

06

Соотношение между квазипороговым и беспороговым процессами Оже-рекомбинации в квантовых точках InAs/GaAs

© А.С. Школьник, В.П. Евтихийев, Г.Г. Зегря

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
E-mail: alex@mbep1.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 24 января 2006 г.

Исследованы основные механизмы Оже-рекомбинации неравновесных носителей в полупроводниковых гетероструктурах с квантовыми точками. Показано, что в квантовых точках кроме порогового существуют еще два принципиально различных механизма Оже-рекомбинации: 1) беспороговый механизм; 2) квазипороговый механизм. Показано, что при различных радиусах квантовых точек может доминировать как один, так и другой механизм. Показано, что при радиусе квантовой точки $\sim 30 \text{ \AA}$ вероятность Оже-рекомбинации сравнима с вероятностью излучательной рекомбинации.

PACS: 32.80.Nd, 73.63.Kv

Введение. В прямозонных полупроводниках при высоких уровнях возбуждения преобладают два процесса рекомбинации: излучательный процесс и безызлучательный Оже-процесс [1–3]. При высоких концентрациях неравновесных носителей процессы Оже-рекомбинации (ОР) в узкозонных полупроводниках A_3B_5 доминируют над излучательным и определяют характеристики полупроводниковых лазеров [3–9]. В связи с этим исследования механизмов ОР ведутся давно и на данный момент они подробно изучены и описаны [1,4–8].

В течение продолжительного времени некоторыми авторами предсказывалось ослабление эффективности ОР для гетероструктур пониженной размерности [10]. Наоборот, в работе [11] было показано, что в гетероструктурах процессы ОР усилены. Кроме того, и это очень важно, из-за рассеяния носителей заряда на гетерогранице снимается порог для процесса ОР. При этом скорость ОР зависит

от температуры степенным, а не экспоненциальным образом. Позже теоретически было показано, что в квантовых ямах должно существовать три механизма СНСС ОР (Оже-рекомбинации, сопровождающейся переходом второго электрона высоко в зону проводимости): пороговый, квазипороговый (КП) и беспороговый (БП) [9,12,13]; и благодаря именно этим каналам эффективность ОР растет с понижением размерности структуры. Результаты этих теоретических исследований были подтверждены экспериментальными работами по прямому наблюдению ОР в КЯ [14].

В ряде работ были сделаны попытки анализа процессов ОР в КТ [15–22], однако на данный момент, на наш взгляд, полный подробный анализ процессов ОР в КТ в литературе отсутствует. Между тем расчет и анализ температурных зависимостей коэффициентов ОР необходимы для анализа влияния ОР на работу конкретных оптоэлектронных приборов на квантовых точках [23].

Наша работа посвящена теоретическому анализу квазипорогового и беспорогового процессов ОР в КТ, а также численному расчету коэффициентов ОР в КТ для системы InAs/GaAs при различных температурах и радиусах КТ.

Модель. Для анализа процессов ОР в КТ мы используем приближение сферических КТ. В этом приближении удобно перейти к сферической системе координат. Для описания волновых функций электронов и дырок в полупроводниках A_3B_5 мы пользуемся трехзонной моделью Кейна [24]. Уравнения Кейна для КТ имеют вид [17]

$$\begin{aligned} (V_c(r) - E)\psi_s(r) - i\hbar\gamma\nabla\psi(r) &= 0, \\ (E_g - V_v(r) - E)\psi(r) - i\hbar\gamma\nabla\psi_s(r) &= 0, \end{aligned} \quad (1)$$

где $\psi(r) = \psi_s(r)|s\rangle + \psi(r)|p\rangle$, $\psi_s(r)$ и $\psi(r)$ — плавные огибающие s - и p -типа; $|s\rangle$ и $|p\rangle$ — блоховские периодические волновые функции; E — энергия электрона, отсчитанная от дна зоны проводимости; V_c , V_v — высоты барьеров для электронов и дырок соответственно, γ — кейновский матричный элемент. Из второго уравнения можно выразить $\psi(r)$ через $\psi_s(r)$: $\psi(r) = -\frac{i\hbar\gamma}{E+E_g}\nabla\psi_s(r)$; после подстановки в первое уравнение имеем систему уравнений для носителей, локализованных внутри КТ ($r < R$), а также для носителей в барьерной области при

