

НЕРЕЗОНАНСНЫЙ ИЗЛУЧАТЕЛЬНЫЙ ПЕРЕНОС ЭКСИТОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ ЗА СЧЕТ БЛИЖНЕГО ПОЛЯ МЕЖДУ КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ

В. Я. Алешкин^{a,c}, Л. В. Гавриленко^{a,c}, Д. М. Гапонова^a,
А. М. Кадыков^a, В. Г. Лысенко^b, З. Ф. Красильник^{a,c}*

^a *Институт физики микроструктур Российской академии наук
603950, Нижний Новгород, ГСП-105, Россия*

^b *Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^c *Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского
603950, Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 7 мая 2013 г.

Экспериментально наблюдалось увеличение сигнала фотолюминесценции из более широкой квантовой ямы при возбуждении экситонного перехода в соседней узкой квантовой яме, отделенной от первой туннельно-непрозрачным барьером AlGaAs. Исследована зависимость эффективности излучательного переноса за счет ближнего поля экситонных возбуждений от расстояния между квантовыми ямами в гетероструктурах без совпадений экситонных резонансов в соседних квантовых ямах. Получено качественное согласие теоретических и экспериментальных результатов.

DOI: 10.7868/S0044451013110187

1. ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени процессы переноса возбуждений вследствие туннелирования, а также вследствие термической активации носителей заряда подробно изучены и используются. Несколько иначе обстоит дело с процессами переноса возбуждений через туннельно-непрозрачные барьеры. В ряде экспериментальных работ наблюдалось явление переноса возбуждений между экситонными состояниями в квантовых ямах (КЯ) и квантовых точках (КТ), разделенных широкими туннельно-непрозрачными барьерами [1–5].

Механизмы, предлагаемые для описания переноса возбуждений в случае широкого туннельно-непрозрачного барьера, в работах различных авторов чаще всего основываются на модели Фёрстера [6–9]. Эта модель, описывающая безызлучательное электростатическое взаимодействие между диполями, использовалась для объяснения «гашения» воз-

бужденных состояний примесных атомов и других точечных дефектов за счет передачи возбуждения другому атому или дефекту.

В гетероструктурах на основе прямозонных полупроводников, таких как GaAs, вероятность излучательной рекомбинации носителей заряда велика (излучательное время жизни менее 1 нс), поэтому необходимо учитывать возможность излучательного переноса возбуждений.

Так, например, в работе [10] наблюдалось перепоглощение экситонной фотолюминесценции (ФЛ) в гетероструктуре с двумя квантовыми ямами различной ширины, расположенными на расстоянии 60 нм. Резонансное совпадение линии излучения экситона с тяжелой дыркой в узкой КЯ с линией поглощения экситона с легкой дыркой в широкой КЯ сделало наблюдаемым такой процесс перепоглощения. В работе [11] более сильный эффект излучательного переноса возбуждений наблюдался в гетероструктуре с тремя квантовыми ямами различной ширины, у которых также попарно совпадали линии излучения экситона с тяжелой дыркой (в более узкой КЯ)

*E-mail: aritany@ipmras.ru

и линии поглощения экситона с легкой дыркой (в более широкой КЯ). Важно также отметить, что в последней работе квантовые ямы находились на расстоянии 30 нм, поэтому были учтены и слагаемые за счет ближнего поля при расчете коэффициента перепоглощения излучения экситона в КЯ. Кроме того, в работе [11] была предсказана зависимость эффективности переноса за счет ближнего поля от расстояния между КЯ.

