

Миллисекундная кинетика фотолюминесценции в системе прямоzonных квантовых точек InAs в матрице AlAs

Т. С. Шамирзаев¹⁾, А. М. Гишинский, А. К. Бакаров, А. И. Торопов, Д. А. Тэннэ, К. С. Журавлев,
К. фон Борцисковский⁺²⁾, Д. Р. Т. Цан^{+ 2)}

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090, Новосибирск, Россия

⁺ Institut für Physik, TU Chemnitz, D-09107 Chemnitz, Germany

Поступила в редакцию 4 марта 2003 г.

Сообщается об обнаружении аномально длительной миллисекундной кинетики фотолюминесценции (ФЛ) при низких температурах (4.2–50 К) в прямоzonных квантовых точках InAs, сформированных в матрице AlAs. Повышение температуры приводит к уменьшению длительности затухания ФЛ до нескольких наносекунд при 300 К, причем интегральная интенсивность ФЛ остается неизменной вплоть до 210 К. Для объяснения экспериментальных результатов предложена модель, учитывающая синглет-триплетное расщепление экситонных уровней в квантовых точках малого размера.

PACS: 78.55.Cr, 78.67.Hc

Релаксация и рекомбинация экситонов в самоорганизующихся квантовых точках InAs, активно изучались в течение последних лет вследствие перспективности этой системы для создания высокоэффективных светоизлучающих приборов [1]. Основное внимание уделялось квантовым точкам, сформированным в матрице GaAs [2, 3], и было установлено, что время излучательной рекомбинации экситонов в этой системе составляет несколько наносекунд [2]. В то же время, динамика рекомбинации экситонов в системе квантовых точек InAs, сформированных в широкозонной матрице AlAs, оставалась слабо изученной. К настоящему времени вышла только одна работа [2], посвященная изучению нестационарной фотолюминесценции (ФЛ) квантовых точек InAs в матрице AlAs, авторы которой отмечают, что ФЛ в этой системе при температуре жидкого гелия демонстрирует микросекундное затухание.

В данной работе изучалась температурная зависимость нестационарной и стационарной ФЛ квантовых точек InAs, сформированных в матрице AlAs. Мы впервые показали, что при низких температурах (4.2–50 К) излучательная рекомбинация экситонов характеризуется аномально длительным миллисекундным временем затухания. С повышением температуры длительность затухания ФЛ уменьшается на пять порядков величины, достигая нескольких наносекунд при 300 К. Экспериментальные результаты объяснены в рамках модели, учитывающей синглет-

триплетное расщепление экситонных уровней в квантовых точках малого размера, расположенных в системе плотно-упакованных квантовых точек с локальной связью между точками.

Структуры с самоорганизованными квантовыми точками InAs в матрице AlAs были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках полуизолирующего GaAs ориентации (100) на установке Riber-32P. Образцы состояли из 5 слоев InAs квантовых точек, разделенных слоями AlAs толщиной 8 нм. Количество InAs, осаждаемого в процессе роста каждого слоя с квантовыми точками, было эквивалентно 2 монослоям вещества. Слои с квантовыми точками выращивались при температуре 480 °С. Детальное описание процесса роста приведено в работе [4]. Размеры квантовых точек оценивались по электронным изображениям поперечных срезов образцов и варьировались от 60 до 240 Å в плоскости, перпендикулярной направлению роста, и от 20 до 60 Å в направлении роста. В отличие от квантовых точек InAs в матрице GaAs, InAs точки в матрице AlAs формируются в систему с плотностью точек N_{QDs} более 10^{11} см⁻², причем понижение температуры роста приводит к повышению плотности и уменьшению размеров точек [4–7]. Поскольку температура роста наших образцов была ниже, чем в работе [6], авторы которой сообщают о получении образцов с $N_{QDs} = 7 \cdot 10^{11}$ см⁻², мы полагаем, что плотность квантовых точек в изучаемой нами системе, по крайней мере, не меньше.

Измерялась стационарная и нестационарная ФЛ. Возбуждение ФЛ осуществлялось излучением Ar⁺,

¹⁾ e-mail: timur@thermo.isp.nsc.ru

²⁾ С. von Borczyskowski, D. R. T. Zahn.

