

# Формирование метастабильных надбарьерных дырочных состояний в гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe при высокой плотности оптического возбуждения

А. А. Максимов<sup>1)</sup>, С. В. Зайцев, Е. В. Филатов, А. В. Ларионов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев<sup>+2)</sup>, А. Вагг<sup>\*3)</sup>

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

<sup>+</sup>Experimentelle Physik II, University of Dortmund, D-44227 Dortmund, Germany

\*Institute of Semiconductor Technology, Braunschweig Technical University, D-38106 Braunschweig, Germany

Поступила в редакцию 1 августа 2008 г.

Обнаружено существенное замедление кинетики люминесценции пространственно прямых оптических переходов в гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe при высоких уровнях накачки фемтосекундными лазерными импульсами. Эффект объясняется тем, что в условиях сильного изгиба зон при высоких плотностях пространственно разделенных фотовозбужденных носителей возникает потенциальный барьер, который формирует метастабильное надбарьерное состояние для дырок в слое ZnSe. Это приводит к увеличению времени релаксации дырок по энергии при их переходе в соседний слой BeTe. Экспериментальные результаты хорошо согласуются с проведенными численными расчетами.

PACS: 73.21.-b, 73.61.Ga, 78.67.-n

В полупроводниковых гетероструктурах 2-го типа минимумы энергии для электронов и дырок находятся в соседних слоях структуры, что существенно влияет на их оптические свойства, в частности, приводит к двум типам оптических переходов: пространственно прямым (D) и непрямым (ID) переходам (см. вставку на рис.1) [1–3]. В таких системах релаксация фотовозбужденных носителей по энергии сопровождается быстрым межслойным пространственным разделением электронов и дырок, что наблюдалось в сверхрешетках GaAs/AlAs [4] и ZnSe/BeTe [5].

В сверхрешетках ZnSe/BeTe наличие глубоких потенциальных ям для электронов в слоях ZnSe и для дырок в слоях BeTe приводит к слабому перекрытию их волновых функций на интерфейсах и, соответственно, к длинным временам пространственно непрямой рекомбинации. Это позволяет реализовать в условиях сильного фотовозбуждения систему с пространственно разделенными слоями электронов и дырок с высокой плотностью  $n > 10^{13} \text{ см}^{-2}$  [3]. Электрические поля, возникающие при пространственном разделении фотовозбужденных носителей высокой плотности, в свою очередь, приводят к существенному изгибу зоны проводимости и валент-

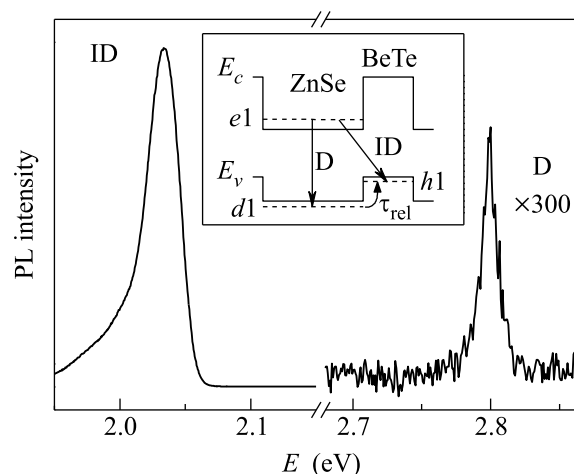


Рис.1. Спектр ФЛ в сверхрешетке ZnSe/BeTe (10 нм/5 нм) · 10 при возбуждении непрерывным He-Cd-лазером при  $T = 1.5 \text{ K}$ . На вставке показаны зонная схема гетероструктур 2-го типа в пределе малой плотности носителей, нижайшие по энергии уровни электронов ( $e1$ ) и дырок ( $h1$ ), и надбарьерный уровень дырок в слое ZnSe ( $d1$ ). Стрелками отмечены пространственно прямые (D) и непрямые (ID) оптические переходы

ной зоны. При этом происходит сильный сдвиг в сторону высоких энергий уровней размерного квантования электронов и дырок и, как следствие, изменение энергии межзонных оптических переходов, в результате чего наблюдается гигантский фиолетовый

<sup>1)</sup>e-mail: maksimov@issp.ac.ru

<sup>2)</sup>Также: Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе, 194021 Санкт-Петербург, Россия.

<sup>3)</sup>A. Waag.

вый сдвиг спектральных линий пространственно не-прямых оптических переходов, вплоть до 0.5 эВ в ZnSe/BeTe [3]. Естественно ожидать, что модификация зонной структуры должна также привести к изменениям во времени релаксации ( $\tau_{rel}$ ) дырок, фотовозбужденных в слое ZnSe, в слой BeTe (вставка на рис.1). Это, в свою очередь, отразится как на спектральном составе, так и на кинетике фотолюминесценции (ФЛ).

