

ВЛИЯНИЕ МЕЖЧАСТИЧНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НА ИЗЛУЧАТЕЛЬНОЕ ВРЕМЯ ЖИЗНИ ФОТОВОЗБУЖДЕННОЙ ЭЛЕКТРОН-ДЫРОЧНОЙ СИСТЕМЫ В КВАНТОВЫХ ЯМАХ GaAs

Л. В. Кулик, А. И. Тартаковский, А. В. Ларионов,

Е. С. Боровицкая, В. Д. Кулаковский

*Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 19 декабря 1996 г.

В квантовых ямах GaAs /AlGaAs исследовано изменение ширины линии излучения и времени жизни экситонов и электронно-дырочной плазмы при 77 К в широкой области плотностей от $3 \cdot 10^7$ до $3 \cdot 10^{12}$ см⁻². Проанализирована роль тепловой ионизации экситонов при малых плотностях возбуждения, роль экситон-экситонных и экситон-электронных взаимодействий и ионизационного разрушения экситонов при больших плотностях возбуждения.

1. ВВЕДЕНИЕ

Излучательная рекомбинация экситонов в полупроводниковых квазидвумерных системах принципиально отличается от таковой для трехмерного случая. Понижение размерности приводит к качественному изменению взаимодействия экситонов с электромагнитной волной. В бесконечном кристалле вследствие трансляционной симметрии такое взаимодействие приводит к образованию стационарных экситонных поляритонов, распад которых возможен только вследствие рассеяния на фононах или благодаря преобразованию на поверхности кристалла [1, 2]. В случае экситонов в квантовых ямах нарушение трансляционной симметрии в направлении, перпендикулярном плоскости квантовой ямы, приводит к очень быстрому (порядка 10 пс) распаду экситонов с малыми ($k < k_0 = n\omega_x/c$) квазиимпульсами. Здесь $\hbar\omega_x$ — энергия экситона, n — показатель преломления и c — скорость света. Экситоны с $k > k_0$ не рекомбинируют [2].

Причиной быстрого излучательного распада экситонов с $k < k_0$ является фазовая когерентность экситонных состояний. Потеря когерентности вследствие локализации экситонов, либо их рассеяния на фононах, электронах и т. д. приводит к резкому увеличению времени жизни экситонов [1]. К увеличению времени жизни экситонной системы с ростом температуры приводит также частичная ионизация экситонов [3].

В настоящей работе исследовано влияние межчастичных взаимодействий в экситонной системе в квантовых ямах GaAs/AlGaAs на ширину линии излучения и время жизни в широкой области плотностей носителей, в том числе в области перехода экситон-электронно-дырочная плазма. Эксперименты проводились при повышенной (77 К) температуре, когда реализуется равновесная экситон-электронно-дырочная система и влиянием локализации экситонов на флуктуациях потенциала можно пренебречь. В этих условиях оказывается возможным достаточно надежно определить как

полную концентрацию фотовозбужденных носителей, так и парциальный состав системы, что позволяет провести количественный анализ влияния экситон-электронных столкновений на затухание экситонных состояний и на излучательный распад экситонов, а также исследовать поведение времен излучательной рекомбинации квазидвумерной системы в области перехода экситонов в электронно-дырочную плазму при больших плотностях.

2. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для исследования нами была выбрана нелегированная гетероструктура с одиночной квантовой ямой GaAs/Al_{0.18}Ga_{0.82}As, выращенная методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Ширина квантовой ямы $L = 5$ нм. Для возбуждения экситонов использовался пикосекундный лазер на красителе R6G (длина волны 590 нм) с длительностью импульсов 70 пс и частотой повторения 4 МГц. Образец помещался в криостат. Для подвода возбуждающего света к образцу и сбора люминесценции использовался световод диаметром 0.6 мм, расположенный в непосредственной близости (≤ 0.5 мм) от поверхности образца. Для предотвращения разбегания фотовозбужденных носителей из области возбуждения нами использовались образцы с вытравленной мезой диаметром 0.5 мм. Люминесценция регистрировалась фотоумножителем в режиме время-скоррелированного счета фотонов. Концентрация фотовозбужденных носителей N в квантовой яме при больших плотностях возбуждения, приводящих к образованию плотной e - h -плазмы, определялась двумя способами: из анализа формы линии излучения [4] и исходя из измеренной плотности возбуждения (в условиях эксперимента время жизни фотовозбужденной системы всегда сильно превышало как длительность возбуждающего импульса, так и временные ворота при регистрации сигнала). Различие в величинах N , полученных этими методами не превышало 10%, что свидетельствует об эффективном сборе фотовозбужденных носителей в квантовой яме. При меньших плотностях возбуждения, когда в спектре доминирует линия излучения экситонов, концентрация определялась исходя из плотности возбуждения в предположении, что коэффициент сбора носителей в квантовой яме не зависит от плотности возбуждения.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлены спектры излучения квантовой ямы GaAs/AlGaAs в широком диапазоне плотностей возбуждения при температуре термостата 77 К. Для сравнения на рис. 1а штриховой линией показан спектр излучения экситонов при 4.2 К. Из рис. 1а видно, что при гелиевой температуре полуширина линии излучения экситонов Δ_x составляет 1.4 мэВ. Такая полуширина обусловлена локализацией экситонов на флуктуациях потенциала из-за неоднородностей ширины квантовой ямы и содержания Al в AlGaAs [5]. Неоднородное уширение линии излучения экситонов порядка 1 мэВ является характерным для высококачественных квантовых ям с $L = 5$ нм [5]. Увеличение температуры до 77 К при малой плотности возбуждения приводит к уширению линии излучения экситонов до $\Delta_x = 2.2$ мэВ. При малых плотностях возбуждения ширина линии почти не меняется до концентраций фотовозбужденных носителей $N \approx 10^9$ см⁻². Поэтому можно сделать вывод о том, что наблюдающееся увеличение

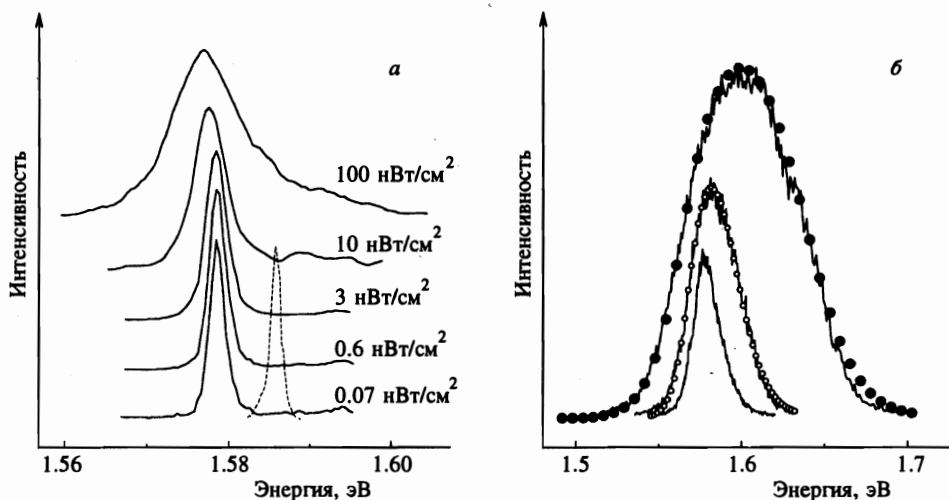


Рис. 1. Спектры излучения квантовой ямы GaAs/AlGaAs при температуре 77 К. Для сравнения на рис. 1а штриховой линией показан спектр излучения экситонов при 4.2 К

Δ_x при увеличении температуры от 4 К до 77 К связано в основном с возрастанием затухания экситонных состояний из-за экситон-фононного рассеяния и, следовательно, отражает увеличение однородной полуширины линии излучения экситонов [1, 6].