$r > R$:

$$\Delta\psi_s + k^2\psi_s = 0, \quad r < R, \quad k^2 = \frac{E(E + E_g)}{h^2\gamma^2},$$

$$\Delta\psi_s - \bar{\omega}^2\psi_s = 0, \quad r > R, \quad \bar{\omega}^2 = -\frac{(V_c - E)(E_g + E + V_c)}{h^2\gamma^2}. \quad (2)$$

Для состояния дискретного спектра решение уравнения (2) можно записать в виде

$$\psi_s(r) = f_c(r)Y_{lm}(\theta, \varphi),$$

$$f_c(r) = AJ_l(k, r), \quad r < R,$$

$$f_c(r) = A \frac{J_l(k, R)}{K_l(k, R)_l} K_l(k, r), \quad r > R. \quad (3)$$

Здесь $J_l(k, r)$ и $K_l(k, r)$ — сферические функции Бесселя. $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ — шаровые функции. Аналогичным образом записываются решения уравнения Кейна и для дырок. Для непрерывного спектра волновую функцию электрона можно представить в виде обыкновенной бегущей волны.

Проведем вычисления матричного элемента ОР:

$$M_{f,i} = \iiint dr^3 dr_1^3 \psi_2^*(r) \psi_3(r) \frac{er}{\bar{\omega}_0|r - r_1|} \psi_1^*(r_1) \psi_4(r_1), \quad (4)$$

где ψ_1 и ψ_2 — волновые функции электронов в начальном состоянии, ψ_3 и ψ_4 — в конечном, ψ_1 отвечает состоянию в валентной зоне; $\bar{\omega}_0$ — диэлектрическая проницаемость среды.

В работах [9,12] подробно представлен расчет матричного элемента Оже-перехода для СНСС-процесса (с участием двух электронов и тяжелой дырки) в квантовых ямах. В случае сферической КТ нам будет удобно воспользоваться представленным методом, который легко модифицируется для решения поставленной задачи. В данном случае удобнее всего воспользоваться разложением кулоновского потенциала по мультиполям:

$$\frac{1}{r_1 - r_2} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{r_2}{(2l+1)r_1^{l+1}} Y_{l,m}^*(\theta_1\alpha_1) Y_{l,m}(\theta_2\alpha_2). \quad (5)$$

После интегрирования по углам выражение для матричного элемента ОР можно записать следующим образом:

$$M_{f,i} = \frac{4\pi e^2}{(2l+1)\bar{\omega}_0} \int_0^\infty r^2 dr \int r_1^2 dr_1 X_l(r, r_1) f_{1,4}(r) f_{2,3}(r_1), \quad (6)$$

где $f_{i,j}$ — произведение радиальных составляющих соответствующих волновых функций;

$$X_l(r, r_1) = \frac{r^l}{r_1^{l+1}} \quad \text{при } r_1 > r, \quad X_l(r, r_1) = \frac{r_1^l}{r^{l+1}} \quad \text{при } r > r_1. \quad (7)$$

Как мы уже говорили, матричный элемент ОР для перехода в непрерывный спектр (6) может быть представлен в виде двух слагаемых, отвечающих двум процессам ОР: беспороговому (M_1) и квазипороговому (M_2): $M = M_1 + M_2$ [9,12].

Беспороговый процесс ОР.

$$M_1 = \frac{4\pi e^2}{3\bar{\omega}_0} \int r^2 f_{2,3}(r) I_{1,4}(r) dr, \quad (8)$$

где

$$I_{1,4} = \int_0^\infty r_1^2 X_l(r, r_1) f_{1,4}(r_1) dr_1.$$

Так как при БП процессе $k_4 \gg k_1$, разлагая интеграл в ряд по малому параметру и оставляя только члены линейные по V_c/E_g V_v/E_g , получаем выражение для матричного элемента.

