

Ближнепольный механизм возбуждения фотолюминесценции в гетероструктуре с квантовыми ямами

В. Я. Алешкин, Л. В. Гавриленко¹⁾, Д. М. Гапонова, З. Ф. Красильник, Д. И. Крыжков, Д. И. Курицын, С. М. Сергеев, В. Г. Лысенко⁺

Институт физики микроструктур РАН, 603950 Н.Новгород, Россия

⁺ Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 31 октября 2011 г.

В работе исследовался процесс переноса энергии между квантовыми ямами, разделенными туннельно-непрозрачными потенциальными барьерами. Экспериментально наблюдалось возрастание интенсивности сигнала фотолюминесценции из квантовой ямы на 15% при резонансном возбуждении экситонного перехода в соседней квантовой яме. Расстояние между квантовыми ямами составляло 30 нм. Предложен механизм излучательного переноса энергии в ближней зоне излучающего экситона. В представленной теоретической модели эффективность переноса энергии спадает с ростом расстояния между квантовыми ямами степенным образом. Получено качественное согласие между теоретическими и экспериментальными результатами.

Введение. Явление переноса энергии между экситонными состояниями в квантовых ямах (КЯ) и квантовых точках (КТ), разделенных широкими туннельно-непрозрачными барьерами, описано в ряде экспериментальных работ, например [1–4]. К настоящему времени процессы переноса энергии вследствие туннелирования через потенциальный барьер как в резонансном, так и в нерезонансном случае, а также вследствие термической активации и надбарьерного возбуждения достаточно подробно изучены [5, 6]. Несколько иначе обстоит дело с процессами переноса через туннельно-непрозрачные барьеры. Механизмы, предлагаемые для описания переноса энергии в случае широкого туннельно-непрозрачного барьера, в работах различных авторов отличаются. Чаще всего они основываются на модели Фёрстера–Декстера [7–10]. Эта модель подразумевает *безызлучательное электростатическое* взаимодействие между диполями. Однако в полупроводниках в условиях оптического возбуждения не возникает статических диполей.

В настоящей работе экспериментально наблюдалось возрастание интенсивности сигнала фотолюминесценции из квантовой ямы при резонансном возбуждении экситонного перехода в соседней квантовой яме, отделенной от первой барьером $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ шириной 30 нм. Для объяснения наблюдаемого эффекта предложена модель *излучательного ближнепольного* переноса энергии между туннельно-несвязанными КЯ. Этот механизм предполагает передачу энергии

за счет поглощения света квантовой ямой, находящейся в ближней зоне излучающего экситона в другой КЯ. Эффективность переноса энергии в нашей модели уменьшается с ростом расстояния степенным образом.

Эксперимент. Исследовались спектры возбуждения фотолюминесценции (ФЛ) гетероструктуры $\text{GaAs}/\text{Al}(\text{Ga})\text{As}$ с пятью асимметричными двойными квантовыми ямами $\text{GaAs}/\text{AlAs}/\text{GaAs}$ (12.4/12.1, 10.2/9.0, 8.8/8.5, 7.6/7.3 и 6.5/6.2 нм). Две ямы разной толщины внутри каждой двойной КЯ были разделены очень узкими туннельно-прозрачными барьерами AlAs . Поэтому пару КЯ можно рассматривать как единое целое в смысле распределения электронной плотности и туннелирования носителей заряда. Различные двойные КЯ были разделены туннельно-непрозрачными барьерами $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ шириной 30 нм. Структура была выращена на подложке $\text{GaAs}(001)$ *n*-типа методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Исследования спектров возбуждения ФЛ проводились в диапазоне 730–830 нм. Спектральное разрешение составляло 0.5 нм. Температура измерений 8 К.