Из рис. 1 видно, что при плотностях возбуждения $W > 3$ нВт/см² линия излучения экситонов монотонно уширяется с ростом W . Это уширение свидетельствует о появлении дополнительного затухания экситонов вследствие межчастичных столкновений, прежде всего экситон-электронных. Действительно, при 77 К энергия связи экситона в квантовой яме сравнима с kT , и газ экситонов остается сильноионизованным до достаточно больших плотностей. Кроме того, экситон-экситонное взаимодействие (между двумя нейтральными частицами) существенно слабее, чем экситон-электронное.

При плотностях возбуждения $W > 100$ нВт/см² концентрация носителей превышает критическое значение для моттовского перехода экситонов в e - h -плазму. Из рис. 1б видно, что форма линии излучения в этом случае хорошо описывается в рамках приближения плазменной модели [3] и по форме линии можно определить плотность и температуру e - h -плазмы [7]. Результаты аппроксимации формы показывают, что температура e - h -плазмы увеличивается с ростом N от 90 К при $N = 5 \cdot 10^{11}$ см⁻² до 150 К при $N = 2 \cdot 10^{12}$ см⁻². Из рис. 1 также видно, что никаких особенностей в поведении ширины линии излучения из квантовой ямы в области плотностей, отвечающих переходу от экситонной системы к e - h -плазме, не наблюдается. Этого следовало ожидать, поскольку уширение экситонной линии излучения вблизи такого перехода вследствие межчастичных взаимодействий порядка постоянной Ридберга для экситонов, которая, в свою очередь, сравнима с фермиевской энергией в образующейся e - h -плазме [8].

Записи кинетики затухания интенсивности излучения из квантовой ямы $I(t)$ при различных плотностях возбуждения показаны на рис. 2. Время затухания люминесценции τ монотонно уменьшается с увеличением плотности носителей в квантовой яме. В общем случае, когда излучательное время рекомбинации экситонной системы τ_r за-

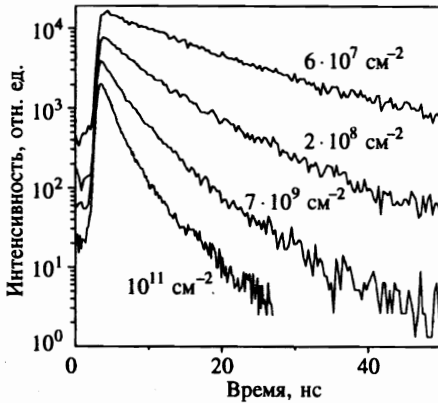


Рис. 2

Рис. 2. Кинетика затухания интенсивности излучения из квантовой ямы при различных плотностях возбуждения

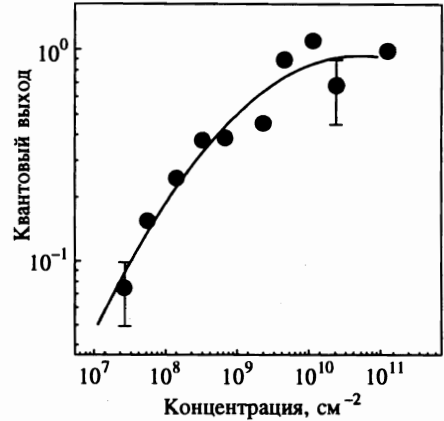


Рис. 3

Рис. 3. Зависимость квантового выхода от плотности $e-h$ -пар в квантовой яме при 77 К

