На правах рукописи
УДК 538.97 538.958

Кочиев Михаил Валериевич

Динамика неравновесных носителей заряда в наноструктурах GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами

Специальность 01.04.07 - Физика конденсированного состояния

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва - 2012

Работа выполнена в Отделении физики твердого тела Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН
Николай Николаевич Сибельдин

Официальные оппоненты:
доктор физико-математических наук, профессор
Леонид Евгеньевич Воробьев (Санкт-Петербургский государственный политехнический университет)

доктор физико-математических наук, профессор
Сергей Григорьевич Тиходеев (Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук)

Ведущая организация:
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук.

Защита состоится __ _____ 2012 года в ____ на заседании диссертационного совета Д 002.023.03 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук по адресу 119991, г. Москва, Ленинский проспект, д. 53, ФИАН. С диссертацией можно ознакомится в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук, с авторефератом — на сайте института www.lebedev.ru.

Автореферат разослан __ _____ 2012 г. Отзывы на автореферат просим присылать по адресу: 119991 г. Москва, Ленинский проспект, д. 53, ФИАН, Отделение физики твердого тела.

Ученый секретарь диссертационного
совета Д 002.023.03 д.ф.-м.н., проф. Шиканов А.С

Общая характеристика работы

Актуальность исследования.

В 1931 году Френкелем [1] впервые были сформулированы основы теории экситонов — бестоковых возбужденных состояний электронной системы диэлектрического кристалла. В полупроводниках образуются экситоны большого радиуса (экситоны Ванье-Мотта [2, 3]), в которых электрон и дырка связаны силой кулоновского взаимодействия. Такие экситоны можно рассматривать как нейтральные квазиатомы, подобные атому водорода, с той разницей, что массы протона и электрона заменяются на эффективные массы дырки и электрона, кулоновское взаимодействие между которыми ослаблено поляризацией кристалла. Открытие в 1952 г. Гроссом и Каррыевым [4, 5] водородоподобной серии в спектре поглощения кристалла закиси меди явилось первым экспериментальным доказательством существования экситонных состояний в полупроводниковых кристаллах и послужило началом широких исследований экситонов в конденсированных средах.

В конце 60-х годов резко возрос интерес к исследованиям межчастичных взаимодействий в экситонных системах высокой плотности, которые стало возможным создавать и изучать благодаря появившейся возможности использовать лазерное излучение для возбуждения кристаллов. В полупроводниках были экспериментально обнаружены экситонные молекулы (биэкситоны), ранее предсказанные Лампертом [6] и Москаленко [7], многочастичные экситонно-примесные комплексы, конденсация экситонов в электронно-дырочную жидкость, представления о возможности существования и основных свойствах которой были сформулированы Келдышем [8], а также целый ряд других явлений.

Следующий подъем в исследовании экситонных эффектов начался в 80-х годах благодаря развитию высоких технологий и, прежде всего, молекулярно-пучковой эпитаксии, которое привело к появлению качественно новых объектов — полупроводниковых низкоразмерных гетероструктур достаточно высокого качества. В низкоразмерных системах свободное движение носителей заряда возможно лишь в определенных направлениях, тогда как в других направлениях оно ограничено потенциальными барьерами. Так, в квантовых ямах (КЯ) частицы могут свободно двигаться вдоль плоскости, параллельной потенциальным барьерам (квазидвумерная система). Движение в перпендикулярном направлении ограничено барьерами, а его энергия квантована (размерное квантование). В полупроводниковых гетероструктурах

КЯ образуются в тонких слоях какого-либо полупроводникового материала, заключенных между слоями другого материала с большей шириной запрещенной зоны.

Экситоны в значительной степени определяют оптические свойства квантоворазмерных структур, особенно при низких температурах. Энергия связи экситона и сила осциллятора экситонного перехода значительно увеличиваются при понижении размерности. Так, энергия связи двумерного экситона в 4 раза больше, чем у трехмерного в том же материале. Благодаря этому экситонные эффекты могут проявляться даже при комнатной температуре, что может служить предпосылкой их практического использования.

Широкие исследования экситонов в наноструктурах привели к обнаружению целого ряда новых явлений и существенно расширили имевшиеся представления. В частности, в 1993 году в КЯ были экспериментально обнаружены отрицательно заряженные трехчастичные экситонные комплексы — трионы [9], возможность образования которых была предсказана за 35 лет до этого [6]. Линии трионов в спектрах люминесценции, пропускания и отражения возникают при наличии в КЯ избытка электронов (либо дырок) и расположены по энергии на несколько мэВ ниже экситонных линий. С увеличением концентрации электронов (дырок) интенсивность трионных линий возрастает, в то время как экситонных — падает [10]. Для создания избыточной концентрации электронов или дырок в КЯ, как правило, используется модулированное легирование, однако, можно создать избыточную концентрацию одноименных носителей заряда при помощи оптического возбуждения и в нелегированных образцах [11]. Изменяя уровень оптического возбуждения с определенной энергией фотонов, можно произвести даже перезарядку трионов [12]. При накоплении в КЯ избытка носителей заряда какого-либо знака происходит пространственное разделение электронов и дырок. Время существования избыточного заряда определяется скоростью туннелирования в барьер и может быть довольно большим. Имеется лишь одна работа, в которой это время было измерено в условиях квазистационарного фотовозбуждения структуры [13]. Представляет существенный интерес выяснить, каким образом процессы накопления проявляются в типичных экспериментах по исследованию динамики экситонов в КЯ, которые обычно проводятся при возбуждении пикосекундными импульсами с высокой частотой повторения ($76 \div 100$ МГц).