Целью данной работы является изучение кинетики ФЛ для пространственно прямых переходов, отражающей процесс пространственного разделения зарядов (ухода дырок из слоя ZnSe в слой BeTe) в гетероструктурах на основе ZnSe/BeTe при высоких плотностях фотовозбужденных носителей в условиях формирования сильного изгиба зон.

Сверхрешетки на основе ZnSe/BeTe являются широкозонными II–VI гетероструктурами 2-го типа с большой величиной локализирующего потенциала для электронов в слое ZnSe ( $\gtrsim 2.0$  эВ) и для дырок ( $\sim 0.8$  эВ), минимум энергии которых находится в слое BeTe [6]. Величина запрещенной зоны в слое ZnSe составляет  $E_g \sim 2.8$  эВ, в слое BeTe она существенно больше –  $E_g \sim 4.5$  эВ [7]. Сильное различие в величине  $E_g$  позволяет при фотовозбуждении генерировать электроны и дырки только в слое ZnSe.

При фотовозбуждении электронно-дырочных пар в слое ZnSe коротким лазерным импульсом в процессе их быстрой релаксации по энергии электроны заселяют нижайший уровень  $e1$  квантовой ямы в ZnSe, тогда как нерезонансно фотовозбужденные дырки релаксируют либо до нижайшего надбарьерного уровня  $d1$  в слое ZnSe, либо сразу переходят в слой BeTe, где релаксируют на основной уровень  $h1$  (см. вставку на рис.1). При этом время затухания ФЛ для прямого перехода будет определяться временем жизни  $\tau$  дырок на надбарьерном уровне  $d1$  в слое ZnSe. В общем случае значение  $\tau$  определяется излучательным временем электронно-дырочной рекомбинации  $\tau_R$  в слое ZnSe, временем их безызлучательной рекомбинации  $\tau_{NR}$  и временем ухода фотовозбужденных дырок  $\tau_{rel}$  из слоя ZnSe в слой BeTe [5].

Непрямые в пространстве оптические переходы, отвечающие излучательной рекомбинации фотовозбужденных электронов в слое ZnSe и дырок в слое BeTe, находятся в спектральной области  $\sim 2.0$  эВ [8] при низких уровнях фотовозбуждения. Излучательная рекомбинация фотовозбужденных электронов и дырок в слое ZnSe, отвечающая прямым в пространстве оптическим переходам, находится в области энергий  $\sim 2.8$  эВ, соответствующей энергетической щели в ZnSe.

Следует отметить, что при непрерывном лазерном возбуждении и низких уровнях накачки интегральная интенсивность полосы, отвечающей в спектрах ФЛ пространственно непрямым оптическим переходам, значительно превосходит интенсивность прямых переходов в структурах с толщиной слоя ZnSe  $L_{ZnSe} \lesssim 15$  нм (см. рис.1). Этот факт, а также зависимость величины  $\tau$  в сверхрешетках ZnSe/BeTe с различной толщиной слоя ZnSe [5] позволяют заключить, что для гетероструктур 2-го типа ZnSe/BeTe при  $L_{ZnSe} \lesssim 15$  нм выполняется соотношение  $\tau_{rel} \ll \tau_R, \tau_{NR}$ . Для примера укажем, что характерное время излучательной рекомбинации  $\tau_R$  в квантовых ямах в структурах 1-го типа на основе ZnSe составляет  $\simeq 50$  пс [9].

Исследованная структура была выращена методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaAs с ориентацией (001) [6] и представляла собой сверхрешетку  $(10/5) \cdot 10$  из чередующихся слоев ZnSe и BeTe (первой цифрой указана толщина слоя ZnSe, второй – слоя BeTe в нм, затем число периодов). Соотношение толщин слоев  $\sim 2:1$  выбрано для взаимной компенсации упругих напряжений, имеющих противоположные знаки в соседних слоях [6].

Исследования проводились в оптическом кристалле в сверхтекучем гелии (температура  $T \approx 1.5$  К). Времяразрешенные измерения проводились с использованием Ti:Sa фемтосекундного лазера (длительность импульса  $\sim 80$  фс, частота повторений импульсов 76 МГц) с удвоителем частоты –  $\hbar\omega_{exc} = 2.95$  эВ ( $\lambda = 420$  нм) в качестве источника фотовозбуждения, и монохроматора с низкой дисперсией (с дифракционной решеткой 300 шт/мм), оснащенного стриккамерой с временным разрешением  $\sim 1.5$  пс. В целом измерительная установка позволяла проводить прямые измерения времен затухания импульсов свечения ФЛ вплоть до 2 пс, а с помощью деконволюции импульсов свечения можно было оценивать времена затухания ФЛ  $\lesssim 1.5$  пс.