висит от ее плотности, величина τ связана с τ_r соотношением:

$$\tau = \eta\tau_r / (1 + \eta d\tau_r / dt), \quad (1)$$

где $\eta = \tau_{nr} / (\tau_r + \tau_{nr})$ — квантовый выход, τ_{nr} — безызлучательное время жизни. Формула (1) получается из следующих соотношений:

$$dI/dt = -I/t, \quad (2)$$

$$I = N/\tau_r, \quad (3)$$

$$dN/dt = -N(1/\tau_r + 1/\tau_{nr}). \quad (4)$$

Измеренная зависимость квантового выхода от плотности пар в квантовой яме при 77 К приведена на рис. 3. При больших плотностях ($N = 10^{10}-10^{11} \text{ см}^{-2}$) квантовый выход остается постоянным. Измерения при пониженных температурах показали, что в этой области концентраций η не изменяется также при уменьшении T до 2 К, хотя время жизни при этом сокращается более чем в три раза. Поэтому мы полагаем, что в этой области плотностей $\eta \sim 1$. Из рис. 2 и 3 видно, что с уменьшением плотности ниже 10^{10} см^{-2} время затухания люминесценции увеличивается, а квантовый выход убывает. Следовательно, в этой области плотностей излучательное время становится сравнимым с τ_{nr} . При $N < 10^8 \text{ см}^{-2}$ величина η становится меньше 0.1, т. е. доминирует безызлучательный канал рекомбинации.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Зависимость полуширины линии излучения экситонов от плотности e - h -пар показана на рис. 4. В области $N < 10^{11}$ см $^{-2}$ зависимость $\Gamma(N)$ является линейной. Для ее аппроксимации можно воспользоваться выражением [9]

$$\Delta_x(N_e) = \Delta_{x0} + \Gamma_e(N_e), \quad (5)$$

где

$$\Gamma_e(N_e) = g_e \pi R a_x^2 N_e,$$

R и a_x — энергия связи и боровский радиус экситона соответственно, N_e — число свободных e - h -пар, а g_e — коэффициент электрон-экситонного взаимодействия. Концентрацию электронов можно определить из равенства химических потенциалов экситонов и свободных электронов и дырок в условиях равновесия:

$$\mu_x = \mu_e + \mu_h, \quad (6)$$

где $\mu_{x,e,h}$ — соответственно химические потенциалы экситонов, электронов и дырок.

Из аппроксимации следует, что $g_e = 9.5$. Это значение находится в согласии с полученными ранее оценками величины g_e из измерений по четырехволновому смешиванию [9] $g_e = 10.2$. Влияние экситон-электронного взаимодействия на ширину линии излучения было количественно оценено с помощью формализма, развитого в [8]. Однородная ширина линии, согласно [8], равна

$$\Gamma_e = \frac{4\hbar^2}{\pi M} \int_0^\infty dk k^2 Q f \left(\frac{2m_e + m_h}{m_e + m_h} k \right),$$

где $M = m_e(m_e + m_h)/(2m_e + m_h)$, $m_e(m_h)$ — эффективная масса электрона (дырки), f — фермиевская функция распределения. Сечение рассеяния Q в нашем случае имеет вид

$$Q = 4\pi \left(\frac{M}{m_e} \right)^2 k^{-1} \int_0^\pi d\theta K^{-2} \left(\left[1 + \left(\frac{m_e K}{4m_h} \right)^2 \right]^{-3/2} - \left[1 + \left(\frac{K}{4} \right)^2 \right]^{-3/2} \right)^2,$$