На рис. 1 представлены спектры возбуждения ФЛ, измеренные на длинах волн 802, 793 и 786 нм, соответствующих положению максимумов ФЛ трех наиболее интенсивно излучающих КЯ (QW1, QW2 и QW3 соответственно). Серым профилем изображен спектр ФЛ для этих же КЯ (наклонные стрелки указывают, к какому из пиков относится спектр возбуждения ФЛ). Отметим, что наблюдаемая ФЛ соответствует рекомбинации экситонов с тяжелыми дырка-

¹⁾ e-mail: aritany@ipmras.ru

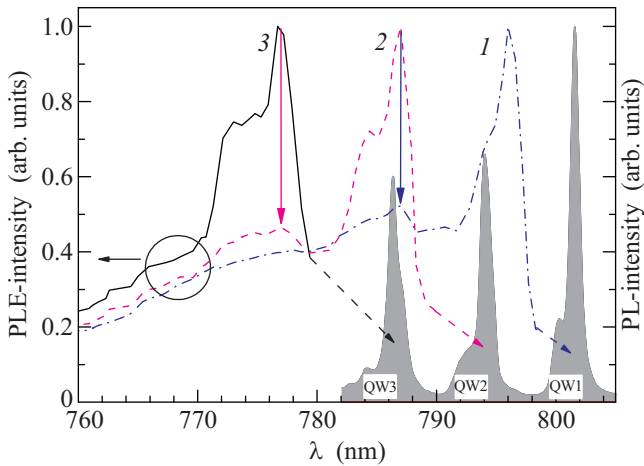


Рис.1. Спектры возбуждения ФЛ гетероструктуры GaAs/Al(Ga)As, измеренные на длинах волн наблюдения 786 (3), 793 (2) и 802 (1) нм, а также спектры ФЛ (серый профиль) трех КЯ. Наклонные стрелки показывают, какому максимуму в спектре ФЛ относится спектр возбуждения ФЛ. Вертикальные стрелки указывают на соответствие особенностей в спектрах возбуждения ФЛ в соседних двойных КЯ

ми. Зависимости интенсивности ФЛ от длины волны возбуждения для трех КЯ качественно схожи между собой и состоят из ряда пиков (см. рис. 1).

Рассмотрим более подробно спектр возбуждения ФЛ QW1 (пик ФЛ на длине волны $\lambda = 802$ нм, кривая 1). Первый и наиболее интенсивный двойной пик в районе 796 нм соответствует пику интенсивного поглощения экситоном с легкой дыркой [11] в QW1. Форма линии (двойной пик) определяется асимметрией двойных КЯ. Следующий двойной пик в спектре в области 785 нм не соответствует никаким возможным переходам в QW1. При этом положение и форма пика такие же, как и у основного (наиболее интенсивного, рис. 1, кривая 2) пика в спектре возбуждения соседней ямы QW2, который (так же как и основной пик в спектре возбуждения ФЛ QW1) соответствует поглощению экситона с легкой дыркой в QW2. Совпадение пика в спектре возбуждения ФЛ QW1 с пиком, соответствующим поглощению в соседней яме QW2, свидетельствует о достаточно эффективном переносе энергии между КЯ. Величина этого пика, определяемая как отношение амплитуды пика к “подставке”, равна примерно 0.15. Большая ширина барьеров между КЯ не позволяет объяснить перенос туннелированием. Аналогичная картина наблюдается при анализе спектров возбуждения ФЛ других КЯ, например QW2 и QW3.

Модель. В описанном выше эксперименте и экспериментальных работах [1–4] перенос энергии между экситонными уровнями в туннельно-несвязанных

КЯ наблюдался тогда, когда энергия кванта излучения лазера совпадала с энергией экситонного перехода в одной из КЯ. При этом интенсивность ФЛ из соседней КЯ заметно возрастала. На наш взгляд, причина возрастания интенсивности ФЛ из второй КЯ состоит в том, что усилившееся вследствие резонансного возбуждения излучение экситонов из первой КЯ поглощается другой квантовой ямой более эффективно, нежели излучение лазера. В чем отличие излучения экситонов в КЯ от плоской волны лазерного излучения? Во-первых, излучающие экситоны представляют собой колеблющиеся диполи, а их излучение содержит ближнепольные слагаемые, вклад которых резко возрастает при приближении к диполю. Во-вторых, электрическое поле излучения диполя, лежащего в плоскости КЯ, имеет также и z -компоненту (z – направление роста гетероструктуры), которая может поглощаться при переходах из подзоны легких дырок во второй КЯ. В-третьих, экситон излучает во все стороны, поэтому часть его излучения распространяется под скользящими углами к соседней КЯ. Коэффициент поглощения этой части излучения существенно больше такового для нормально падающего излучения. Обсудим влияние этих особенностей на коэффициент поглощения излучения квантовой ямой.