Лазерное излучение фокусировалось в пятно диаметром  $\approx 20 \div 100$  мкм на поверхности образца и поглощалось только в слоях ZnSe (так как величина запрещенной зоны в BeTe  $E_g^{BeTe} \simeq 4.5$  эВ). Максимальная плотность энергии в импульсе достигала  $P \sim 50$  мкДж/см<sup>2</sup>. Плотность лазерной накачки на поверхности образца варьировалась с помощью нейтральных фильтров, а также изменением размеров пятна возбуждения. Оценка двумерной (2D) плотности  $n$  носителей, инжектированных в слой ZnSe в каждом импульсе, проводилась с использованием значения коэффициента поглощения  $\alpha$  в области фотовозбуждения  $\hbar\omega_{exc} = 2.95$  эВ ( $\alpha \simeq 10^5$  см<sup>-1</sup>) [10].

На вставке рис.2 представлены данные по затуханию ФЛ в области прямого оптического перехода при

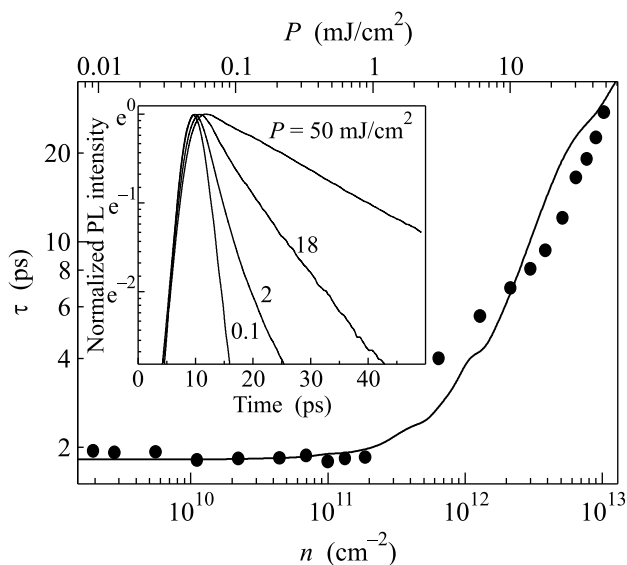


Рис.2. Зависимость времени затухания  $\tau$  интенсивности ФЛ прямого оптического перехода от плотности инжектированных носителей  $n$  (нижняя ось) или от плотности накачки  $P$  (верхняя ось) для ZnSe/BeTe сверхрешетки 10 нм/5 нм. На вставке приведены кривые затухания интенсивности ФЛ в области прямых переходов в полулогарифмическом масштабе при различных уровнях плотности энергии в импульсе

нескольких значениях средней плотности  $P$  оптической накачки фемтосекундным лазерным импульсом. На графике рис.2 точками представлены времена затухания ФЛ  $\tau$  в зависимости от 2D плотности носителей, отвечающие результатам одноэкспоненциальной подгонки импульсов свечения  $I_{PL}(t) = I_0 \exp(-t/\tau)$ . Значение 2D плотности носителей определялось по плотности накачки  $P$  (верхняя ось), используя коэффициент поглощения  $\alpha \simeq 10^5 \text{ см}^{-1}$ . Как видно из рис.2, при минимальных уровнях накачки  $P$  время затухания ФЛ составляет  $\tau \simeq 1.9$  пс. Начиная с  $n > 10^{12} \text{ см}^{-2}$ , происходит существенное замедление кинетики прямого перехода, что следует из роста величины  $\tau$ .

Значение  $\tau \simeq 1.9$  пс при малых накачках  $P$ , которое оказывается близким к временному разрешению установки, свидетельствует о быстром пространственном разделении зарядов ( $\tau_{rel} < 2$  пс) при низкой плотности инжектированных носителей  $n \leq 2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  в пределе плоских зон. При самых высоких плотностях носителей  $n \sim 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , когда уже имеет место сильный изгиб зон, проявляющийся, в частности, в значительном сдвиге полосы непрямого

перехода [3],  $\tau_{rel}$  удлиняется до  $\sim 28$  пс. Таким образом, значительный, в десятки раз, рост величины  $\tau_{rel}$  свидетельствует о существенном влиянии зонной структуры на скорость релаксации носителей в гетероструктурах 2-го типа.