Целью данной работы было экспериментальное определение величины эффекта переноса за счет ближнего поля в гетероструктурах без совпадений экситонных резонансов в соседних КЯ, так как такое совпадение редко встречается без специального дизайна. В работе исследовалась зависимость эффективности переноса за счет ближнего поля экситонов между КЯ от ширины разделяющего их барьера. Наблюдалось возрастание интенсивности сигнала ФЛ из более широкой КЯ при возбуждении экситонного перехода в соседней узкой КЯ, отделенной от первой туннельно-непрозрачным барьером AlGaAs.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Дизайн гетероструктур был выполнен таким образом, чтобы избежать совпадений экситонных резонансов в соседних КЯ. При этом излучение экситона $e1hh1$ (связанного с первой электронной подзоной $e1$ и первой подзоной тяжелых дырок $hh1$) из одной КЯ будет поглощаться при переходах свободных носителей заряда из дырочных подзон в электронные подзоны в другой КЯ. Коэффициент перепоглощения экситонного излучения в таких гетероструктурах меньше, чем при совпадении экситонных резонансов, однако узкие, но туннельно-непрозрачные барьеры (с большим содержанием алюминия в твердом растворе), позволили наблюдать эффект.

Параметры гетероструктур приведены в таблице. Исследуемые гетероструктуры различались содержанием Al в барьерах. В гетероструктуре № 1 барьеры между КЯ были сделаны тоньше (15 нм и 20 нм вместо соответственно 20 нм и 25 нм). Гетероструктуры содержали по три КЯ (КЯ1, КЯ2, КЯ3), при этом незначительно различалась ширина средней КЯ2 (это делалось для того, чтобы возбужденные состояния КЯ2 не совпадали в разных гетероструктурах). Различная ширина барьеров делалась для того, чтобы исследовать зависимость эффективности излучательного переноса от расстояния между КЯ. Исследования спектров ФЛ и возбуждения ФЛ (ВФЛ) проводились при температуре 4 К. Об-

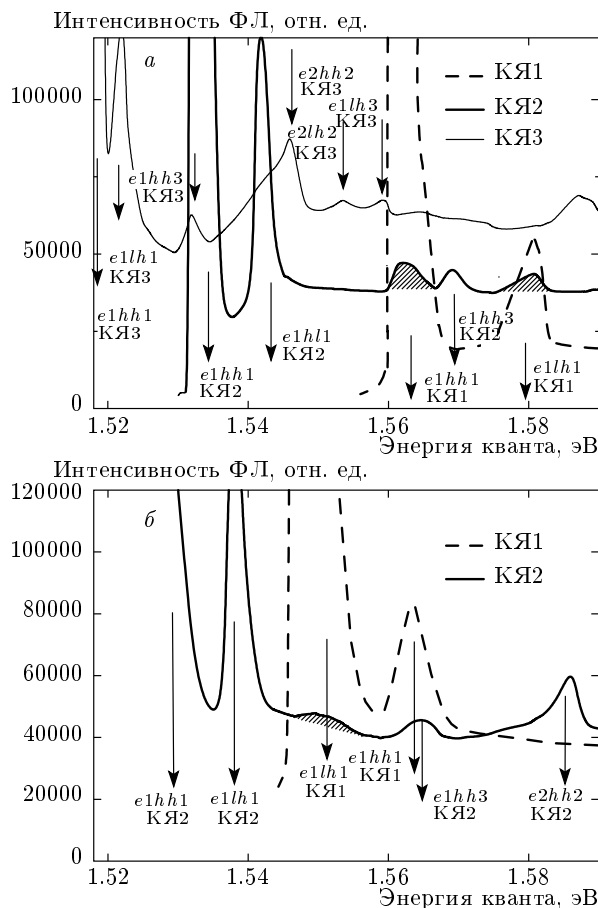


Рис. 1. Спектры ВФЛ гетероструктур № 1 (а) и № 2 (б) с тремя КЯ. Спектр ВФЛ в КЯ3 в структуре № 2 не приведен, так как в спектре ФЛ линия КЯ3 плохо разрешена относительно пика GaAs. Стрелками отмечены расчетные положения экситонных резонансов. Штриховкой выделены области увеличения сигнала ФЛ из КЯ2 при возбуждении в экситонный резонанс КЯ1

разцы возбуждались Ti-сапфировым лазером, перестраиваемым в диапазоне 780–830 нм.