В рамках первого порядка теории возмущений вероятность БП процесса ОР можно записать как

$$G_1 = \frac{2\pi}{h} \int |M_1|^2 \delta(E_i - E_f) dk_f. \quad (9)$$

Подставляя M_1 в (9) и интегрируя по k_f для вероятности ОР получаем

$$G_1 \propto \frac{e^4}{\bar{\omega}_0^2} \frac{h^3 \gamma^4}{E_g^5} \frac{k_c^2}{k_h^2} \left(\frac{V_c}{E_g} \right)^2 \frac{1}{R^7 \langle k_f \rangle}. \quad (10)$$

Здесь $k_c(k_1, k_2)$ — импульс электрона в КТ; $k_h(k_3)$ — импульс дырки; $k_f(k_4)$ — импульс возбужденного электрона. Это выражение хорошо описывает зависимость вероятности беспорогового процесса ОР при условии $k_c R > 1$.

Квазипороговый процесс ОР. Этот процесс связан с ограничением области перекрытия волновых функций объемом КТ. Это в соответствии с принципом неопределенности Гейзенберга ведет к замене δ -функции в законе сохранения квазиимпульса функцией, стремящейся к ней в пределе $R \rightarrow \infty$. При выполнении условия $k_4^2 \gg k_3^2$ можно считать, что $J_1(k_4, r)$ быстро меняется по сравнению с $J_1(k_3, r)$, тогда интеграл можно разложить по малому параметру k_3/k_4 . Тогда в [6] войдет произведение четырех функций Бесселя и матричный элемент M_2 при больших R пропорционален величине

$$M_2 \propto \frac{\sin(k_4 - k_3)R}{k_4 - k_3}. \quad (11)$$

В результате для вероятности КП процесса получаем

$$G_2 \propto \frac{e^4}{\omega_0^2} \frac{h^3 \gamma^4}{E_g^5} \frac{k_c^2}{k_h^2} \frac{k_h^4}{R^5 \langle k_f \rangle} \frac{\sin^2(k_f - k_h)R}{(k_f - k_h)^2}. \quad (12)$$

В пределе $R \rightarrow \infty$ последний множитель дает δ -функцию, умноженную на радиус КТ:

$$\frac{\sin^2(k_4 - k_3)R}{(k_4 - k_3)^2} \rightarrow \frac{\pi R}{2} \delta(k_4 - k_3).$$

Точные вычисления коэффициента ОР проводились численными методами. Для наглядности в работе приведены асимптотические приближения коэффициента ОР при больших и малых значениях радиуса КТ. Вычисления, представленные выше, проводились для больших значений аргумента ($kR \gg 1$). Для малых значений радиуса КТ необходимо использовать асимптотические приближения бесселевых функций при малых значениях аргумента.

Оба матричных элемента M_1 и M_2 при малых радиусах КТ отражают беспороговый характер процессов ОР. Однако механизмы, приводящие к несохранению импульса в M_1 и M_2 , различны. В M_1 несохранение связано с рассеянием носителей на гетерограницах, в то время как для M_2 причиной нарушения закона сохранения квазиимпульса является

ограничение объема интегрирования по r областью КТ, что приводит к появлению функции вида $\sin(kR)/k$ вместо $\delta(k)$. Величина M_1 определяется значениями волновых функций и их производных на гетерограницах, при этом $M_1 \rightarrow 0$ при $R \rightarrow \infty$. В M_2 при $R \rightarrow \infty$, напротив, появляется δ -функциональный вклад и он переходит в обычный матричный элемент ОР для однородного полупроводника.

