

Особенности температурной зависимости фотолюминесценции сверхрешеток квантовых точек CdTe/ZnTe

© В.С. Багаев, Е.Е. Онищенко

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

E-mail: evgeny@lebedev.ru

Проведено исследование температурной зависимости люминесценции сверхрешеток квантовых точек CdTe/ZnTe (многослойных структур с квантовыми точками) с различной толщиной барьерного слоя ZnTe. Показано, что тушение люминесценции с ростом температуры существенно зависит от толщины барьерного слоя ZnTe. Особое внимание уделяется обсуждению температурной зависимости люминесценции структуры с наименьшей толщиной слоя ZnTe, в которой существуют кластеры упорядоченно расположенных квантовых точек. Линия люминесценции туннельно-связанных квантовых точек, появляющаяся в этой структуре, показывает необычное температурное поведение — аномально большой сдвиг положения максимума линии и быстрое тушение люминесценции с ростом температуры.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 03-02-16854, 02-02-17392), гранта поддержки ведущих научных школ (НШ-1923.2003.2) и комиссии РАН по работе с молодежью.

1. Упругие напряжения играют определяющую роль в процессе спонтанного формирования полупроводниковых квантовых точек (КТ) в системе материалов с сильно различающимися постоянными решетки. При росте многослойных структур напряжения ответственны за формирование упорядоченных массивов КТ; они влияют на форму и электронную структуру КТ. В этом отношении интересны свойства многослойных структур КТ CdTe/ZnTe. Особенность данной гетеропары состоит в том, что скачок потенциала в валентной зоне практически полностью определяется упругими напряжениями, обусловленными различием постоянных решетки двух материалов. Без учета напряжений скачок потенциала в валентной зоне составляет не более десяти процентов от разницы ширины запрещенных зон [1]. Это дает дополнительную возможность управлять электронным спектром структуры (например, менять тип зонной диаграммы), изменяя распределение упругих напряжений за счет вариации параметров структуры (материала буферного слоя, толщины барьерных слоев и т. д.).

2. Исследованные сверхрешетки квантовых точек (СРКТ) CdTe/ZnTe выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs (100). На подложку наносился буферный слой CdTe толщиной $4.5 \mu\text{m}$, на который затем наращивалась СРКТ, состоящая из 200 слоев CdTe с номинальной ростовой толщиной 2.5 монослоя, разделенных барьерными слоями ZnTe определенной толщины (12, 25 и 75 монослоев — структуры В12, В25 и В75 соответственно). Исследования с помощью просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения показали, что в подобных структурах отдельный слой КТ представляет собой слой твердого раствора $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$, в котором присутствуют КТ — области (островки) с повышенным содержанием кадмия диаметром 6–10 nm и толщиной до 2 nm. Было установлено, что при толщине барьерного слоя ZnTe менее 25 монослоев в СРКТ появляется корреляция в

расположении КТ в соседних слоях, а также в плоскости слоя; наблюдалось коррелированное расположение КТ на протяжении до 6–7 слоев в направлении роста и до 6 островков в латеральном направлении [2]. Наряду с такими кластерами упорядоченно расположенных КТ в тех же образцах существуют области, где не наблюдается корреляции в расположении КТ. В спектре фотолюминесценции (ФЛ) СРКТ с достаточно малой толщиной барьерного слоя наряду с линией излучения „изолированных“ КТ (под этим термином будем понимать островки CdTe, не имеющие близко расположенных соседей в примыкающих слоях КТ) появляется дополнительная, более длинноволновая линия излучения, обусловленная присутствием связанных в квантовомеханическом смысле КТ.

3. Измерения спектров ФЛ проводились в температурном диапазоне 5–200 K при стационарном возбуждении аргоновым лазером, работающим в режиме генерации отдельных линий (4880 Å, 5145 Å), а также He–Cd лазером (4416 Å). Плотность мощности возбуждения варьировалась от 1 mW/cm^2 до 100 W/cm^2 . Также были проведены измерения спектров ФЛ при комнатной температуре. Спектр анализировался двойным монохроматором ДФС-24 с предельным разрешением не хуже 0.1 Å .