Ti:Sapphire и полупроводникового лазеров, при этом энергия возбуждающих фотонов была как больше, так и меньше ширины запрещенной зоны матрицы AlAs (E_g^{AlAs}). Стационарная ФЛ возбуждалась излучением Ar^+ -лазера ($h\nu = 2.54 \text{ эВ} > E_g^{\text{AlAs}}$) или полупроводниковым лазером с $h\nu = 1.82 \text{ эВ} < E_g^{\text{AlAs}}$. Возбуждение нестационарной ФЛ осуществлялось импульсами прямоугольной формы полупроводникового лазера ($h\nu = 1.82 \text{ эВ}$) или импульсами второй гармоники 200 фс излучения Ti:Sapphire-лазера ($h\nu = 3.10 \text{ эВ} > E_g^{\text{AlAs}}$), работающего в режиме синхронизации мод. Регистрация сигнала стационарной ФЛ и нестационарной ФЛ в микро- и миллисекундном диапазоне времен производилась охлаждаемым фотоэлектронным умножителем с фотокатодом типа S20, работающим в режиме счета фотонов. Измерение кинетики ФЛ в субмикросекундном диапазоне времен проводилось электронно-оптической камерой Hamamatsu C4334 (временное разрешение 15 пс), смонтированной на спектрометре CROMEX 250IS.

Как видно из рис.1, в спектре стационарной ФЛ структуры с квантовыми точками InAs/AlAs, изме-

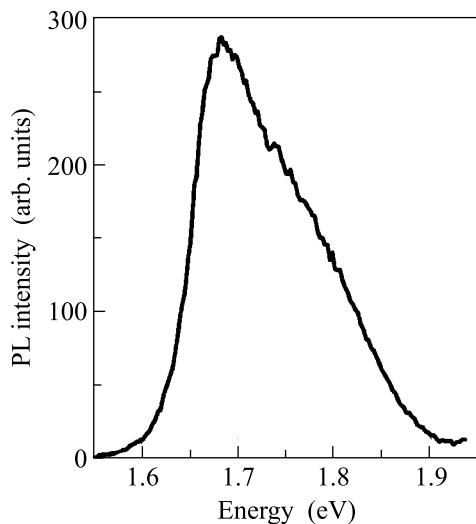


Рис.1. Спектр ФЛ квантовых точек InAs/AlAs, при 4.2 К

ренном при температуре жидкого гелия при энергии возбуждения 2.54 эВ и плотности возбуждения $2 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$, доминирует линия с энергетическим положением 1,684 эВ, обусловленная излучательной рекомбинацией в квантовых точках. Увеличение интенсивности возбуждения приводит к увеличению полуширины и коротковолновому смещению линии. Подобное поведение линии, обусловленной рекомбинацией в квантовых точках InAs/AlAs, наблюдалось ранее в работе [5] и обусловлено перераспределением носителей заряда между квантовыми точками разно-

го размера в системе плотноупакованных связанных квантовых точек.

Температурная зависимость положения максимума линии ФЛ, показанная на рис.2, демонстрирует немонотонный характер. В диапазоне температур 4.2–

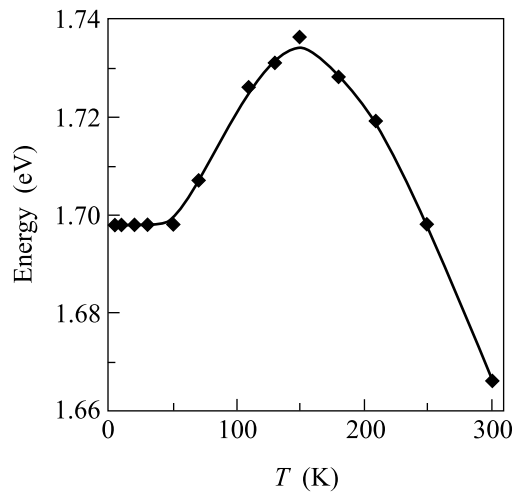


Рис.2. Температурная зависимость положения максимума линии, обусловленной рекомбинацией в квантовых точках InAs/AlAs. Сплошная линия приведена для облегчения восприятия

50 К положение максимума неизменно, при повышении температуры от 50 до 150 К линия сдвигается в коротковолновую сторону, а при дальнейшем росте температуры демонстрирует длинноволновое смещение.