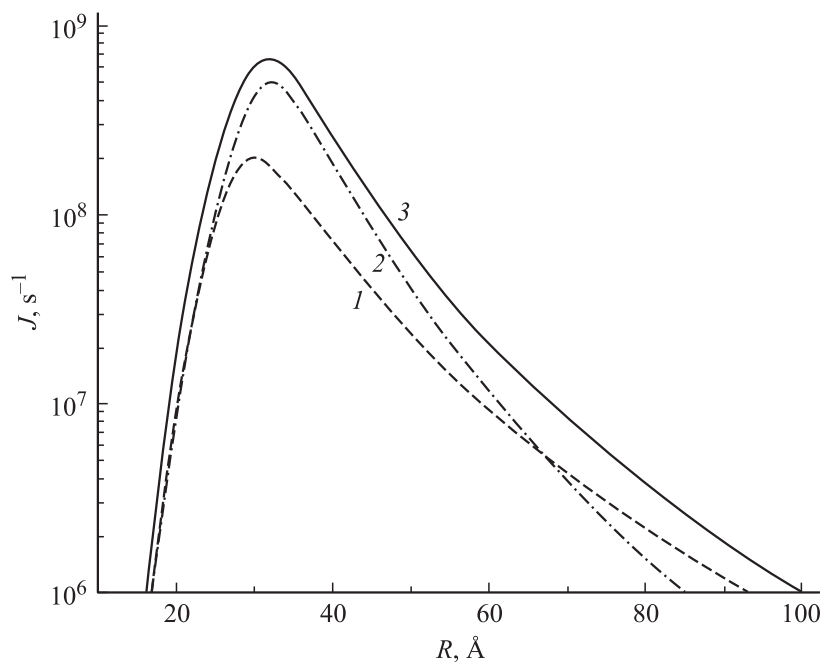
Как мы можем видеть из уравнения (13), вероятность процесса ОР является сильно осциллирующей функцией, это сказывается на том, что матричный элемент M_2 превращается в 0 при некоторых значениях $(k_f - k_h)R$. Усреднение осцилляций вероятности ОР дает гладкую зависимость от радиуса КТ

$$G_2 \propto \frac{\pi e^4}{2\omega_0^2} \frac{h^3 \gamma^4}{E_g^5} \frac{k_c^2}{k_h^2} \frac{k_h^4}{R^5 \langle k_f \rangle}. \quad (13)$$

Итак, получено, что КП и БП коэффициенты слабо зависят от температуры и тем самым определяют слабую температурную зависимость суммарного Оже-коэффициента.

Необходимо отметить, что в КТ локализованное электронное состояние имеет место быть, только начиная с определенного значения радиуса КТ R_{\min} , очевидным образом при $R < R_{\min}$, коэффициенты ОР равны нулю.

Результаты численного расчета. Для численного анализа рассмотрим однослойный массив InAs/GaAs КТ. В расчетах были использованы следующие значения параметров структуры: $E_{g(eff)} = 1.28$ eV, $V_c = 0.094$ eV, $V_v = 0.056$ eV, $\omega = 12.68$, $m_c = 0.023m_0$; $m_h = 0.41m_0$. На рисунке представлена зависимость суммарного коэффициента ОР $G = G_1 + G_2$ для СНСС-процесса от радиуса КТ R при температуре $T = 300$ К. Зависимость вероятности ОР от радиуса КТ состоит из трех участков: 1) нарастание вероятности ОР при увеличении радиуса КТ; 2) резко выраженный максимум при радиусе КТ ~ 30 Å; 3) спад вероятности ОР при больших значениях радиуса КТ. БП коэффициент ОР G_1 имеет более резкую зависимость от радиуса КТ, чем коэффициент G_2 для КП процесса. При больших радиусах КТ коэффициент G_1 убывает с ростом R как R^{-7} , а G_2 убывает как R^{-6} . В любом случае, даже после перехода к трехмерному случаю (умножением на R^6), G_1 остается убывающей функцией радиуса КТ. Поэтому БП процесс может быть преобладающим только для КТ достаточно малого



Зависимость: 1 — для беспорогового, 2 — для квазипорогового, 3 — для суммарного коэффициентов процессов Оже-рекомбинации в квантовых точках от радиуса.

радиуса. В пределе $R \rightarrow \infty$ квазипороговый механизм ОР переходит в пороговый процесс ОР для объемных полупроводников и значение квазипорогового коэффициента ОР, умноженное на квадрат объема КТ ($G_2 R^6$), стремится к объемному значению коэффициентов ОР C_{3D} [9,12].

Максимальное значение, которого достигает коэффициент ОР G , составляет $0.6 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ при радиусе КТ $\sim 30 \text{ \AA}$, что сравнимо с вероятностью излучательной рекомбинации [25]. Полученный результат имеет большую важность с точки зрения применения КТ в приборных структурах, поскольку слабые вариации характерного размера ансамбля КТ могут оказывать резкое влияние на эффективность канала безызлучательной рекомбинации, связанного с процессом ОР.