Для более полного понимания влияния потенциала структуры в условиях сильного изгиба зон на кинетику пространственно прямого перехода в спектре ФЛ был проведен расчет зонных схем (зоны проводимости и валентной зоны) при различных значениях плотности носителей путем самосогласованного решения уравнений Шредингера и Пуассона.

На рис.3 приведены зонные схемы для сверхрешетки ZnSe/BeTe с толщинами слоев 10 нм/5 нм при

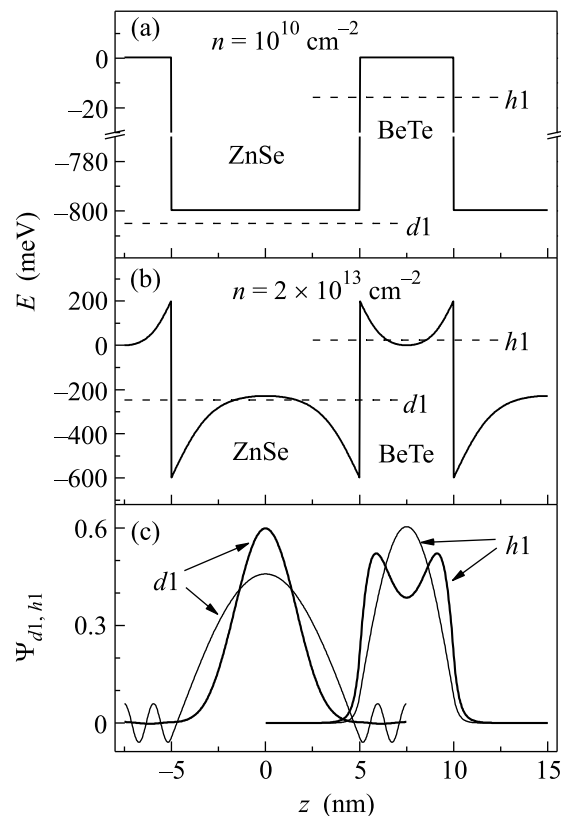


Рис.3. Расчетные профили валентной зоны, положение первого надбарьерного уровня дырки ( $d1$ ), локализованного в слое ZnSe, и основного уровня дырки ( $h1$ ), локализованного в слое BeTe при различной плотности носителей  $n$ : (a)  $n = 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и (b)  $n = 2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ . На нижней панели (c) приведены волновые функции дырки в надбарьерном состоянии  $d1$  и состоянии  $h1$ . Тонкие и толстые кривые отвечают плотности носителей  $n = 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и  $n = 2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , соответственно

низкой и высокой плотностях пространственно разделенных носителей  $n = 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и  $2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , соответственно, полученные в результате расчета. Вид-

но, что с ростом плотности носителей  $n$  и, соответственно, с увеличением изгиба зон уровень энергии дырок  $d1$  в слое ZnSe поднимается вверх (панели (а) и (b) рис.3), и для надбарьерных дырок формируется реальный потенциальный барьер (см. среднюю панель (b) на рис.3). В этих условиях для релаксации дырок из нижайшего надбарьерного состояния в слое ZnSe в основное состояние в слое BeTe требуется протуннелировать через заметный потенциальный барьер, величина которого, и, следовательно, величина  $\tau_{rel}$  зависят от плотности пространственно разделенных носителей  $n$ . При этом прозрачность барьера, определяемая его высотой и шириной, уменьшается с ростом плотности разделенных зарядов, что должно привести к замедлению темпа туннелирования дырок через барьер. Волновые функции для дырок в нижайшем надбарьерном ( $d1$ ) состоянии и в нижайшем состоянии ( $h1$ ) при низкой и высокой плотностях пространственно разделенных носителей представлены на нижней панели (c) рис.3. В качестве меры вероятности туннелирования из слоя ZnSe в слой BeTe дырки, находящейся в нижайшем надбарьерном состоянии, использовалась величина, пропорциональная интегралу  $|\Psi_{d1}|^2$  в слое BeTe [11]. Для сопоставления расчетов с результатами эксперимента дополнительно учитывалась различная величина плотности носителей  $n$  в зависимости от глубины залегания слоя ZnSe от поверхности образца при поглощении лазерного возбуждения, а также принималось во внимание временное разрешение измерительной установки. На рис.2 рассчитанная таким образом вероятность туннелирования дырки из слоя ZnSe и, соответственно,  $\propto 1/\tau_{rel}$  представлена сплошной кривой. Видно, что результаты расчета находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными.