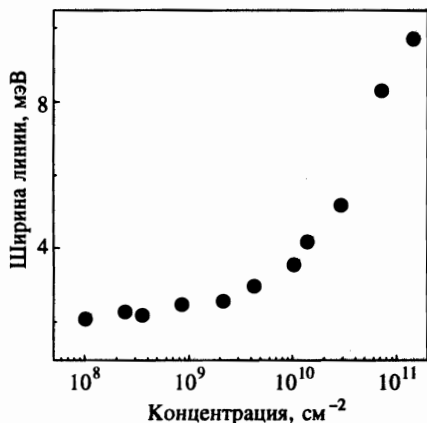


Рис. 4. Зависимость полуширины линии излучения экситонов от плотности e - h -пар

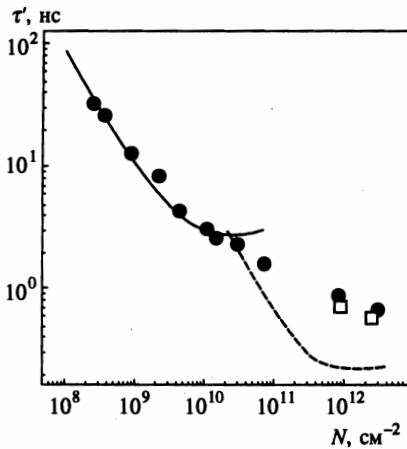


Рис. 5. Зависимость τ' от концентрации e - h -пар. Экспериментальные результаты — точки, теоретическая зависимость, рассчитанная по формулам (1), (9)–(12) — сплошная кривая. Штрихами показана теоретическая зависимость времени жизни e - h -плазмы при 77 К. Светлые квадраты соответствуют расчету для $N = 10^{12} \text{ см}^{-2}$, $T = 150 \text{ К}$ и $N = 3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, $T = 280 \text{ К}$.

здесь $K = 2ka_x \sin(\theta/2)$, где θ — угол рассеяния. В результате был получен коэффициент экситон-электронного взаимодействия, равный $g_e = 12.4$, что хорошо согласуется с результатами эксперимента.

На рис. 5 показана зависимость $\tau'(N) = \eta\tau(N)$, полученная на основании обработки данных, приведенных на рис. 2 и 3. Из формулы (2) следует, что $\tau'(N)$ представляет излучательное время с точностью до множителя $(1 + \eta d\tau/dt)$, величина которого, как будет показано в дальнейшем, порядка 2. Из рис. 5 видно, что в области $N = 3 \cdot 10^7$ – 10^9 см^{-2} время $\tau'(N)$ уменьшается обратно пропорционально плотности более чем на порядок. При больших плотностях возбуждения эта зависимость ослабевает. Сильное возрастание излучательного времени при малых N связано с ионизацией экситонов.

Доля неионизованных экситонов в фотовозбужденной системе равна

$$\alpha = \frac{N_x}{N} = 1 - \frac{K}{2N\sqrt{(1+4N/K)}}, \quad (7)$$

где

$$K = \frac{N_e N_h}{N_x} = \frac{m_e m_h kT}{\pi \hbar^2 m_x} \exp\left(-\frac{R}{kT}\right), \quad (8)$$

m_x — масса экситона. Поскольку при 77 К постоянная Ридберга для экситонов в квантовой яме (11.5 мэВ) сравнима с kT , ионизация экситонов при малых плотностях велика, и $\alpha \propto 1/N$ (рис. 5). Излучательная рекомбинация свободных электронов и дырок пренебрежимо мала. Поэтому излучательное время квазидвумерной системы можно записать в виде

$$\tau_r(N) = \tau_x(T)/\alpha(N). \quad (9)$$

Здесь $\tau_x(T)$ — излучательное время экситонов. Оно связано с временем жизни τ_0 для экситонов с $k < k_0$ следующим соотношением:

$$\tau_x(T) = 3m_x kT \tau_0 / \hbar^2 k_0^2. \quad (10)$$

В области концентраций $N > 10^{10} \text{ см}^{-2}$, когда наблюдается возрастание полуширины линии излучения экситонов (рис. 4), необходимо также учитывать влияние на τ_x межчастичных столкновений. В общем случае время τ_x связано с однородным уширением линии люминесценции Γ_h следующим образом [2, 6]:

$$\tau_x \propto \frac{\hbar\Gamma_h}{1 - \exp(-\hbar\Gamma_h/kT)} \tau_0. \quad (11)$$

При низких концентрациях носителей, пока $\hbar\Gamma_h \ll kT$, $\tau_x \propto kT$ и не зависит от N . Вклад от экситон-электронных столкновений становится существенным при больших плотностях, когда затухание экситонов возрастает и становится сравнимым с kT . В частности, оценки по формуле (11) с использованием найденной из полуширины линии излучения величины $\Gamma = 8 \text{ мЭВ}$ при концентрациях $N = 3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ дают почти полуторакратное увеличение τ_x .