Трионы имеют небольшую энергию связи и при повышении темпе-

ратуры диссоциируют на экситоны и свободные электроны (дырки). Дальнейшее возрастание температуры приводит к ионизации экситонов, а в мелких КЯ, являющихся объектом исслелдования в настоящей работе, и к эмиссии из КЯ электронов и дырок, которая вызывает дополнительное тушение экситонной люминесценции и уменьшение времени её затухания. Динамика экситонов в мелких КЯ при повышенных температурах исследовалась в ряде работ (см., например, [14]). Однако единого мнения о механизме температурного тушения до сих пор нет, и исследования эмиссии носителей заряда продолжаются [15].

В данной работе исследованы фотолюминесценция (ФЛ) и кинетика ФЛ в гетероструктуре I рода GaAs/AlGaAs с двумя мелкими квантовыми ямами шириной 3 и 4 нм при различных условиях возбуждения пикосекундными лазерными импульсами в диапазоне температур $5 \div 70$ K. При низкой температуре (5 K) изучены динамика экситон-трионной системы и накопление избыточных носителей заряда в КЯ при внутриямном, надбарьерном и двухцветном возбуждении. При высоких температурах и внутриямном возбуждении импульсами различной энергии исследована динамика экситонов в КЯ и эмиссия неравновесных носителей заряда из ям, приводящая к тепловому тушению ФЛ.

Целью настоящей работы являлось исследование динамики неравновесных носителей заряда в структурах с мелкими квантовыми ямами (КЯ) при возбуждении пикосекундными лазерными импульсами, включая процессы формирования трионов, рекомбинации в экситон-трионной системе, накопления носителей заряда в КЯ и их тепловой эмиссии из ям.

Научную новизну работы составляют следующие основные положения, выносимые на защиту:

1. При надбарьерном возбуждении накопление в квантовых ямах (КЯ) нелегированных структур избытка неравновесных одноименных носителей заряда играет ключевую роль в формировании экситон-трионной системы в КЯ и определяет не только её парциальный состав, а и динамические свойства.
2. В экситон-трионной системе, созданной импульсами надбарьерного возбуждения, времена жизни экситонов и трионов определяются плотностью избыточных одноименных носителей заряда в КЯ и уменьшаются, когда она возрастает.
3. Время существования избыточных носителей заряда в КЯ значительно превышает времена жизни экситонов и трионов.

4. При внутриямном импульсном фотовозбуждении дополнительная надбарьерная импульсная подсветка приводит к сильному возрастанию интенсивности экситонной люминесценции и резкому уменьшению времени ее затухания, а также к возникновению излучения трионов.
5. В структурах с мелкими квантовыми ямами интенсивность и время затухания люминесценции экситонов резко уменьшаются при возрастании температуры в диапазоне $30 \div 70$ K из-за тепловой эмиссии носителей заряда в барьерный слой с последующей их быстрой рекомбинацией. Энергия активации температурного тушения фотолюминесценции близка к сумме энергий локализации в КЯ электрона и дырки и практически не зависит от мощности возбуждения.
6. В структурах с туннельно-изолированными мелкими квантовыми ямами различной ширины при высоких температурах ($40 \div 70$ K) благодаря процессам эмиссии из КЯ и захвата неравновесных носителей заряда в ямы может устанавливаться тепловое равновесие между экситонами в разных ямах. При низких температурах обмен носителями заряда между квантовыми ямами отсутствует.

Научная и практическая значимость работы заключается в новых данных о динамике экситонной и экситон-трионной систем в мелких квантовых ямах при различных условиях эксперимента: температура, энергия квантов, мощность и частота повторения возбуждающих импульсов лазерного излучения. Полученные результаты развивают и углубляют представления о кинетических процессах, протекающих в структурах с квантовыми ямами при фотовозбуждении: захвате в квантовые ямы и эмиссии из них неравновесных носителей заряда, формировании трионов, рекомбинационных процессах. Большое значение имеет установление роли долгоживущих избыточных одноименных носителей заряда в формировании и динамике экситон-трионной системы. Полученные результаты и разработанные экспериментальные методики могут быть использованы при исследовании неравновесных процессов в низкоразмерных полупроводниковых наноструктурах.

Достоверность полученных результатов определяется надежностью экспериментальных методов, воспроизводимостью экспериментальных данных и их качественным согласием с результатами теоретических расчетов, а также внутренней непротиворечивостью и соответствием, где сопоставление возможно, с имеющимися литературными

данными.

Апробация работы. Результаты диссертационной работы докладывались на XI и XII Всероссийских молодёжных конференциях по физике полупроводников и наноструктур, Санкт-Петербург, 2009 и 2010 гг [A4, A6]; XIV, XV и XVI Международных симпозиумах «Нанофизика и наноэлектроника», Нижний Новгород, 2010, 2011 и 2012 гг [A5, A8, A10]; XIII Школе молодых ученых «Актуальные проблемы физики», Звенигород, 2010 г. [A7]; X Российской конференции по физике полупроводников, Нижний Новгород, 19–23 сентября 2011 г [A9]; а также аспирантском семинаре и семинаре Отделения физики твердого тела ФИАН.

Доклад «Влияние уровня фотовозбуждения на кинетику экситонной люминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами» на XII Всероссийской молодёжной конференции по физике полупроводников и наноструктур отмечен дипломом и премией имени Е. Ф. Гросса как лучший доклад по оптике твердого тела.

Публикации. По теме диссертации опубликованы 2 статьи в научных журналах [A1, A2] и 6 работ в материалах международных и всероссийских конференций и симпозиумов [A4 – A10], 1 статья направлена в печать [A3].

Личный вклад автора в работы, выполненные в соавторстве, состоял в его участии в постановке задач, разработке методик, проведении экспериментов, обработке и интерпретации результатов, написании статей.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, списка опубликованных работ по теме диссертации и списка использованной литературы. Материал изложен на 122 страницах, содержит 54 рисунка, 94 наименования в списке литературы.

Содержание диссертации

Введение

Во введении обосновываются выбор темы диссертации и её актуальность, описана структура диссертации и приведены основные положения, выносимые на защиту.

