, будет проявляться независимо от глубины ямы. В структурах с более глубокими ямами этот эффект будет лишь менее наглядно проявляться из-за наличия большего числа уровней размерного квантования.

Авторы благодарны Л.В.Келдышу, В.Д.Кулаковскому и В.В.Капаеву за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фунда-

ментальных исследований (проекты 99-02-16367 и 97-02-17600), программ “Физика твердотельных наноструктур” (97-1050 и 97-1072) и “Фундаментальная спектроскопия” (08.02.73), а также Программы поддержки научных школ (96-15-96341 и 96-15-96476) и INTAS.

-
1. G.Bastard, E.E.Mendez, L.L.Chang, and L.Esaki, Phys. Rev. **B26**, 1974 (1982).
 2. R.L.Greene, K.K.Bajaj, and D.E.Phelps, Phys. Rev. **B29**, 1807 (1984).
 3. A.V.Kavokin, M.A.Kaliteevski, S.V.Goupalov et al., Phys. Rev. **B54**, R11078 (1996).
 4. V.D.Kulakovskii, A.Forchel, K.Pieger et al., Phys. Rev. **B50**, 7467 (1994).
 5. J.Warnock, B.T.Jonker, A.Petrou et al., Phys. Rev. **B48**, 17321 (1993).
 6. G.E.W.Bauer and T.Ando, Phys. Rev. **B38**, 6015 (1988).
 7. L.W.Molenkamp, R.Eppenga, G.W.Hoofst et al., Phys. Rev. **B38**, 4314 (1988).
 8. S.Adachi, J. Appl. Phys. **58**, R1 (1985).