Кроме этого следует принять во внимание, что при больших плотностях волновая функция экситона модифицируется из-за межчастичных взаимодействий, что приводит к изменению силы осциллятора экситона f_x и, следовательно, τ_0 ($\tau_0 \propto 1/f_x$ [10]). Действительно, электрон или дырка, как свободные, так и связанные в экситон, могут быть рассеяны лишь в свободную ячейку k -пространства. Поэтому при больших концентрациях носителей вероятность рассеяния уменьшается. Модификация волновой функции приводит к уменьшению силы осциллятора, так как $f_x \propto |\Psi(r=0)|^2$, и, как следствие, к возрастанию τ_0 и τ_x .

Вклад межчастичных взаимодействий в силу осциллятора можно учесть по теории возмущений, рассматривая кулоновское взаимодействие в качестве поправки. Подобная процедура была проделана в [10], где рассматривалось влияние многочастичных эффектов на экситонное поглощение. С точностью до членов второго порядка малости сила осциллятора приобретает вид

$$f_x \propto |\Psi_0(r=0)|^2 \left[1 - \pi a_x^2 N_x - (\pi^2 - \pi) a_x^2 N_e + \frac{\pi \ln 2}{2\sqrt{3}} (k_0 a_x)^2 \frac{\mu}{m_x} \right], \quad (12)$$

где

$$k_0 = \frac{4\pi N_e e^2}{\epsilon_0 kT},$$

μ — приведенная масса экситона, ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость материала. Соотношение между N_x и N_e определяется уравнением (7). Результат получен в пределе, когда $k_0 a_x \ll 1$ и $R > kT$, т. е. формула (12) справедлива до концентраций $N_e < 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Второе условие отвечает рассматриваемому нами случаю $R = 11.5 \text{ мЭВ}$ и $kT = 6.6 \text{ мЭВ}$.

Два первых слагаемых в (12) появляются из-за обменного взаимодействия экситона с другими экситонами и свободными носителями соответственно. Третье слагаемое отражает вклад от рекомбинации свободного электрона (дырки) с дыркой (электроном), связанной в экситон. Оно положительное, т. е. ведет к уменьшению времени жизни экситона, и его вклад становится существенным при концентрациях $N > 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

Сплошная кривая на рис. 5 соответствует зависимости $\tau'(N)$, рассчитанной по формулам (1), (9)–(12) с учетом ионизации экситонов, экситон-электронных столкновений

и изменения f_x . Единственным подгоночным параметром является время τ_0 . Оно выбиралось таким образом, чтобы описать экспериментальную зависимость в области малых плотностей, когда межчастичными взаимодействиями можно пренебречь. Найденная из такой подгонки величина $\tau_0 = 24$ пс удовлетворительно согласуется с рассчитанной для квантовой ямы AlGaAs/GaAs с $L = 50$ Å на основании работы [2] величиной $\tau_0 = 16$ пс.

Рассчитанная зависимость $\tau'(N)$, изображенная на рис. 5 сплошной кривой, описывает измеренную вплоть до концентраций $N \approx 7 \cdot 10^{10}$ см⁻². При больших N поведение расчетной зависимости $\tau'(N)$ начинает качественно отличаться от измеренной. Следовательно, в этой области концентраций экситонные корреляции теряют свое доминирующее значение и для расчета времени жизни e - h -пар необходимо исходить из плазменного предела.

Расчет времени жизни свободных e - h -пар в квантовой яме может быть проведен аналогично тому, как это сделано в [2] для экситонов. Обратное время жизни пары записывается следующим образом:

$$\tau_{eh}^{-1} = \frac{1}{N} \frac{2\pi}{m_0 c_0 \sqrt{\epsilon_0}} e^2 m E_{eh} \sum_{\mu\nu c} \mu_{\nu c} \left| \int \psi_c \psi_\nu dV \right|^2 \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{2\pi^2} \int n_k n_{k'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') d^2 k d^2 k', \quad (13)$$