Глава 1. Экситоны и трионы в квантовых ямах (литературный обзор)

В первой главе в **разделе 1.1** рассмотрены основные сведения об экситонах. Далее в **разделе 1.2** рассматриваются литературные сведения об экситонах в квантовых структурах. Основное внимание уделено гетероструктурам с квантовыми ямами. Рассматриваются процессы формирования и релаксации экситонов в КЯ. Основное внимание уделено работам, посвященным механизмам температурного тушения экситонной фотолюминесценции и тепловой эмиссии носителей заряда из КЯ. Рассмотрены униполярная и биполярная модели тепловой эмиссии носителей заряда. В **разделе 1.3** приводятся данные о трионах в квантовых ямах, известные из литературы. Акцент делается на исследования динамики формирования и релаксации трионов.

Глава 2. Методика экспериментов

Во второй главе описаны исследованные структуры, рассмотрены две методики проведения спектрально-кинетических измерений и приведены соответствующие им схемы экспериментальных установок.

Описание структур дается в **разделе 2.1.** Исследования проводились на номинально нелегированных структурах $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ ($x = 0{,}05$) с двумя мелкими квантовыми ямами. Высота потенциальных барьеров для обеих КЯ одинакова, но ширина ям различна: узкая КЯ имела ширину 3 нм, широкая — 4 нм. В образце с туннельно изолированными квантовыми ямами ширина барьерного слоя между КЯ составляла 60 нм, с туннельно связанными ямами — 14 нм. Основные результаты получены на образце с туннельно-изолированными КЯ. Обе мелкие квантовые ямы имеют по одному уровню размерного квантования для электронов, легких и тяжелых дырок. Энергия связи экситонов с тяжелыми дырками составляет 7,2 и 6,4 мэВ в узкой и широкой КЯ, соответственно.

В **разделе 2.2** описываются использовавшиеся экспериментальные методики. Образец был помещен в гелиевый криостат с температурным контролем. Эксперименты проводились при температурах от 5 до 70 К. Для возбуждения образца использовалось излучение пикосекундного (длительность импульса 2,5 пс) перестраиваемого Ti-сапфирового лазера с синхронизацией мод Mira-900P, либо вторая гармоника этого излучения. В экспериментах с «двухцветным» возбуждением на структуру поступали импульсы первой и второй гармоник,

задержанные друг относительно друга.

На первом этапе исследования проводились методом параметрического сложения частот опорного и исследуемого излучений ("up-conversion") [16], представляющего собой один из вариантов широко применяемого метода "pump-probe". Исследуемая люминесценция с оптической частотой ν_{PL} и опорный луч с частотой ν_{gate} фокусируются в одну и ту же область нелинейного кристалла (НК). Под воздействием этих лучей в НК происходит генерация излучения на суммарной оптической частоте: $\nu_{\mathrm{UC}} = \nu_{\mathrm{PL}} + \nu_{\mathrm{gate}}$. Излучение НК на суммарной частоте пропорционально интенсивности фотолюминесценции в момент прихода на НК опорного импульса. С помощью данного метода были получены предварительные данные о кинетике ФЛ исследованной структуры.

Второй метод основан на использовании сверхскоростной электронно-оптической камеры (стрик-камеры). Стрик-камера, сопряженная со спектрометром, позволяет получать спектрально-временную развертку исследуемой люминесценции.

В диссертации приводится сравнение этих двух методов. В частности отмечается, что стрик-камера имеет более высокую чувствительность и позволяет получить лучшее спектральное разрешение, которое определяется разрешением спектрометра. Тогда как в методе параметрического сложения частот разрешение ограничено спектральной шириной опорного импульса (1 мэВ в нашем случае). Вместе с тем, стрик-камера заметно проигрывает во временном разрешении. Поскольку её временное разрешение было достаточным для регистрации исследовавшихся в работе процессов, основные результаты, изложенные в диссертации, были получены с помощью стрик-камеры.

Исследования спектров ФЛ без временного разрешения проводились с помощью дифракционного спектрометра, снабженного охлаждаемым матричным ПЗС-приемником; спектральное разрешение в этом случае составляло 0,15 мэВ.

Глава 3. Динамика люминесценции экситонов и трионов в мелких квантовых ямах.

В данной главе рассказано о спектрах и кинетике экситонной и трионной ФЛ при возбуждении лазерными импульсами и импульсами второй гармоники лазерного излучения. Также рассмотрен процесс накопления избыточного заряда, приводящего к образованию трионов, и его влияние на кинетику экситон-трионной системы.

Рис. 1. Усредненный по времени спектр ФЛ при возбуждении импульсами ВГ при температуре 5 К. Точками показано разложение на лоренцовские линии по методу наименьших квадратов.

Для эффективного возбуждения трионной ФЛ структуры использовались короткие световые импульсы (с длиной волны ≈ 386 нм) второй гармоники (ВГ) излучения Ti-сапфирового лазера, генерируемые нелинейным кристаллом. В **разделе 3.1** описана схема двухцветного возбуждения образца лазерными импульсами и импульсами ВГ. Для подбора необходимой временно́й задержки между лазерным импульсом и импульсом ВГ, первый проходил через оптическую линию задержки с уголковым отражателем. Средняя мощность накачки образца составляла ≈ 5 мВт. Исследования кинетики ФЛ проводились при $T = 5$ К.

На усредненном по времени спектре ФЛ КЯ при возбуждении ВГ кроме линий излучения экситонов в каждой яме (1.5665 и 1.5745 эВ) наблюдается трионная люминесценция с максимумами интенсивности, расположенными на ≈ 1 мэВ ниже по энергии (рис. 1). Ширина на полувысоте как экситонных, так и трионных линий ФЛ составляет ≈ 1 мэВ. При внутриямном возбуждении данной структуры трионная ФЛ не наблюдается [21].