На рис. 1 приведены спектры ВФЛ гетероструктур AlGaAs/GaAs с содержанием алюминия $x = 0.45$ (а) и $x = 0.3$ (б), измеренные при средней мощности 0.5 мВт. Различные типы линий на рисунках соответствуют разным КЯ (для гетероструктуры с $x = 0.3$ приведены спектры ВФЛ только для двух КЯ шириной 10 и 15 нм). Стрелками отмечены расчетные положения экситонных резонансов, которые хорошо совпадают с пиками в спектрах ВФЛ. На рис. 1а на сплошной жирной кривой кроме пиков собственных экситонных резонансов в КЯ2, отмеченных стрелками, отчетливо видны два пика (1.563 эВ, 1.579 эВ), совпадающие по положению с экситонными резонансами в КЯ1 (штриховая кри-

Таблица. Параметры исследуемых гетероструктур

Гетероструктура № 1			Гетероструктура № 2		
Толщина, нм	Материал	x	Толщина, нм	Материал	x
40	GaAs		40	GaAs	
50	$Al_xGa_{1-x}As$	0.45	50	$Al_xGa_{1-x}As$	0.3
10	GaAs (КЯ1)		10	GaAs (КЯ1)	
15	$Al_xGa_{1-x}As$	0.45	20	$Al_xGa_{1-x}As$	0.3
16	GaAs (КЯ2)		15	GaAs (КЯ2)	
20	$Al_xGa_{1-x}As$	0.45	25	$Al_xGa_{1-x}As$	0.3
28	GaAs (КЯ3)		28	GaAs (КЯ3)	
50	$Al_xGa_{1-x}As$	0.45	50	$Al_xGa_{1-x}As$	0.3
50	GaAs (буфер)		50	GaAs (буфер)	
GaAs (подложка)			GaAs (подложка)		

вая). На линии КЯ3 (тонкая кривая), отделенной барьером 20 нм от КЯ2, не наблюдается резонансов, кроме собственных, отмеченных стрелками. Это связано с большей шириной барьера между КЯ2 и КЯ3. Кроме того, в КЯ3 в обеих гетероструктурах наблюдалась большая концентрация остаточных носителей заряда, возникающая вследствие соседства с толстым барьером AlGaAs.

В гетероструктуре № 2 с барьерами 20 нм и 25 нм наблюдается слабый пик на сплошной кривой вблизи 1.551 эВ, совпадающий с экситонным резонансом в КЯ1. Эта область отмечена штриховкой. Второй пик вблизи 1.562 эВ не следует принимать во внимание, так как экситонный резонанс $1ehh3$ в КЯ2 по расчетам почти совпал с резонансом $1elh1$ в КЯ1.

На рис. 2 показано, как изменяется спектр ФЛ гетероструктуры № 1 при совпадении энергии кванта накачки с энергией экситона с легкой дыркой в КЯ1. Штриховая линия соответствует возбуждению гетероструктуры ниже по энергии, чем резонанс с экситоном с легкой дыркой в КЯ1. Сплошная линия отвечает возбуждению непосредственно в резонанс с экситоном $e1lh1$ в КЯ1. Видно, что при резонансном возбуждении пики ФЛ в КЯ1 и КЯ2 увеличиваются (сплошная линия).

3. ВЕРОЯТНОСТЬ ТУННЕЛИРОВАНИЯ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА МЕЖДУ КЯ

Асимметричная форма пиков в спектре ФЛ гетероструктур (см. рис. 2) может быть следствием

того, что квантовые ямы исходно содержат некоторое количество носителей заряда одного знака. В результате в спектре ФЛ кроме линии ФЛ свободного экситона, наблюдается еще линия заряженного экситонного комплекса, отстоящая от первой на 1–2 мэВ [11]. Одной из причин зарядки КЯ является туннелирование носителей заряда из соседней КЯ, которое происходит с различной вероятностью для электронов и дырок. Поскольку целью данной работы является изучение излучательного переноса экситонов между туннельно-несвязанными КЯ, необходимо определить, имеет ли место перенос носителей заряда за счет туннелирования в исследуемых гетероструктурах.