где n_k — функция распределения фермионов, $\psi_{c(v)}$ — огибающая волновая функция в зоне проводимости (в валентной зоне). Из (13) видно, что время жизни пары $\tau \propto n^{-2}$ только для невырожденной статистики фермионов, а в пределе вырожденной статистики, когда $N\pi\hbar^2/m \gg kT$, время жизни электрон-дырочных пар перестает зависеть от концентрации и приближается к константе, для наших параметров равной 0.24 нс. Это время примерно на порядок больше времени жизни экситонов при $k < k_0$, но существенно меньше времени жизни экситонов при 77 К $\tau_x = 0.8$ нс. Сравнение экспериментальных и рассчитанных излучательных времен жизни при больших плотностях показано на рис. 5 штриховой кривой. Из рисунка видно, что при самых больших плотностях $N > 10^{12}$ см⁻² время жизни e - h -плазмы, рассчитанное для $T = 77$ К, существенно меньше найденного в эксперименте. Это неудивительно, поскольку, как было показано выше, температуры фотовозбужденной e - h -плазмы в квантовой яме при таких плотностях превышают 200 К. При столь высоких температурах дырки оказываются невырожденными, что ведет к заметному удлинению излучательного времени жизни e - h -пар. Две точки на рис. 5, обозначенные квадратами, соответствуют расчету, выполненному для $N = 10^{12}$ см⁻² при $T = 150$ К и для $N = 3 \cdot 10^{12}$ см⁻² при $T = 280$ К, что отвечает температурам, оцененным из спектров излучения e - h -плазмы. Рассчитанные значения τ' хорошо согласуются с экспериментом.

Очевидно, что нижняя граница применимости плазменного приближения для расчета τ' определяется появлением в плазме экситонных корреляций. Экситонные корреляции будут приводить к увеличению перекрытия волновых функций электронов и дырок, и, следовательно, к уменьшению времени жизни. Из рис. 5 видно, что это происходит в области плотностей $N \propto 10^{11}$ см⁻², т. е. именно в той области, где становится справедливым экситонное приближение. Концентрация $N \sim 10^{11}$ см⁻² соответствует безразмерному параметру $r_s = 1/\pi a_x^2 N \approx 3$, что согласуется с ожидаемым значением для экситонно-плазменного перехода в плотной системе.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В условиях реализации равновесной экситон-электрон-дырочной системы исследовано влияние межчастичных взаимодействий в квантовой яме GaAs/AlGaAs на ширину линии излучения и время жизни. При малых плотностях возбуждения рассмотрена роль тепловой ионизации экситонов. При больших плотностях возбуждения, в том числе в области перехода экситон-электрон-дырочная плазма, проанализировано влияние на время жизни экситон-электронных и экситон-экситонных взаимодействий и ионизационного разрушения экситонов.

Авторы благодарят профессора А. Форхела (Университет г. Вюрцбурга, Германия) за полезные дискуссии. Работа выполнена при поддержке INTAS (грант 94-2112) и программы МНТК «Физика твердотельных структур».

Литература

1. E. Hanamura, Phys. Rev. B **38**, 1228 (1988).
2. D. S. Citrin, Phys. Rev. B **47**, 3832 (1993).
3. V. Srinivas, J. Hryniewicz, Y. J. Chen et al., Phys. Rev. B **46**, 10193 (1992).
4. P. T. Landsberg, Sol. St. Electron. **10**, 513 (1967).
5. L. C. Andreane, F. Tassoni, and F. Bassani, Sol. St. Comm. **77**, 641 (1991).
6. J. Feldmann, G. Peter, E. O. Goebel et al., Phys. Rev. Lett. **59**, 1337 (1987).
7. B. Deveaud, F. Clerot, N. Roy et al., Phys. Rev. Lett. **67**, 2355 (1991).
8. Y.-P. Feng and H. N. Spector, J. Phys. Chem. Sol. **48**, 593 (1987).
9. A. Honold, L. Schultheis, J. Kuhl et al., Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989).
10. S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, and D. A. Miller, Phys. Rev. B **32**, 6601 (1985).