Для детального исследования кинетики ФЛ экситонов и трионов при надбарьерном возбуждении импульсами ВГ с частотой повторения 76 МГц, набор разрешенных по времени спектров раскладывался на 2 лоренцевских контура для каждой КЯ. По интенсивностям линий, полученных в результате разложения, были построены кинетические зависимости для экситонов и трионов в каждой КЯ. Времена затухания на начальном участке составляют $\tau_{\mathrm{X}}^{\mathrm{N}} \approx 180$ пс, $\tau_{\mathrm{T}}^{\mathrm{N}} \approx 230$ пс и $\tau_{\mathrm{X}}^{\mathrm{W}} \approx 140$ пс, $\tau_{\mathrm{T}}^{\mathrm{W}} \approx 220$ пс.

В **разделе 3.2** описываются результаты кинетических измерений экситонной и трионной ФЛ при двухцветном возбуждении структуры. Частоту повторения возбуждающих импульсов излучения уменьшали относительно частоты задающего лазера 76,4 МГц в 16, 32, 64 и 128 раз. При этом последовательность импульсов ВГ была задержана на 0,9 нс относительно импульсов лазера. Энергия кванта лазерного излучения была меньше ширины запрещенной зоны барьерных слоев структуры и составляла 1,595 эВ, то есть возбуждение лазерным излучением было внутриямным. Температура образца поддерживалась равной 5 К.

При каждой частоте повторения импульсов возбуждающего излучения записывались серия, состоящая из трех спектрально-временных изображений интенсивности фотолюминесценции КЯ структуры: первое при возбуждении последовательностью импульсов лазерного излучения, второе — при надбарьерном возбуждении импульсами ВГ, и третье — при двухцветном возбуждении структуры последовательностью импульсов лазерного излучения и второй гармоники (рис. 2). В последнем случае наблюдается ФЛ после каждого импульса возбуждения. Причем интенсивность ФЛ после лазерного импульса за 0,9 нс (к моменту прихода импульса ВГ) уменьшается в несколько раз. Для получения спектров ФЛ значения интенсивности интегрировались по временному интервалу в 800 пс от момента возбуждения структуры соответствующим импульсом излучения.

При внутриямном возбуждении наблюдалась только экситонная ФЛ, при надбарьерном возбуждении второй гармоникой наблюдались как трионная, так и экситонная ФЛ. При двухцветном возбуждении наблюдались экситонная и трионная ФЛ как после импульса надбарьерного возбуждения, так и после импульса внутриямного возбуждения во всем диапазоне частот повторения импульсов.

ФЛ экситонов в широкой яме после возбуждения лазерным импульсом (рис. 3 *«a»*) сначала возрастает в течение ≈ 200 пс, затем экспоненциально затухает с характерным временем около 1,2 нс. При возбуждении импульсом ВГ экситонная ФЛ нарастает значительно быстрее. Скорость экспоненциального затухания также увеличивается: характерное время составляет 260 пс. Трионная ФЛ достигает максимального значения примерно на 130 пс позже экситонной ФЛ и экспоненциально затухает с постоянной времени ≈ 350 пс.

При возбуждении излучением обеих гармоник в кинетиках экситонной и трионной ФЛ наблюдаются два максимума (рис. 3 *«b»*): первый (около 300 пс от начала диапазона измерения) — после возбуждения

Рис. 2. Спектрально-временные изображения интенсивности экситонной и трионной ФЛ широкой ямы при частоте следования возбуждающих импульсов 76,4 МГц. *Слева направо:* возбуждение лазерным импульсом, возбуждение импульсом ВГ, возбуждение обоими импульсами.

лазерным импульсом, второй (спустя ≈ 1 нс от начала измерения) — после возбуждения импульсом ВГ (следующим через 0,9 пс после лазерного импульса). После импульса излучения лазера экситонная ФЛ нарастает быстрее, чем на рис. 3 *«а»*, и экспоненциально затухает с временем жизни 450 пс, трионная ФЛ затухает с характерным временем ≈ 600 пс. Интенсивность экситонной ФЛ в максимуме примерно в 3 раза превосходит таковую на рис. 3 *«а»*, а время затухания примерно в то же число раз меньше. В данном случае сокращение времени затухания экситонной ФЛ нельзя объяснить рекомбинацией через трионное состояние: увеличение амплитуды ФЛ говорит об увеличении скорости рекомбинации самих экситонов, возможно, за счет ускорения релаксации в излучательное состояние с $k_{||} \approx 0$. После возбуждения импульсом ВГ экситонная и трионная ФЛ снова нарастают, достигая вторых максимумов и затухают с временами 300 и 450 пс соответственно. Кинетика ФЛ экситонов и трионов в узкой яме обладает теми же качественными особенностями.

На рис. 4 приведены зависимости времен жизни свободных экситонов и трионов в широкой КЯ, а также отношения максимального значения трионной ФЛ к максимальному значению ФЛ свободных экситонов на соответствующих кинетических зависимостях при возбуждении импульсами излучения ВГ от частоты их повторения. С ростом

Рис. 3. Кинетики ФЛ экситонов (X) и трионов (T) в широкой КЯ. *(а)* возбуждение импульсами излучения одной из гармоник: индекс F — лазерным излучением, индекс SH — второй гармоникой; *(б)* возбуждение обеими последовательностями импульсов. Период повторения импульсов возбуждения $T \approx 210$ нс. Прямые линии — подгонка экспоненциальным затуханием. Для удобства кинетики ФЛ экситонов сдвинуты вверх на обоих рисунках.

частоты повторения относительная интенсивность ФЛ трионов растет, тогда как время жизни трионов и экситонов падает.

Период следования импульсов при частоте $f = 4.8$ МГц составляет около 210 нс, что в десятки раз превышает времена жизни таких возбужденных состояний в КЯ, как экситоны, трионы и электрон-дырочная плазма. По всей вероятности, между последовательными импульсами излучения ВГ в КЯ сохраняются избыточные долгоживущие неравновесные носители заряда одного знака, и их наличие приводит к появлению трионной ФЛ и уменьшению излучательного времени жизни экситонов, созданных внутриямным возбуждением при двухцветной накачке.