Рассмотрим вероятность туннелирования носителей заряда между двумя наиболее близко расположенными КЯ в гетероструктуре № 1. При измерении спектров ВФЛ и ФЛ, приведенных на рис. 1, 2, энергия кванта возбуждающего лазера лежала в пределах 1.5–1.585 эВ. При этом оптически могут возбуждаться следующие межзонные переходы носителей заряда: в КЯ1 шириной 10 нм — $e1hh1$ (1.563 эВ) и $e1lh1$ (1.579 эВ); в КЯ2 шириной 16 нм — $e1hh1$ (1.534 эВ), $e1lh1$ (1.543 эВ) и $e1hh3$ (1.569 эВ). Остальные переходы лежат выше по энергии, как это видно на рис. 1а. Это значит, что при возбуждении ФЛ, например, энергией кванта 1.58 эВ носители заряда присутствуют в $e1$ -, $hh1$ - и $lh1$ -подзонах размерного квантования КЯ1 и КЯ2 и в $hh3$ -подзоне КЯ2. Расчет волновых функций, соответствующих

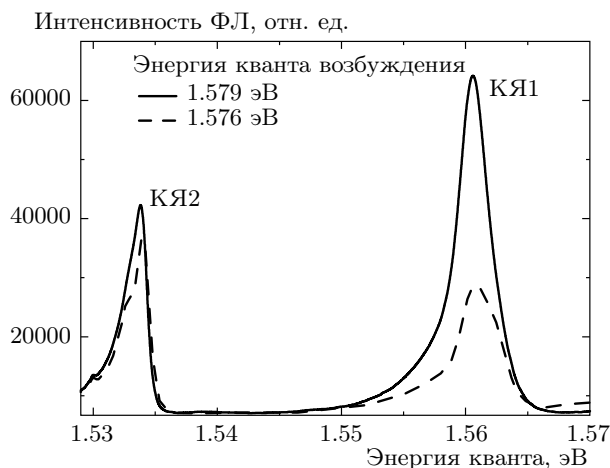


Рис. 2. Спектры ФЛ КЯ1 и КЯ2 гетероструктуры № 1, снятые при резонансном (сплошная линия) и нерезонансном (штриховая) возбуждениях экситонного уровня $e1lh1$ в КЯ1

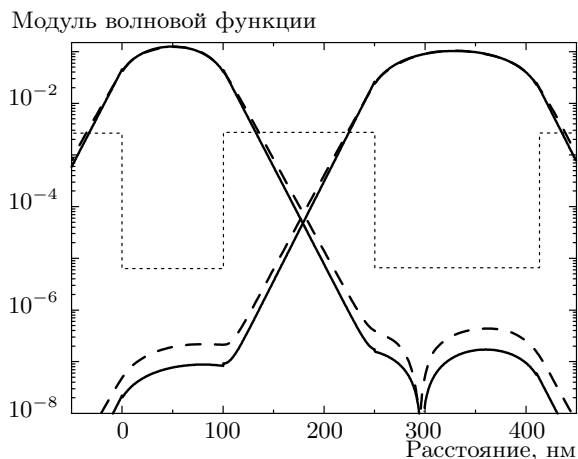


Рис. 3. Модуль волновых функций, соответствующих подзонам размерного квантования $e1$ (сплошная линия) и $lh1$ (штриховая), для КЯ1 и КЯ2 в гетероструктуре № 2

уровням размерного квантования в КЯ, показал, что проникновение волновой функции через барьер между КЯ мало для двух нижних уровней электронов и легких дырок, не говоря о тяжелых дырках (см. рис. 3). На рис. 3 приведены модули волновых функций электронов и легких дырок двух наиболее близко расположенных КЯ, разделенных барьером 15 нм ($x = 0.45$). Учет конечной ширины барьера между КЯ приводит к слабому сдвигу уровней размерного квантования (заглублению на $2 \cdot 10^{-13}$ эВ для легких дырок и на $5 \cdot 10^{-14}$ эВ для электронов).

Учтены переходы со дна первой подзоны размерного квантования в КЯ1 в состояния первой подзоны КЯ2 при рассеянии на акустических фононах (так как расстояние между подзонами меньше энергии оптического фонона). Характерное время, за которое происходит переход из КЯ1 в КЯ2 сквозь барьер шириной 15 нм, составляет для электронов примерно 80 с, для легких дырок — 10 с. Для барьера шириной 20 нм времена туннелирования будут во много раз больше. При импульсном возбуждении образца с длительностью импульса примерно 2 пс и временем жизни фотовозбужденных носителей в КЯ менее 1 нс процессами перехода носителей заряда за счет туннелирования можно пренебречь.