Выводы. Проведенное нами исследование показало, что в гетероструктурах с квантовыми точками основной вклад в коэффициент ОР вносят квазипороговый и беспороговый механизмы ОР. Таким образом, процесс ОР в квантовых точках оказывается сравним по эффективности с ОР в квантовых ямах и усиленным по сравнению с однородным полупроводником.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 04-02-16786, 04-07-90148 и 06-02-17318).

Список литературы

- [1] *Абакумов В.Н., Перель В.И., Ясиевич И.Н.* Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках. СПб.: Изд-во ПИЯФ РАН, 1997.
- [2] *Agrawal G.P., Dutta N.K.* Long-Wavelength Semiconductor Lasers. Van Nostrand Reinhold, N.Y., 1993.
- [3] *Quantum Well Lasers* / Ed. by P.S. Zory, Jr. Academic Press, Inc., 1993.
- [4] *Beattie A.R., Landsberg P.T.* // Proc. Roy. Soc. 1959. A249. P. 16.
- [5] *Гельмонт Б.Л.* // ЖЭТФ. 1978. Т. 75. С. 536.
- [6] *Гельмонт Б.Л., Соколова З.Н.* // ФТП. 1982. Т. 116. С. 1670; *Гельмонт Б.Л., Соколова З.Н., Ясиевич И.Н.* // ФТП. 1984. Т. 18. С. 1803; *Гельмонт Б.Л., Соколова З.Н., Халфин В.Б.* // ФТП. 1987. Т. 29. С. 2351.
- [7] *Haug A.* // J. Phys. C: Sol. St. Phys. 1983. V. 16. P. 4159.
- [8] *Takehima M.* // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. P. 2039.
- [9] *Зегря Г.Г., Полковников А.С.* // ЖЭТФ. 1998. Т. 113. С. 1491.
- [10] *Ran J.L.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 3977.
- [11] *Зегря Г.Г., Харченко В.А.* // ЖЭТФ. 1992. Т. 101. С. 327.
- [12] *Polkovnikov A.S., Zegrya G.G.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 4039.
- [13] *Dyakonov M.I., Kachorovskii V.Yu.* // Phys. Rev. B. 1989. V. 49. P. 17 130.
- [14] *Evtikhiev V.P., Kudryashov I.V., Tokranov V.E., Zegrya G.G.* // 23rd Intern. Symposium on Semiconductors (ISCS-23). St. Petersburg, Russia, 23–27 September. 1996. Inst. Phys. Conf. Ser. N 155. P. 795.
- [15] *Deppe D.G., Huffaker D.L., Zou Z., Park G., Shchekin O.B.* // IEEE J. Quant. Electron. 1999. V. 35. P. 1238.
- [16] *Ghosh S., Bhattacharya P., Stoner E., Singh J., Jiang H., Nuttinck S., Laskar J.* // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 79. P. 722.
- [17] *Chepic D.I., Efros A.L., Ekimov A.I., Ivanov M.G., Kharchenko V.A., Kudriavtsev I.A., Yazeva T.V.* // J. Luminescence. 1990. V. 47. P. 113.
- [18] *Efros A.L., Rosen M.* // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. P. 1110.
- [19] *Kharchenko V.A., Rosen M.* // J. Luminescence. 1996. V. 70. P. 158.

- [20] Зегря Г.Г., Полковников А.С. // Тез. докл. 2-й Росс. конф. по физике полупроводников. 1996. Т. 1. С. 95.
- [21] Dogonkine E.B., Golovach V.N., Polkovnikov A.S., Pozdnyakov A.V., Zegrya G.G. // 8th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology. 2000. P. 399.
- [22] Новиков И.И., Гордеев Н.Ю., Максимов М.В., Шерняков Ю.М., Семенова Е.С., Васильев А.П., Жуков А.Е., Устинов В.М., Зегря Г.Г. // ФТП. 2005. Т. 39. С. 507.
- [23] Marko I.P., Andreev A.D., Adams A.R., Krebs R., Reithmaier J.P., Forchel A. // IEEE Select. Topics Quant. Electron. 2003. V. 9. P. 1300.
- [24] Kane E.O. // J. Phys. Chem. Sol. 1957. V. 1. P. 249; Суриц Р.А. // ФТП. 1986. Т. 20. С. 2008.
- [25] Асрян Л.В., Суриц Р.А. // ФТП. 2004. Т. 38. С. 3.