Будем предполагать, что при температуре 5 К наблюдаемое по ФЛ время жизни экситонов и трионов в КЯ определяется излучательными процессами [22]. А наличие свободных носителей заряда одного знака в КЯ не только приводит к образованию в КЯ трионов с малым излучательным временем жизни [23], но и уменьшает излучатель-

Рис. 4. Зависимости времен жизни (шкала слева) свободных экситонов (пустые квадраты) и трионов (черные квадраты) в широкой яме, а также отношения максимальных значений ФЛ трионов и экситонов в соответствующих кинетиках (шкала справа, треугольники) от частоты повторения возбуждающих импульсов ВГ.

ное время жизни ансамбля экситонов [24]. Указанное предположение подтверждается тем, что соответственно уменьшению времени жизни экситонов при появлении избытка одноименных носителей заряда возрастает интенсивность в максимуме их ФЛ. Таким образом, времена жизни экситонов и трионов в КЯ определяются наличием в ней избыточного заряда, величина которого зависит как от частоты повторения импульсов ВГ, так и от энергии в отдельном импульсе. При возбуждении структуры импульсами ВГ происходит накопление избыточного заряда в КЯ: чем меньше частота следования импульсов, тем меньше заряд в КЯ – тем меньше доля трионной люминесценции. Поскольку избыточные носители заряда накапливаются в КЯ в течение продолжительного времени, они успевают прийти в тепловое равновесие с кристаллической решеткой и, в результате, ускоряют релаксацию более горячих экситонов, созданных текущим импульсом накачки, в излучательные состояния вблизи дна экситонной зоны.

В **разделе 3.3** рассматриваются спектры интегральной (усредненной по периоду повторения возбуждающих импульсов) фотолюминесценции исследуемой структуры. Для возбуждения ФЛ структуры использовались импульсы второй гармоники излучения лазера. Частоту повторения импульсов излучения лазера уменьшали в заданное число раз ($16 \div 2048$).

На рис. 5 показаны спектры ФЛ КЯ структуры, полученные при различных частотах повторения импульсов ВГ и нормированные на эту частоту. Для сравнения приведен спектр, полученный при внутриямном возбуждении структуры импульсами лазерного излучения (нижний спектр).

Интенсивность излучения свободных экситонов, приведенная к одиночному импульсу возбуждения, практически не зависит от частоты

Рис. 5. Спектры усредненной по времени ФЛ, нормированные на частоту повторения f импульсов ВГ, при различных значениях этой частоты. Для удобства спектры смещены по вертикали. Нижний спектр ФЛ (линия из точек) записан при возбуждении структуры импульсами лазерного излучения. Спектр при $f = 76{,}4$ МГц записан при меньшей энергии в импульсе возбуждения и для корректного сравнения увеличен в 7 раз.

повторения возбуждающих импульсов, тогда как интенсивность трионной люминесценции уменьшается при уменьшении частоты повторения импульсов вплоть до полного исчезновения при $f \sim 100$ кГц. Для дальнейшего рассмотрения этого явления в диссертации рассматриваются зависимости интенсивности экситонной и трионной ФЛ, нормированной на частоту повторения импульсов ВГ, от этой частоты. Начиная со ~ 100 кГц интенсивность трионной ФЛ на один возбуждающий импульс растет с увеличением частоты следования импульсов накачки. Т.е. при данном уровне возбуждения верхняя оценка времени существования избыточного неравновесного заряда, возникающего в мелких КЯ при накачке импульсами ВГ и приводящего к возникновению трионов, составляет примерно 14 мкс. При этом зависимость I^{PL}/f от частоты повторения f для ФЛ трионов близка к степенной с показателем 0,35: интенсивность трионной ФЛ возрастает с увеличением частоты следования импульсов надбарьерной накачки медленнее, чем следовало бы ожидать в простейшей модели накопления избыточного заряда.

Глава 4. Температурное тушение экситонной люминесценции наноструктуры с мелкими квантовыми ямами

В данной главе рассказано об исследовании ФЛ и кинетики ФЛ экситонов с тяжелыми дырками в структуре с мелкими КЯ в диапазоне температур $5 \div 70$ К. Вначале кратко представлены предварительные результаты, полученные методом “up-conversion” при высокой средней мощности возбуждения ~ 100 мВт. Далее основное внимание уделено результатам, полученным с помощью стрик-камеры при средней мощности внутриямной накачки в диапазоне от 0,02 до 85 мВт при частоте повторения возбуждающих импульсов 76,4 МГц.

Спектры ФЛ при средней мощности возбуждения $\bar{P} = 0{,}6$ мВт в полулогарифмическом масштабе показаны на рис. 6. В спектрах видны линии излучения экситонов с тяжелой дыркой X_{hh} КЯ шириной 4 нм, экситонов с тяжелой X_{hh} и легкой X_{lh} дырками КЯ шириной 3 нм. На спектр ФЛ структуры накладывается линия рассеянного лазерного излучения, расположенная выше по энергии.

При $T = 5$ К ширина экситонных линий на полувысоте составляет около 1 мэВ в обеих КЯ. С повышением температуры линии излучения сдвигаются в сторону меньших энергий из-за уменьшения ширины запрещенной зоны. Энергия возбуждающих световых квантов также уменьшалась на ту же величину для того, чтобы обеспечить постоянство условий внутриямного возбуждения. При увеличении температуры интенсивность люминесценции обеих квантовых ям уменьшается —

Рис. 6. Усредненные по времени спектры ФЛ при различных температурах и плотности возбуждения 0,6 мВт. Для удобства спектры сдвинуты по вертикали относительно друг друга. W — широкая, N — узкая КЯ.