Кинетика фотолюминесценции квантовых точек InAs/AlAs при различных температурах приведена на рис.3. Мы отмечаем следующие особенности кинетики ФЛ: (1) форма кинетической кривой и длительность затухания ФЛ не зависят от энергии фотонов возбуждающего света и одинаковы для возбуждения с энергией фотонов как больше, так и меньше ширины запрещенной зоны матрицы AlAs; (2) кинетика имеет неэкспоненциальный характер во всем диапазоне температур и описывается степенным законом $I(t, T) \sim (1/t)^{\gamma(T)}$; (3) длительность затухания ФЛ до интенсивности в $2.5 \cdot 10^{-3}$ от начального значения не зависит от температуры в диапазоне 4.2–50 К и равна при этом по крайней мере 2 мс, как это иллюстрируется на рис.4. При повышении температуры длительность затухания уменьшается на пять порядков величины и при 300 К становится равной 25 нс.

Как видно из рис.4, интегральная интенсивность ФЛ сохраняется постоянной в диапазоне температур 4.2–210 К, что свидетельствует о том, что резкое изменение времени затухания при повышении температуры не связано с включением дополнительных ка-

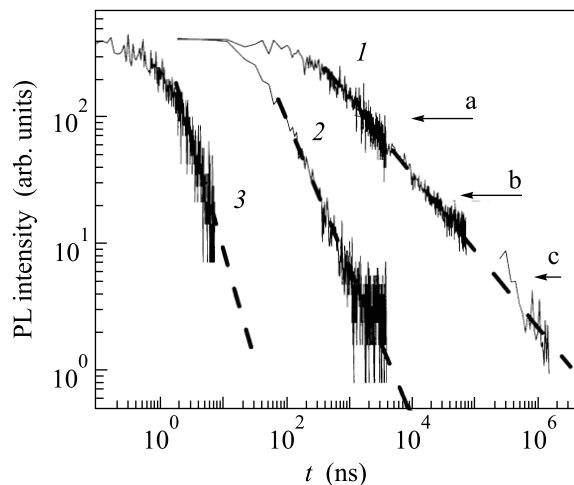


Рис.3. Кинетика ФЛ квантовых точек InAs/AlAs при различных температурах (8, 150, 300 К, кривые 1–3, соответственно). Кривые 2, 3 измерены при возбуждении ФЛ светом с энергией фотонов (3.10 эВ) большей, чем ширина запрещенной зоны матрицы AlAs. Кривая 1 состоит из трех частей, отмеченных на рисунке стрелками. На участке (a) использовалась регистрация стрик-камерой, ФЛ возбуждалась светом с энергией фотонов (3.10 эВ) большей, чем ширина запрещенной зоны матрицы AlAs. На участках (b) и (c) ФЛ регистрировалась с помощью системы время-коррелированного счета фотонов, ФЛ возбуждалась светом с энергией фотонов (1.82 эВ) меньшей, чем ширина запрещенной зоны матрицы AlAs. Штриховые линии приведены для облегчения восприятия

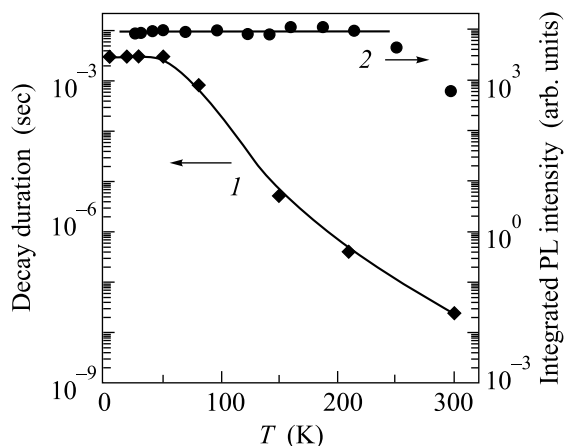


Рис.4. Температурные зависимости (1) длительности затухания ФЛ до интенсивности в $2.5 \cdot 10^{-3}$ от начального значения и (2) интегральной интенсивности ФЛ, квантовых точек InAs/AlAs. Сплошные линии приведены для облегчения восприятия

налов безызлучательной рекомбинации. Дальнейшее повышение температуры до 300 К приводит к уменьшению интегральной интенсивности в 15 раз за счет

термической активации носителей заряда в смачивающий слой и/или матрицу AlAs [5, 8].