Поглощение плоских волн квантовой ямой при нормальном падении. Можно показать, что вблизи края поглощения в прямозонном полупроводнике без учета экситонных эффектов безразмерный коэффициент поглощения (отношение интенсивности поглощенного излучения к интенсивности падающего) КЯ имеет вид

$$\alpha_{QW}^h \approx \frac{\pi e^2}{\hbar c} \frac{|\chi_h|^2}{n}, \quad (1)$$

$$\alpha_{QW}^l \approx \frac{\pi e^2}{3\hbar c} \frac{|\chi_l|^2}{n} \quad (2)$$

для перехода из подзоны тяжелых (1) и легких (2) дырок, где $\chi_{h,l}$ – интегралы перекрытия огибающих волновых функций тяжелых и легких дырок соответственно, n – показатель преломления среды.

Доля излучения лазера, поглощаемого одной КЯ (материал GaAs), составляет 0.7% для переходов из подзоны тяжелых дырок и 0.23% из подзоны легких (здесь и далее считаем $\chi_{l,h} \simeq 1$). При совпадении энергии кванта излучения лазера с экситонным переходом в КЯ доля поглощаемого излучения резко возрастает. Отношение безразмерного коэффициента поглощения в максимуме экситонной линии (для экситонов с тяжелыми или легкими дырками обозначим его $\alpha_{h,l}^X$) к межзонному коэффициенту поглоще-

ния при учете конечности ширины линии ФЛ γ описывается следующим выражением:

$$\frac{\alpha_{h,l}^X}{\alpha_{QW}^{h,l}} = \frac{2(m_e + m_{h,l})\hbar^2 |\varphi(0)|^2}{\gamma m_e m_{h,l}}. \quad (3)$$

Здесь $m_{e,h,l}$ – эффективные массы электрона, тяжелой и легкой дырки соответственно. Для оценки выберем волновую функцию экситона в виде $\varphi(r) = 1/(\pi r_B) \exp(-r/r_B)$, где r – расстояние между электроном и дыркой, а радиус локализации волновой функции экситона r_B положим равным 80 Å. При ширине пика ФЛ 1.5 мэВ экситонное поглощение в максимуме экситонной линии составляет 15% для экситона с тяжелой дыркой и 5% для экситона с легкой дыркой.

Поглощение излучения диполя квантовой ямы. Излучающий экситон с тяжелой дыркой можно представить в виде колеблющегося в плоскости КЯ диполя (плоскость $(\mathbf{x}\mathbf{y})$). Пусть диполь имеет только одну компоненту d_x . Если КЯ находятся на расстоянии в десятки нанометров друг от друга, что на порядок меньше длины волны ФЛ, то при описании поля излучения диполя важны ближнепольные члены, которые быстро спадают при увеличении расстояния от диполя. Напряженность электрического поля в испускаемой диполем волне [12] и интенсивность излучения диполя имеют вид

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \left[k'^2 \frac{[\mathbf{nd}]\mathbf{n}}{\varepsilon r} + \frac{\{3\mathbf{n}(\mathbf{nd}) - \mathbf{d}\}}{\varepsilon} \times \right. \\ &\times \left. \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik'}{r^2} \right) \right] \exp(ik'r - i\omega t), \quad (4) \\ I &= \frac{2}{3} \frac{d^2 \omega^4}{c^3} \varepsilon^{1/2} \mu^{3/2}, \quad \mathbf{n} = \frac{\mathbf{r}}{r}, \end{aligned}$$

где $k' = \omega/c'$ – волновой вектор в среде, ε и μ – диэлектрическая и магнитная проницаемости, \mathbf{n} – единичный вектор, направленный от излучающего диполя в точку наблюдения, \mathbf{d} – вектор дипольного момента.