Рис. 7. Зависимости интенсивностей ФЛ узкой и широкой КЯ от обратной температуры для средней мощности возбуждения 85 мВт (черные символы) и 0,6 мВт (пустые символы).

наблюдается температурное тушение ФЛ. Причем интенсивность ФЛ узкой (шириной 3 нм) КЯ уменьшается значительно быстрее интенсивности излучения широкой (4 нм) КЯ.

Также в этой главе рассматриваются зависимости интенсивности ФЛ КЯ от мощности возбуждения, которые дают информацию об основном механизме рекомбинации неравновесных электронов и дырок. При температурах 5 и 35 К показатель степенной зависимости $I_{\mathrm{X}}^{\mathrm{PL}}(\bar{P})$ для широкой ямы равен 1,2 при средних мощностях импульсной накачки. При $T = 65$ К показатель степенной зависимости равен 1,3. Из рассмотренных зависимостей можно сделать следующий вывод: затухание интенсивности ФЛ не определяется безызлучательной рекомбинацией носителей заряда на ловушках как при низких, так и при высоких температурах. По-видимому, при низких температурах основным механизмом рекомбинации является излучательная рекомбинация электронов и дырок в составе экситона, а при высоких — рекомбинация свободных электронно-дырочных пар.

Далее рассматривается температурная зависимость интенсивности ФЛ (см. рис. 7). При максимальной мощности возбуждения $\bar{P} = 85$ мВт интенсивность ФЛ практически не изменяется до 20 К, затем начинает уменьшаться с повышением температуры и при 70 К уменьшается на два порядка по отношению к низкотемпературным значениям (при 5 К). При мощности возбуждения $\bar{P} = 0{,}6$ мВт интенсивность ФЛ широкой ямы незначительно увеличивается с ростом температуры, достигает максимума при $T = 20$ К и уменьшается больше чем на два порядка при повышении температуры до 70 К. Интенсивность ФЛ узкой ямы сразу начинает уменьшаться с ростом температуры и к 70 К

Рис. 8. *Слева* — спектрально-временные изображения интенсивностей фотолюминесценции экситонов в широкой и узкой КЯ при $T = 40$ К и $\bar{P} = 42$ мВт. *Справа* — кинетические зависимости интенсивностей линий излучения экситонов широкой (W) и узкой (N) КЯ ($t = 0$ соответствует моменту возбуждения). Линии — экспоненциальная аппроксимация кинетик затухания ФЛ; времена жизни экситонов τ_{PL}: в широкой яме — 580 пс, в узкой — 280 и 580 пс.

Рис. 9. Зависимости времени жизни экситонов в КЯ τ_{PL} от обратной температуры, полученные при малом и максимальном уровнях возбуждения (0,6 и 85 мВт). Прямые линии отвечают закону Аррениуса с энергиями активации Δ: 26,1 и 19,1 мэВ.

падает больше чем на три порядка. Уменьшение интенсивности ФЛ с ростом температуры можно объяснить эмиссией носителей заряда из КЯ в барьерный слой и их дальнейшей быстрой рекомбинацией.

В **разделе 4.2** приводятся результаты кинетических исследований ФЛ при различных уровнях возбуждения в диапазоне температур $5 \div 70$ К. На рис. 8 приведен пример спектрально-временных изображений интенсивностей экситонной ФЛ широкой и узкой КЯ при $T = 40$ К и средней мощности возбуждения $\bar{P} = 42$ мВт. По вертикальной оси

сверху вниз отложено время в наносекундах, по горизонтальной оси — энергия квантов излучения. Интенсивность ФЛ изображается яркостью: более светлые участки соответствуют бóльшей интенсивности.

Рассмотрим кинетические зависимости интенсивностей экситонных линий ФЛ широкой и узкой КЯ (рис. 8 справа) полученные после обработки спектрально-временных изображений, представленного на рис. 8 слева. После импульса возбуждения интенсивность ФЛ экситонов широкой КЯ нарастает в течение $\approx$ 150 пс и далее затухает с течением времени t по закону $\exp(-t/\tau_{\mathrm{PL}})$ с постоянной времени $\tau_{\mathrm{PL}}^{\mathrm{W}} \approx 580$ пс. В кинетике экситонного излучения узкой ямы отчетливо наблюдаются два участка экспоненциального затухания ФЛ. На первом участке ФЛ затухает более быстро с характерным временем $\tau_{\mathrm{PL}}^{\mathrm{N}} \approx 280$ пс, причем когда интенсивность люминесценции узкой ямы начинает уменьшаться, интенсивность излучения широкой ямы продолжает нарастать. На втором участке (на больших временах) интенсивность излучения узкой ямы спадает с той же скоростью, что и широкой ямы. На малых временах кинетика затухания ФЛ экситонов в узкой яме, скорее всего, обусловлена тепловой эмиссией из нее носителей заряда, созданных в яме импульсом внутриямного возбуждения, а продолжающееся увеличение интенсивности ФЛ широкой ямы связано с захватом в неё носителей заряда, эмитированных из узкой КЯ. На втором временном интервале отношение интенсивностей $I^{\mathrm{N}}/I^{\mathrm{W}}$ в каждый момент времени приблизительно равно $\exp(-\Delta_X/kT)$, где $\Delta_X = 8$ мэВ — энергетический интервал между максимумами линий излучения экситонов узкой и широкой КЯ, k — постоянная Больцмана и $T = 40$ К в данном случае. Таким образом, при высоких температурах ($T \geq 40$ К) на больших временах после импульса возбуждения между экситонами в узкой и широкой КЯ устанавливается тепловое равновесие благодаря обмену неравновесными носителями заряда между ямами вследствие эмиссии и последующего захвата носителей заряда в КЯ.

Зависимости времени затухания ФЛ экситонов τ_{PL} в широкой и узкой ямах от обратной температуры при уровнях возбуждения 0,12 и 85 мВт показаны на рис. 9. За время жизни экситонов в широкой яме принималась постоянная времени затухания ФЛ, а в узкой яме — постоянная времени быстрого спада ФЛ на начальном участке (см. рис. 8).