Отметим характерные особенности в кинетических кривых интенсивности прямого перехода в спектрах ФЛ в зависимости от величины  $P$  (вставка на рис.2). Видно, что: (i) импульс свечения ФЛ хорошо описывается одноэкспоненциальной зависимостью с временем затухания  $\tau$ ; (ii) уменьшение интенсивности импульса свечения происходит практически сразу (с нашей экспериментальной точностью, учитывая временное разрешение  $\sim 2$  пс) после окончания лазерного импульса; величина  $\tau$  определяется плотностью лазерного возбуждения. С другой стороны, в начальный момент времени электронно-дырочные пары генерируются только в слое ZnSe, а характерное время релаксации дырки в двумерных структурах с участием LO-фонона либо с испусканием высокочастотных акустических фононов, как правило, близко по величине к

$\approx 1$  пс [12]. Поэтому в течение первых пикосекунд после лазерного импульса, когда еще не произошло пространственного разделения зарядов, релаксация надбарьерных дырок из слоя ZnSe в слой BeTe должна стартовать в условиях плоских зон. Соответственно, кривые затухания ФЛ при различных уровнях возбуждения  $P$  на начальном участке должны были бы иметь одинаковый наклон (в логарифмическом масштабе интенсивности), который отвечает времени затухания  $\tau_{rel}(n=0)$ . В эксперименте, как следует из рис.2, наклон (соответственно, величина  $\tau$ ) систематически растет с ростом  $P$ .

Таким образом, можно утверждать, что пространственное разделение фотовозбужденных дырок и электронов в наших гетероструктурах происходит в основном за времена  $\lesssim 2$  пс. Заметим также, что специально проведенные измерения спектрального сдвига и интенсивности полосы ФЛ, отвечающей пространственно непрямым переходам, указывают, что остаточная (через  $\sim 13.3$  нс – время между фемтосекундными лазерными импульсами) плотность пространственно разделенных электронов и дырок пренебрежимо мала.

Что касается каналов, по которым происходит быстрая релаксация фотовозбужденных дырок по энергии: (i) рассеяние дырок из слоя ZnSe в слой BeTe, не доходя до нижнего надбарьерного уровня  $d1$ , либо (ii) релаксация заметной части дырок в слое ZnSe до надбарьерного уровня  $d1$  с последующей их миграцией в слой BeTe – этот вопрос остается открытым и требует дальнейших исследований. По-видимому, подобные исследования предпочтительнее проводить на сверхрешетках с более толстым слоем ZnSe, в которых величина  $\tau_{rel} \approx 20$  пс ( $n=0$ ) [5].

Таким образом, проведенные исследования кинетики ФЛ в широкозонных гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe продемонстрировали существенное замедление темпа релаксации фотовозбужденных надбарьерных дырок по энергии в результате их миграции из слоя ZnSe в слой BeTe при высокой плотности фотовозбуждения. Расчеты зонной схемы структуры показали, что при высокой плотности разделенных электронов и дырок возникающий изгиб зон приводит к формированию реального потенциального барьера для надбарьерных дырок в слое ZnSe.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проекты # 07-02-00980 и # 08-02-01302.

1. F. C. Zhang, H. Luo, N. Dai et al., Phys. Rev. B **47**, 3806 (1993).

2. N. Dai, L. R. Ram-Mohan, H. Luo et al., Phys. Rev. B **50**, 18153 (1994).
3. С. В. Зайцев, В. Д. Кулаковский, А. А. Максимов и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 351 (1997).
4. J. Feldmann, J. Nunnenkamp, G. Peter et al., Phys. Rev. B **42**, 5809 (1990).
5. А. А. Максимов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев и др., Письма в ЖЭТФ **83**, 173 (2006).
6. A. Waag, F. Fisher, H.-J. Lugauer et al., J. Appl. Phys. **80**, 792 (1996).
7. M. Nagelstraßer, H. Dröge, H.-P. Steinrück et al., Phys. Rev. B **58**, 10394 (1998).
8. A. V. Platonov, D. R. Yakovlev, U. Zehnder et al., Acta Physica Polonica A **92**, 1063 (1997).
9. D. R. Yakovlev, J. Puls, G. V. Mikhailov et al., Phys. Stat. Sol. (a) **178**, 501 (2000).
10. В. Д. Гавриленко, А. М. Грехов, Д. В. Корбутяк, В. Г. Литовченко, *Оптические свойства полупроводников*, Наукова Думка, Киев, 1987, с. 259.
11. С. В. Зайцев, А. А. Максимов, И. И. Тартаковский и др., ФТП **42**, 555 (2008).
12. F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona et al., Phys. Rev. B **53**, R7642 (1996).