Найдем часть излучения диполя, поглощаемую квантовой ямой, параллельной плоскости $\mathbf{x}\mathbf{y}$ и расположенной на расстоянии R от него (безразмерный коэффициент поглощения). Для этого рассчитаем, какая мощность поглощается при переходе из подзоны тяжелых и легких дырок. Выберем в плоскости КЯ площадку dS , такую, что изменением электрического поля на ней можно пренебречь. Поглощаемая на ней мощность при переходах из подзоны дырок в КЯ

в электронную подзону на частоте ω (без учета экситонных эффектов) имеет вид

$$dW = 2 \sum_{k_c k_v} \frac{2\pi}{\hbar} |H_{cv}^{\text{int}}|^2 \hbar \omega \delta_{k_c k_v} \delta(E_c - E_v - \hbar \omega) dS. \quad (5)$$

Если характерный масштаб изменения электрического поля существенно больше ширины квантовой ямы, то гамильтониан взаимодействия в дипольном приближении можно записать в виде

$$H_{cv}^{\text{int}} = -e(\mathbf{E}\mathbf{r})_{cv} = -i \frac{e \mathbf{E} \mathbf{p}_{cv}}{m_0 \omega}, \quad (6)$$

где p_{cv} – межзонный матричный элемент оператора импульса. Для переходов из подзоны тяжелых дырок [13]

$$|p_{cv}^x| = |p_{cv}^y| = \frac{m_0 P |\chi_h|}{\hbar \sqrt{2}}, \quad p_{cv}^z = 0. \quad (7)$$

Для переходов из подзоны легких дырок

$$|p_{cv}^x| = |p_{cv}^y| = \frac{m_0 P |\chi_l|}{\hbar \sqrt{6}}, \quad p_{cv}^z = \frac{2m_0 P |\chi_l|}{\hbar \sqrt{6}}, \quad (8)$$

где $P = \frac{\hbar}{m_0} \langle S | p_x | X \rangle$ – известный параметр модели Кейна [13].

Используя (6–8), находим выражение для поглощаемой мощности при переходах из подзон тяжелых и легких дырок:

$$W_h = \frac{m^* E_g e^2}{2m_n \hbar^2 \omega} \theta(\hbar \omega - E_{tr}) |\chi_h|^2 \int (|E_x|^2 + |E_y|^2) dS, \quad (9)$$

$$\begin{aligned} W_l &= \frac{m^* E_g e^2}{6m_n \hbar^2 \omega} \theta(\hbar \omega - E_{tr}) |\chi_l|^2 \times \\ &\times \int (|E_x|^2 + |E_y|^2 + 4|E_z|^2) dS, \quad (10) \end{aligned}$$

где m^* – приведенная эффективная масса, E_{tr} – расстояние между соответствующими электронным и дырочным уровнями, $\theta(x)$ – функция Хевисайда. Поглощаемую мощность можно разделить на две части: мощность, связанную с дальним полем, и мощность, связанную с ближним полем. Рассчитаем долю излучения, поглощаемую за счет ближнего поля. Для переходов из зоны тяжелых и легких дырок, соответственно, имеем

$$\alpha_h = \frac{W_h}{I} = \frac{9\pi}{32} \left(\frac{e^2}{\hbar c} \right) \frac{|\chi_h|^2}{\varepsilon^{5/2} \mu^{3/2} k^4 R^4} \theta(\hbar \omega - E_{tr}), \quad (11)$$

$$\alpha_l = \frac{W_l}{I} = \frac{\pi}{4} \left(\frac{e^2}{\hbar c} \right) \frac{\theta(\hbar \omega - E_{tr}) |\chi_l|^2}{\varepsilon^{5/2} \mu^{3/2} k^4 R^4} \left(\frac{15}{8} + \varepsilon \mu R^2 k^2 \right), \quad (12)$$

где $k = \omega/c$. Этот результат получен в дипольном приближении по теории возмущений. Поэтому он становится несправедливым, когда КЯ расположена слишком близко к излучающему диполю. Расстояние, на котором становится несправедлив полученный результат, можно оценить из следующих соображений. Расстояние R должно быть много больше боровского радиуса экситона, который в КЯ на основе GaAs не превышает 10 нм, а величина рассчитанного коэффициента поглощения должна быть мала по сравнению с единицей. Область выполнения последнего условия можно определить из рис. 2.