Авторы работы [9] наблюдали микросекундное затухание низкотемпературной (6 К) ФЛ квантовых точек InAs/AlAs при возбуждении светом с энергией фотонов, превышающей ширину запрещенной зоны матрицы AlAs. В предложенной ими модели рекомбинации предполагалось, что длительное затухание ФЛ объясняется пространственным разделением носителей заряда разного знака между соседними квантовыми точками, которое происходит за счет рассеяния электронов через состояния X-долины матрицы AlAs в процессе их энергетической релаксации.

Совокупность полученных нами экспериментальных данных не может быть объяснена в рамках модели, предложенной в работе [9]. Действительно, при возбуждении ФЛ светом с энергией фотонов, меньшей ширины запрещенной зоны матрицы, неравновесные носители заряда возбуждаются внутри квантовой точки, не могут попасть в X-долину AlAs и, следовательно, предложенный в работе [9] механизм не реализуется. Кроме того, данная модель не содержит параметров, зависящих от температуры, и не позволяет объяснить наблюдаемое нами уменьшение времени затухания ФЛ с повышением температуры на пять порядков.

Для объяснения наблюдаемой миллисекундной кинетики ФЛ мы приняли во внимание тонкую структуру уровней экситонов, сильно локализованных в квантовых точках [10]. Экситон как система двух спаренных спинов может находиться либо в оптически активном синглетном состоянии с малым излучательным временем жизни τ_C , либо в оптически неактивном триплетном состоянии, характеризующемся большим временем жизни $\tau_T \gg \tau_C$. Вследствие обменного взаимодействия синглетный и триплетный уровни экситона расщепляются. В трехмерных полупроводниковых материалах и квантовых точках большого размера расщепление Δ между основным триплетным и лежащим выше по энергии синглетным экситонными уровнями меньше, чем kT , даже при температуре жидкого гелия. В этом случае кинетика экситонной ФЛ экспоненциальна и характеризуется временем жизни τ_C . Однако для экситонов, сильно локализованных в квантовых точках малого размера, внедренных в широкозонную матрицу, как это имеет место для квантовых точек InAs в матрице AlAs, величина расщепления Δ сильно возрастает [11, 12]. В таких точках в отсутствие конкурирующих каналов ухода носителей заряда из точки излучательное время жизни экситона при низких температурах $kT < \Delta$ определяется временем жизни

экситона в оптически неактивном триплетном состоянии τ_T .

В системе изолированных квантовых точек с разбросом размеров дисперсия значений Δ приводит к спектральной зависимости времени затухания ФЛ [11]. Совершенно иная картина наблюдается в системе локально связанных квантовых точек InAs в матрице AlAs. Вследствие малого расстояния между квантовыми точками волновые функции носителей заряда в соседних квантовых точках значительно перекрываются, кроме того, потенциальный барьер между точками может локально понижаться [6, 9]. Это приводит к перетеканию экситонов из точек малых размеров в большие точки. В этом случае точки большого размера с малым значением Δ и, следовательно, малым временем жизни обеспечивают канал для рекомбинации экситонов. В то же время, маленькие точки с большим значением Δ и большим временем жизни играют роль резервуара, из которого экситоны попадают в большие точки. В такой системе связанных квантовых точек длительность затухания ФЛ в больших точках определяется уже не временем излучательной рекомбинации экситонов в точке, а временем, в течение которого экситоны из маленьких точек попадают в большие точки. Очевидно, что это время по порядку величины совпадает с временем жизни экситонов в маленьких точках. Поскольку значения времени жизни в точках различного размера случайным образом распределены в широком диапазоне от τ_C до τ_T , форма кинетической кривой становится неэкспоненциальной. Наблюдаемый нами степенной закон затухания типичен для процессов затухания, характеризующихся большим набором характерных времен жизни, и ранее наблюдался при рекомбинации экситонов, локализованных на флуктуациях состава в непрямозонных твердых растворах AlGaAs [13]. Повышение температуры приводит к росту вероятности перехода экситонов между связанными точками и, одновременно, к уменьшению времени жизни экситонов в точках малого размера вследствие термоактивации из триплетного состояния в синглетное. При высоких температурах, когда в точках малого размера выполняется условие $kT > \Delta$, время затухания ФЛ уменьшается до значения τ_C . Уменьшение времени затухания ФЛ в исследуемых нами образцах начинается при температурах, превышающих 50 К, следовательно, величина синглет-триплетного расщепления в квантовых точках малого размера должна составлять, по крайней мере, несколько миллиэлектронвольт. Используя развитую в работе [14] теорию для кристаллов симметрии T_d без учета дальнедействующей части об-