При высоких температурах ($T > 40$ К) логарифм времени жизни в КЯ $\lg(\tau_{\mathrm{PL}})$ линейно зависит от обратной температуры ($1/kT$), т.е. вы-

полняется закон Аррениуса $1/\tau_{\mathrm{PL}} \sim \exp(-\Delta/kT)$ [17]. Заметим, что при $T > 40$ К интенсивность интегральной по времени экситонной ФЛ КЯ $I(T)$ при всех уровнях накачки более чем на порядок меньше своего значения при $T = 5$ К (см. рис. 7). Так что при высоких температурах $\tau_{\mathrm{PL}} \approx \tau_{\mathrm{nr}}$ — нерадиационному времени жизни экситонов в КЯ [17,18], и уменьшение их времени жизни связано с тепловой эмиссией носителей заряда из квантовых ям. Аппроксимация температурных зависимостей τ_{PL} активационным законом при низком уровне возбуждения дает $\Delta^{\mathrm{N}} = (17 \pm 2)$ мэВ для узкой и $\Delta^{\mathrm{W}} = (27 \pm 2)$ мэВ для широкой КЯ. Такая аппроксимация была проведена для всего диапазона использовавшихся мощностей возбуждения. Полученные энергии активации температурной эмиссии практически не изменяются в пределах трех порядков по мощности возбуждения. Энергии активации примерно равны суммарным энергиям локализации электронов и тяжелых дырок в КЯ, которые составляют 26,1 мэВ для широкой и 19,1 мэВ для узкой ямы.

Полученные значения энергий активации соответствуют биполярной модели [14, 19] и более чем в два раза превышают значения энергий активации в структурах GaAs/AlGaAs с мелкими КЯ, имеющими близкие энергии локализации носителей заряда [20]. Разница в результатах может быть связана с различными механизмами рекомбинации носителей заряда в барьерном слое.

В конце этой главы **в разделе 4.4** рассматривается кинетическая модель рекомбинации неравновесных носителей заряда с учетом парной рекомбинации в барьерном слое (на основе [14]). Данная модель позволяет объяснить полученные результаты парной рекомбинацией электронов и дырок в барьерном слое.

Заключение

В заключении сформулированы основные результаты исследований, выполненных в данной работе.

- Интенсивность трионной фотолюминесценции в квантовых ямах (КЯ) нелегированных структур при импульсном надбарьерном возбуждении возрастает при увеличении частоты повторения возбуждающих импульсов, т.е. с ростом концентрации в КЯ избыточных одноименно заряженных носителей, время существования которых значительно превышает времена жизни экситонов и трионов.
- Показано, что в экситон-трионной системе, созданной импульсами

надбарьерного возбуждения, времена жизни экситонов и трионов в КЯ уменьшаются при возрастании частоты следования импульсов возбуждения.

- При внутриямном импульсном фотовозбуждении дополнительная надбарьерная импульсная подсветка приводит к сильному возрастанию интенсивности экситонной люминесценции и резкому уменьшению времени ее затухания при неизменном числе экситонов, а также к возникновению излучения трионов.
- Показано, что энергия активации температурного тушения фотолюминесценции близка к сумме энергий локализации в квантовых ямах электрона и дырки и практически не зависит от мощности возбуждения.
- В структурах с туннельно-изолированными мелкими квантовыми ямами различной ширины при высоких температурах в диапазоне $40 \div 70$ K благодаря процессам эмиссии из КЯ и захвата неравновесных носителей заряда в ямы может устанавливаться тепловое равновесие между экситонами в разных ямах. При низких температурах обмен носителями заряда между квантовыми ямами отсутствует.

Список публикаций по теме диссертации

A1. Кочиев М. В., Нгуен М. Х., Цветков В. А. Кинетика экситонной фотолюминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами при низких температурах // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2010. № 3 (104). С. 58–62.

A2. Кочиев М. В., Сибельдин Н. Н., Скориков М. Л., Цветков В. А. Влияние уровня фотовозбуждения на температурное тушение и динамику люминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами // Известия РАН. Серия физическая. 2012. Т. 76, № 2. С. 247–249.

A3. Кочиев М. В., Цветков В. А., Сибельдин Н. Н. Накопление избытка одноименных носителей заряда и формирование трионов в мелких квантовых ямах GaAs/AlGaAs // Письма в ЖЭТФ (направлена в печать).

A4. Кочиев М. В., Нгуен М. Х., Цветков В. А. Влияние температуры на кинетику экситонной фотолюминесцнции GaAs/AlGaAs структур с мелкими квантовыми ямами // Тезисы докладов XI

Всероссийской молодёжной конференции по физике полупроводников и наноструктур / СПбГПУ. С-Пб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2009. С. 48–49.

A5. Кочиев М. В., Нгуен М. Х., Сибельдин Н. Н. и др. Температурное тушение и динамика фотолюминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами // Труды XIV международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника», т. 1 / ИФМ РАН. Н. Новгород: ННГУ им. Н.И. Лобачевского, 2010. С. 183–184. URL: http://nanosymp.ru/UserFiles/Symp/2010_v1.pdf.

A6. Кочиев М. В., Цветков В. А. Влияние уровня фотовозбуждения на кинетику экситонной люминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами // Тезисы докладов XII всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике / СПбГПУ. С-Пб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2010. С. 69.

A7. Кочиев М. В., Цветков В. А. Динамика экситонной фотолюминесценции GaAs/AlGaAs структур с мелкими квантовыми ямами при низких температурах // Сборник трудов XIII Школы молодых ученых «Актуальные проблемы физики» и IV Школы-семинара «Инновационные аспекты фундаментальных исследований» / ФИАН. 2010. С. 140–141.