Зарядка КЯ может быть также обусловлена захватом носителей заряда в КЯ с примесных состояний в барьере. Присутствие в КЯ остаточных носителей заряда не влияет существенным образом на процесс перепоглощения излучения из одной КЯ в другую.

4. ВЕРОЯТНОСТЬ ИЗЛУЧАТЕЛЬНОГО ПЕРЕНОСА ЭКСИТОНОВ ЗА СЧЕТ БЛИЖНЕГО ПОЛЯ МЕЖДУ КЯ

В описанном выше эксперименте наблюдалось увеличение интенсивности ФЛ из более широкой КЯ, когда энергия кванта излучения лазера совпала с энергией экситонного перехода в более узкой КЯ, отделенной от широкой туннельно-непрозрачным барьером. Излучение экситонов из одной КЯ поглощается носителями заряда (при межзонных переходах) в другой КЯ более эффективно, нежели излучение лазера. Во-первых, излучающие экситоны представляют собой колеблющиеся диполи, а их излучение содержит слагаемые, связанные с ближним полем, вклад которых резко возрастает на расстояниях от диполя много меньших длины волны излучения. Во-вторых, электрическое поле излучения диполя, лежащего в плоскости КЯ, имеет также и z -компоненту (z — направление роста гетероструктуры), которая может поглощаться во второй КЯ при переходах из подзоны легких дырок. В-третьих, часть излучения экситона распространяется под скользящими углами к соседней КЯ. Коэффициент поглощения этой части излучения существенно больше такового для нормально падающего излучения.

Как и в работе [12], излучающий экситон с тяжелой дыркой был представлен в виде колеблющегося в плоскости КЯ диполя (плоскость xy). Пусть ди-

польный момент имеет только одну компоненту d_x . Напряженность электрического поля в испускаемой диполем волне имеет вид

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \left[\left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \left[[\mathbf{n} \times \mathbf{d}] \times \mathbf{n} \right] \frac{1}{r} + \frac{\{3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{d}) - \mathbf{d}\}}{\varepsilon} \times \right. \\ \left. \times \left(\frac{1}{r^3} - \frac{\omega \sqrt{\varepsilon}}{c} \frac{i}{r^2} \right) \right] \exp \left(ir\omega \frac{\sqrt{\varepsilon}}{c} - i\omega t \right), \quad (1)$$

где c — скорость света в вакууме, ε — диэлектрическая проницаемость, \mathbf{n} — единичный вектор, направленный от излучающего диполя в точку наблюдения, \mathbf{d} — вектор дипольного момента.

Поглощаемую мощность излучения диполя квантовой ямой можно разделить на две части: мощность, связанную с дальним полем, и мощность, связанную с ближним полем [12]. В дипольном приближении можно найти долю излучения, связанного с ближним полем диполя, поглощаемую КЯ за счет ближнего поля для переходов соответственно из зон тяжелых и легких дырок [12]:

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

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

где $k = \omega/c$, R — расстояние от диполя до КЯ, $\chi_{l(h)}$ — интегралы перекрытия волновых функций электронов и легких (тяжелых) дырок.

На рис. 4 в двойном логарифмическом масштабе приведена зависимость коэффициентов поглощения излучения за счет ближнего поля в КЯ от расстояния до излучающего диполя (экситона в соседней КЯ), рассчитанная по формулам (2), (3). Для сравнения отмечено значение коэффициента поглощения лазерного излучения в КЯ (нормально падающей плоской волны) — штрихпунктир. При уменьшении расстояния до излучающего диполя коэффициент поглощения излучения за счет ближнего поля растет степенным образом как R^{-4} . Переходы носителей заряда из подзоны легких дырок вносят основной вклад в поглощение при переносе энергии за счет ближнего поля.