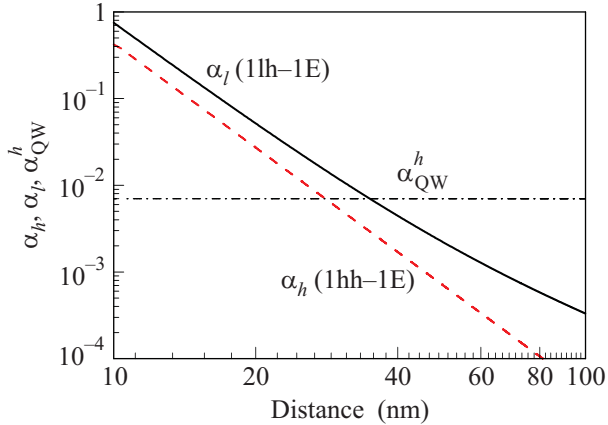


Рис.2. Зависимость коэффициентов поглощения КЯ ближнеполюной составляющей дипольного излучения для переходов из первой подзоны тяжелых ($hh1$) и легких ($lh1$) дырок в первую электронную подзону ($e1$). Для сравнения горизонтальная прямая показан коэффициент поглощения нормально падающей плоской волны при переходах носителей из подзоны тяжелых дырок

На рис. 2 в двойном логарифмическом масштабе приведены зависимости α_h и α_l от R на длине волны излучения 800 нм для КЯ GaAs, разделенных барьером AlGaAs. Из рис. 2 видно, что на расстояниях, при которых ближнеполюный механизм поглощения превалирует над поглощением нормально падающей плоской волны, коэффициент поглощения в КЯ зависит от расстояния как $(kR)^{-4}$.

Для определения коэффициента поглощения дальнего поля формулы (9) и (10) неприменимы, поскольку для скользких углов падения пренебрежение влиянием поглощения КЯ на амплитуду электромагнитной волны приводит к расходимости коэффициента поглощения. Для оценки этого коэффициента поглощения излучение диполя было разложено на плоские волны. Плоская волна, падающая под углом θ к нормали к плоскости КЯ, поглощается с вероятностью $\alpha_0 / \cos(\theta)$, где α_0 – коэффициент поглоще-

ния КЯ при нормальном падении излучения. Понятно, что коэффициент поглощения не должен превышать единицу. Обозначим через θ_0 угол, при котором $\cos(\theta_0) = \alpha_0$. Для оценки мы полагали, что коэффициент поглощения для углов, больших θ_0 , равен единице. Так как при переходах носителей из подзоны тяжелых дырок поглощается только излучение, поляризованное в плоскости КЯ, искомый коэффициент поглощения имеет вид

$$\alpha_h^F = \frac{3\alpha_{QW}^h}{8} \left(-\ln(\alpha_{QW}^h) - \frac{1}{20}(1 - \alpha_{QW}^h)^2 + \frac{1}{10}(1 - \alpha_{QW}^h) + \frac{6}{5} \right). \quad (13)$$

Для переходов из подзоны легких дырок дальнеполюный коэффициент поглощения имеет вид

$$\alpha_l^F = \frac{3\alpha_{QW}^l}{8} \left(-\ln(\alpha_{QW}^l) + \frac{19}{20}(1 - \alpha_{QW}^l)^2 + \left(\frac{1}{10} + \frac{4}{5}\alpha_{QW}^l \right) (1 - \alpha_{QW}^l) + \frac{6}{5} + \frac{8}{15}\alpha_{QW}^l \right). \quad (14)$$

Для переходов из подзоны тяжелых и легких дырок величина коэффициента поглощения дальнеполюного излучения слоем КЯ составляет, соответственно, 1.6 и 0.7%. Величины коэффициентов поглощения дальнеполюного излучения диполя более чем вдвое превышают коэффициенты поглощения нормально падающей плоской волны слоем КЯ. Это объясняется тем, что сферически расходящаяся волна излучения диполя приходит к плоскости КЯ под различными углами, в том числе и под скользкими. Излучение, пришедшее под скользкими углами, имеет большую (вплоть до единицы) вероятность быть поглощенным слоем КЯ.