менного взаимодействия, мы оценили величину расщепления Δ в точках малого размера. Поскольку точки InAs имеют форму, отличающуюся от сферической, рассматриваемой в работе [14], в своих расчетах мы использовали в качестве радиуса точки R радиус сферы с объемом, равным объему реальной точки. Полученное значение расщепления $\Delta = 4,6$ мэВ хорошо согласуется с данными наших экспериментов.

Модель локально связанных квантовых точек позволяет также объяснить температурную зависимость положения линии ФЛ. Повышение температуры приводит к повышению заселенности оптически активного синглетного состояния и, следовательно, к возрастанию вероятности рекомбинации экситонов в точках малого размера. Этот процесс приводит к перераспределению экситонов между точками различного размера. Коротковолновый сдвиг линии ФЛ, наблюдаемый при повышении температуры в диапазоне 50–150 К, обусловлен, таким образом, повышением доли экситонов, рекомбинирующих в точках меньшего размера. Длинноволновый сдвиг линии при повышении температуры свыше 150 К обусловлен уменьшением ширины запрещенной зоны InAs и AlAs [6].

Таким образом, в данной работе исследована нестационарная и стационарная ФЛ самоорганизованных квантовых точек InAs в матрице AlAs. Обнаружено аномально длительное миллисекундное неэкспоненциальное затухание ФЛ при низких температурах. Длительность затухания значительно уменьшается при повышении температуры свыше 50 К и достигает значения в несколько наносекунд при 300 К. Экспериментальные результаты объяснены в рамках модели локально связанных квантовых точек. Длительное затухание при низких температурах обусловлено синглет-триплетным расщеплением экситонных уровней в квантовых точках малого размера.

Авторы выражают благодарность А. В. Ефанову за плодотворное обсуждение результатов. Работа была частично поддержана грантами Volkswagen Foundation (Project I/76 837), Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 01-02-16969) и Минпромнауки.

1. Y. Arakawa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. **40**, 1982 (1982).
2. R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie et al., Phys. Rev. **B57**, 9050 (1998).
3. P. D. Buckle, P. Dawson, S. A. Hall et al., J. Appl. Phys. **86**, 2555 (1999).
4. D. A. Tenne, A. K. Bakarov, A. I. Toropov, and D. R. T. Zahn, Physica **E13**, 199 (2002).

5. U. H. Lee, D. Lee, H. G. Lee et al., Appl. Phys. Lett. **74**, 1597(1999).
6. Z. Ma, K. Pierz, and P. Hinze, Appl. Phys. Lett. **79**, 2564 (2001).
7. P. Ballet, J. B. Smathers, H. Yang et al., J. Appl. Phys. **90**, 481 (2001).
8. L. Zang, T. F. Boggess, D. G. Deppe et al., Appl. Phys. Lett. **76**, 1222 (2000).
9. P. Dawson, Z. Ma, K. Pierz, and E. O. Gobel, Appl. Phys. Lett. **81**, 2349 (2002).
10. H. Fu, Lin-Wang Wang, and A. Zunger, Phys. Rev. **B59**, 5568 (1999).
11. P. D. J. Calcott, K. J. Nash, L. T. Canham et al., J. Phys.: Condens. Matter **5**, L91 (1993).
12. Al. L. Efros, M. Rosen, M. Kuno et al., Phys. Rev **B54**, 4843 (1996).
13. M. V. Klein, M. D. Sturge, and E. Cohen, Phys. Rev. **B25**, 4331 (1982).
14. С. В. Гупалов, Е. Л. Ивченко, ФТТ **42**, 1976 (2000).