A8. Кочиев М. В., Сибельдин Н. Н., Скориков М. Л., Цветков В. А. Влияние уровня фотовозбуждения на температурное тушение и динамику люминесценции структур GaAs/AlGaAs с мелкими квантовыми ямами // Труды XV международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника», т. 2 / ИФМ РАН. Н. Новгород: ННГУ им. Н.И. Лобачевского, 2011. С. 488–489. URL: http://nanosymp.ru/UserFiles/Symp/2011_v2.pdf.

A9. Кочиев М. В., Сибельдин Н. Н., Скориков М. Л., Цветков В. А. Кинетика экситонов и трионов в мелких квантовых ямах нелегированных GaAs/AlGaAs структур // Тезисы X Российской конференции по физике полупроводников / ИФМ РАН. Н. Новгород: ННГУ им. Н.И. Лобачевского, 2011. С. 59. URL: http://semicond2011.ru/UserFiles/thesises.pdf.

A10. Кочиев М. В., Цветков В. А., Скориков М. Л., Сибельдин Н. Н. Динамика экситонов и трионов в мелких квантовых ямах GaAs/AlGaAs: влияние избыточных одноименных носителей заряда // Труды XVI международного симпозиума «Нанофизика

и наноэлектроника» / ИФМ РАН. Н. Новгород: ННГУ им. Н.И. Лобачевского, 2012. С. 276–277.

Литература

1. Frenkel J. I. On the transformation of light into heat in solids // Phys. Rev. 1931. Vol. 37. P. 17–44 and 1276–1294.
2. Wannier G. H. // Phys. Rev. 1937. Vol. 52. P. 191.
3. Mott N. F. // Trans. Faraday Soc. 1938. Vol. 34. P. 500.
4. Гросс Е. Ф., Каррыев Н. А. // ДАН СССР. 1952. Т. 84. С. 261.
5. Гросс Е. Ф., Каррыев Н. А. Оптический спектр экситона // ДАН СССР. 1952. Т. 84. С. 471.
6. Lampert M. A. Mobile and immobile effective-mass-particle complexes in nonmetallic solids // Phys. Rev. Lett. 1958. Vol. 1, no. 12. P. 450–453.
7. Москаленко С. А. // Оптика и спектроскопия. 1958. Т. 5. С. 147.
8. Keldysh L. // Proc. 9th Intern. Conf. on Physics of Semiconductors / Ed. by E. S. Ryvkin. Nauka, Leningrad, 1968. P. 1303.
9. Kheng K., Cox R. T., d' Aubigné M. Y. et al. Observation of negatively charged excitons X^- in semiconductor quantum wells // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 71, no. 11. P. 1752–1755.
10. Shields A., Pepper M., Ritchie D. et al. Quenching of excitonic optical transitions by excess electrons in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1995. Vol. 51, no. 24. P. 18049–18052.
11. Lovisa S., Cox R. T., Baron T. et al. Optical creation of a metastable two-dimensional electron gas in a ZnSe/BeTe quantum structure // Appl. Phys. Lett. 1998. Vol. 73, no. 5. P. 656–658.
12. Волков О. В., Житомирский В. Е., Кукушкин И. В. и др. Экситоны и экситонные комплексы в GaAs/AlGaAs квантовых ямах с квазидвумерным электронным и дырочным каналом малой плотности // Письма в ЖЭТФ. 1998. Т. 67. С. 707.
13. Naumov A., Mi D., Sturge M. D. et al. Low-level photomodulation of exciton absorption in CdTe single quantum wells // Journal of Appl. Phys. 1995. Vol. 78, no. 2. P. 1196–1202.
14. Weber S., Limmer W., Thonke K. et al. Thermal carrier emission from a semiconductor quantum well // Phys. Rev. B. 1995. Vol. 52, no. 20. P. 14739–14747.
15. Резницкий А., Клочихин А., Пермогоров С. Температурная зависимость интенсивности фотолюминесценции самоорганизованных

квантовых точек CdTe в матрице ZnTe при разных условиях возбуждения // ФТТ. 2012. Т. 54. С. 115–124.
16. Shah J. Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures. Springer, 1998.
17. Gurioli M., Martinez-Pastor J., Colocci M. et al. Thermal escape of carriers out of GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum-well structures // Phys. Rev. B. 1992. Vol. 46, no. 11. P. 6922–6927.
18. Gurioli M., Vinattieri A., Colocci M. et al. Temperature dependence of the radiative and nonradiative recombination time in GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum-well structures // Phys. Rev. B. 1991. Vol. 44, no. 7. P. 3115–3124.
19. Bacher G., Hartmann C., Schweizer H. et al. Exciton dynamics in $In_xGa_{1-x}As$/GaAs quantum-well heterostructures: competition between capture and thermal emission // Phys. Rev. B. 1993. Vol. 47, no. 15. P. 9545–9555.
20. Tignon J., Heller O., Roussignol P. et al. Excitonic recombination dynamics in shallow quantum wells // Phys. Rev. B. 1998. Vol. 58, no. 11. P. 7076–7085.
21. Sibeldin N. N., Skorikov M. L., Tsvetkov V. A. Formation of charged excitonic complexes in shallow quantum wells of undoped GaAs/AlGaAs structures under below-barrier and above-barrier photoexcitation // Nanotechnology. 2001. Vol. 12, no. 4. P. 591–596.
22. Feldmann J., Peter G., Göbel E. O. et al. Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells // Phys. Rev. Lett. 1987. Vol. 59, no. 20. P. 2337–2340.
23. Esser A., Runge E., Zimmermann R., Langbein W. Photoluminescence and radiative lifetime of trions in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 2000. Vol. 62, no. 12. P. 8232–8239.
24. Bajoni D., Perrin M., Senellart P. et al. Dynamics of microcavity polaritons in the presence of an electron gas // Phys. Rev. B. 2006. Vol. 73, no. 20. P. 205344.