Оценим в рамках предложенной модели возрастание сигнала ФЛ из одной КЯ, когда соседняя КЯ возбуждается лазером резонансно (резонанс с экситоном с легкими дырками). Амплитуда пика в долях от “подставки” должна составлять

$$\alpha_i^X \frac{[\alpha_h^F + \alpha_l^F + \alpha_h + \alpha_l - (\alpha_{QW}^h + \alpha_{QW}^l)]}{\alpha_{QW}^h + \alpha_{QW}^l}, \quad (15)$$

где α_i^X относится к более узкой, излучающей КЯ, а остальные коэффициенты поглощения – к более широкой, поглощающей КЯ. Для оценки были использованы следующие значения: $\alpha_l^X = 0.05$, $\alpha_h + \alpha_l = 0.017$, $\alpha_{QW}^h + \alpha_{QW}^l = 0.0093$, $\alpha_h^F + \alpha_l^F = 0.023$. Это дало для значения амплитуды пика в долях от “подставки” примерно 0.16. Данное значение качественно согласуется с экспериментальными данными (см. рис. 1).

Заключение. В работе предложен механизм излучательного ближнепольного переноса энергии между квантовыми ямами. Показано, что этот механизм приводит к зависимости коэффициента поглощения дипольного (экситонного) излучения квантовой ямой $\sim R^{-4}$ на малых расстояниях. В этом случае коэффициент поглощения, обусловленный переходами с участием легких дырок, примерно вдвое больше такового для переходов с участием тяжелых дырок, что связано с возможностью поглощения z -компоненты электрического поля при переходах из легкой дырочной подзоны.

Экспериментально исследованы спектры ФЛ гетероструктуры GaAs/Al(Ga)As с двойными КЯ, разделенными туннельно-непрозрачными барьерами шириной 30 нм. Анализ спектров возбуждения ФЛ показал, что в структуре происходит перенос энергии от узких КЯ к широким. Увеличение интенсивности ФЛ в QW1 и QW2 составило $\sim 15\%$, что согласуется с теоретической оценкой на основе предложенной модели.

Отметим, что ближнепольные эффекты способны приводить к возникновению сильных осциллирующих электрических полей, что может проявиться при наблюдении нелинейных эффектов.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ # 10-02-01195, ГК # 2.740.11.5159,

ГК # 16.518.11.7018. Авторы выражают признательность Клаусу Соренсену за предоставленные гетероструктуры.

1. A. Tomita, J. Shah, and R. S. Knox, *Phys. Rev. B* **53**, 10793 (1996).
2. D. S. Kim, H. S. Ko, Y. S. Lim et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 12101223 (1996).
3. S. A. Crooker, J. A. Hollingsworth, S. Tretiak, and V. I. Klimov, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 186802-1 (2002).
4. B. M. Ashkinadze, E. Tsidilkovski, E. Linder et al., *Phys. Rev. B* **54**, 8728 (1996).
5. M. Nido, M. G. W. Alexander, and W. W. Rühle, *Phys. Rev. B* **56**, 355 (1990).
6. H. X. Jiang, E. X. Ping, P. Zhou, and J. Y. Lin, *Phys. Rev. B* **41**, 12949 (1990).
7. Th. Förster, *Ann. Phys. (Leipzig)* **2**, 55 (1948).
8. D. L. Dexter, *J. Chem. Phys.* **21**, 836 (1953).
9. S. K. Lyo, *Phys. Rev. B* **62**, 13641 (2000).
10. S. K. Lyo, *Phys. Rev. B* **81**, 115303-1 (2010).
11. W. T. Masselink, P. J. Pearah, J. Klem et al., *Phys. Rev. B* **32**, 8027 (1985).
12. Дж. Джексон, *Классическая электродинамика* (под ред. Э. Л. Бурштейна), М.: Мир, 1965, 703 с.
13. Г. Л. Бир, Г. Е. Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972, 584 с.