С помощью формул (2), (3) рассчитаем спектр ВФЛ для КЯ2 при перестройке кванта энергии лазера в окрестности $e1lh1$ в КЯ1:

$$I_{QW2}(\omega) \propto (1 - \alpha_{QW1}(\omega)) \alpha_{QW2} + \\ + \alpha_{QW1}(\omega) (\alpha_h + \alpha_l + \alpha_2^F) / 2. \quad (4)$$

Здесь первое слагаемое отвечает поглощению лазерного излучения свободными носителями заряда в

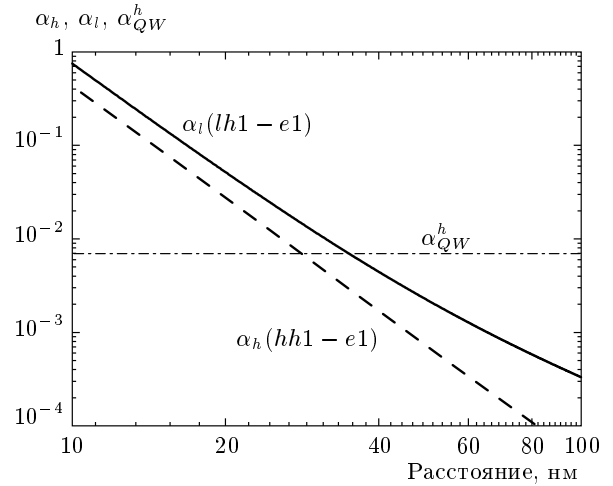


Рис. 4. Зависимость коэффициентов поглощения квантовой ямой ближнеполевых составляющих дипольного излучения (второе и третье слагаемые в формуле (1)) от расстояния до излучающего диполя. Учтено поглощение при переходах носителей из подзоны легких дырок (сплошная кривая) и тяжелых дырок (штриховая). Для сравнения горизонтальной штрихпунктирной прямой показан коэффициент поглощения в квантовой яме нормально падающей плоской электромагнитной волны

КЯ2. Второе слагаемое отвечает перепоглощению излучения из КЯ1. Коэффициент поглощения α_{QW1} может быть получен из спектров ВФЛ, он резонансным образом зависит от частоты излучения вблизи энергии экситона с легкой дыркой в КЯ1 (см. рис. 5). Коэффициенты поглощения излучения за счет ближнего поля α_h и α_l зависят от расстояния между КЯ и описываются формулами (2), (3). Коэффициент поглощения лазерного излучения в КЯ (нормально падающей плоской волны) $\alpha_{QW2} = 0.01$, коэффициент перепоглощения дипольного излучения в дальней зоне $\alpha_2^F = 0.03$.

На рис. 5 приведены результаты расчета спектров ВФЛ для КЯ2 (сплошная жирная линия) в области экситонных резонансов $e1lh1$ и $e1hh1$ в КЯ1. Для сравнения приведены измеренные спектры ВФЛ для КЯ2 (тонкая линия) для обоих исследованных гетероструктур.

Видно, что для гетероструктуры № 1 измеренное увеличение сигнала ФЛ из КЯ2 вблизи экситонного резонанса $e1lh1$ в КЯ1 хорошо согласуется с теоретически предсказанным. Пик, вызванный перепоглощением излучения в КЯ2, имеет ту же форму, что и резонансный пик в КЯ1. Согласие теории и эксперимента несколько хуже в области основно-

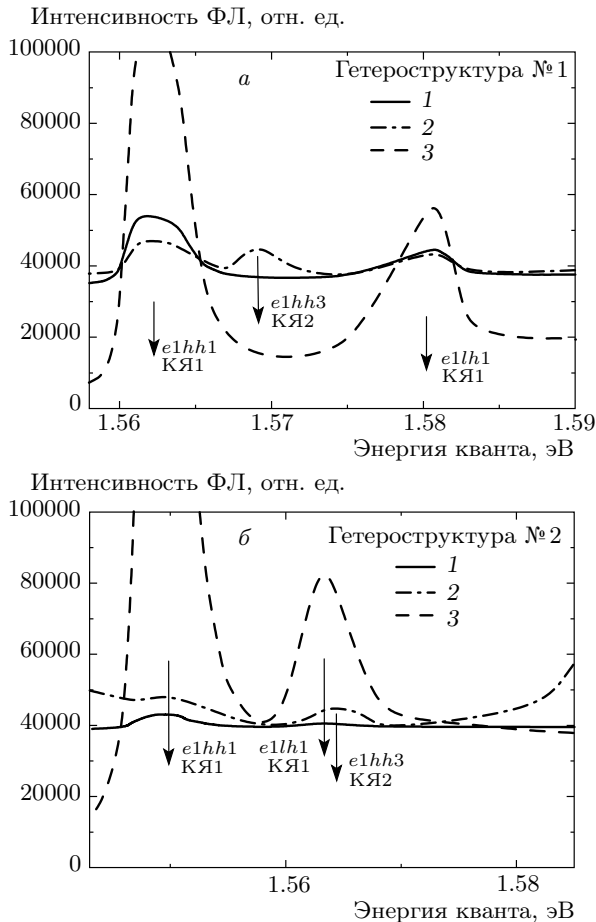


Рис. 5. Сравнение вычисленного (линия 1) и измеренного (2) спектров ВФЛ для КЯ2. Линия 3 — измеренный спектр ВФЛ для КЯ1 в гетероструктуре № 1 (а) и № 2 (б)

го экситонного резонанса $e1hh1$ в КЯ1 (рис. 6а). В области основного экситонного резонанса спектр поглощения в КЯ нельзя корректно определить по спектру ВФЛ. Поэтому в расчетах предполагалось, что пик основного экситонного резонанса имеет ту же ширину, что и $e1lh1$, но его амплитуда в три раза больше (так как отношение квадратов межзонных матричных элементов оператора импульса для переходов из подзоны тяжелых и легких дырок $|p_{cv}^h|^2/|p_{cv}^l|^2 = 3$ [13]).

В гетероструктуре № 2 увеличение сигнала ФЛ в КЯ2 при переходе через экситонные резонансы КЯ1 примерно в 4 раза меньше, чем в гетероструктуре № 1 и находится на грани идентификации (как видно на рис. 1 и 5б). Вертикальными стрелками отмечены энергии экситонных резонансов в КЯ1 и КЯ2. Наблюдаемое уменьшение эффективности из-

лучательного переноса экситонных возбуждений за счет ближнего поля с увеличением расстояния между КЯ согласуется с теорией.

В заключение отметим, что обсуждаемый в нашей работе механизм переноса экситонных возбуждений между КЯ намного более эффективен в гетероструктурах, где в КЯ присутствуют уровни размерного квантования легких дырок. В гетероструктурах InGaAs/GaAs, где уровни размерного квантования легких дырок вытолкнуты из КЯ, эффективность переноса за счет ближнего поля будет примерно в три раза меньше, чем в КЯ AlGaAs/GaAs (для близких длин волн).

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 12-02-31320) и гранта Президента РФ поддержки ведущих научных школ РФ (НШ-4756.2012.2).

ЛИТЕРАТУРА

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. Amer. 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, E. Cohen et al., Phys. Rev. B **54**, 8728 (1996).
5. Т. С. Шамирзаев, Д. В. Дмитриев, Л. Л. Свешникова, П. Тронк, Письма в ЖЭТФ **94**, 828 (2011).
6. Th. Förster, Ann. Phys. (Leipzig) **2**, 55 (1948).
7. D. L. Dexter, J. Chem. Phys. **21**, 836 (1953).
8. S. K. Lyo, Phys. Rev. B **62**, 13641 (2000).
9. S. K. Lyo, Phys. Rev. B **81**, 115303-1 (2010).
10. Е. А. Муляров, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков и др., Письма в ЖЭТФ **70**, 613 (1999).
11. N. N. Sibeldin, M. L. Skorikov, and V. A. Tsvetkov, Nanotechnology **12**, 591 (2001).
12. В. Я. Алешкин, Л. В. Гавриленко, Д. М. Гапонова и др., Письма в ЖЭТФ **94**, 890 (2011).
13. Г. Л. Бир, Г. Е. Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, Наука, Москва (1972).