4. В отличие от структур с отдельными слоями КТ CdTe/ZnTe, в которых латеральная миграция экситонов практически отсутствует [3], в СРКТ латеральная миграция экситонов имеет место, что выражается в уширении линий ФЛ с ростом температуры. Сдвиг максимума линии излучения в структурах В75 и В25, так же как и сдвиг максимума линии излучения изолированных КТ в структуре В12, с хорошей точностью воспроизводит температурное изменение ширины запрещенной зоны ZnTe [4], что имеет место и для структур с отдельными слоями КТ. Существенно иная картина наблюдается в случае линии излучения туннельно-связанных КТ в структуре В12 (рис. 1), которая показывает аномально

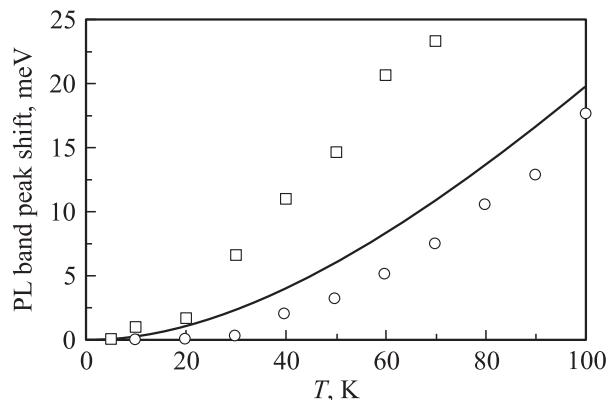


Рис. 1. Сдвиг максимума линии люминесценции изолированных КТ (кружки) и туннельно-связанных КТ (квадраты). Сплошной линией показано изменение ширины запрещенной зоны ZnTe.

большой сдвиг максимума линии ФЛ с ростом температуры — при повышении температуры с 5 до 50 К смещение максимума (15 meV) в 2.5 раза превышает изменение ширины запрещенной зоны ZnTe в этом температурном диапазоне (6 meV).

Аномальный сдвиг максимума линии люминесценции в определенном температурном диапазоне часто наблюдается в структурах с КТ и квантовыми ямами (см., например, [5,6] и ссылки в них). Экситоны могут перемещаться в плоскости слоя КТ (или в плоскости квантовой ямы с флуктуациями толщины), совершая туннельные переходы между КТ (локальными минимумами потенциала в квантовой яме). Такие переходы сопровождаются испусканием (поглощением) фононов; при низких температурах миграция происходит преимущественно с потерей энергии. С ростом температуры помимо роста вероятности перехода непосредственно в более глубокие состояния появляется также возможность перехода в более глубокое состояние через „промежуточное“ (более высокоэнергетичное) состояние, в которое экситон может перейти с поглощением фонона. Таким образом, с ростом температуры становится возможен перенос экситонов из менее глубоких в более глубокие локализованные состояния (например, из КТ меньшего размера в КТ большего размера).

В литературе рассматриваются и другие механизмы, ответственные за аномальный длинноволновый сдвиг максимума линии ФЛ в структурах с КТ ростом температуры. Так, в работе [7], посвященной исследованию температурной зависимости люминесценции КТ CdSe/ZnSe, предполагается, что аномальный сдвиг максимума связан не с переходами между различными КТ, а с переходами между различными состояниями в пределах КТ (островка); существование таких состояний может быть обусловлено сложной топологической структурой островков. Необходимо отметить, что КТ CdSe/ZnSe во многих отношениях напоминают исследуемые КТ CdTe/ZnTe: слой КТ представляет собой слой твердого раствора $Zn_{1-x}Cd_xSe$, в котором присутствуют

островки с повышенным содержанием кадмия размером в плоскости слоя 5–10 nm и толщиной 1.5–3 nm. Однако, как было отмечено выше, в исследуемых СРКТ (в том числе и для линии излучения изолированных КТ в структуре В12) не наблюдается аномального сдвига максимума, за исключением случая линии ФЛ туннельно-связанных КТ. Поэтому можно предположить, что аномальный сдвиг связан с миграцией экситонов между различными КТ в пределах кластеров упорядоченно расположенных островков.

Для структур с КТ нетипично начало перераспределения экситонов между КТ при столь низких температурах, как 20–30 К. По-видимому, характерный разброс энергий экситонных состояний в кластерах упорядоченно расположенных КТ достаточно мал, чтобы уже при столь низких температурах оказывался возможным термоактивационный транспорт экситонов между КТ.

Исследования температурной зависимости интегральной интенсивности люминесценции СРКТ CdTe/ZnTe показывают, что тушение ФЛ с ростом температуры существенно зависит от толщины барьерного слоя ZnTe. И в этом случае поведение линии излучения туннельно-связанных КТ является необычным, поэтому оно будет рассмотрено далее отдельно. Структура В75 демонстрирует относительно заметную люминесценцию даже при комнатной температуре, в то время как интенсивность люминесценции СРКТ с меньшей толщиной барьера ZnTe падает с ростом температуры существенно быстрее. Энергия активации тушения люминесценции, определенная по зависимости интегральной интенсивности люминесценции СРКТ от температуры, последовательно уменьшается по мере уменьшения толщины барьерного слоя ZnTe: от более 60 meV для структуры В75 до менее 30 meV для линии ФЛ изолированных КТ в структуре В12 (рис. 2). В то время как полученное для СРКТ В75 значение энергии активации 60 meV сопоставимо с тем, что наблюдалось ранее для структур с одиночными слоями КТ CdTe/ZnTe со схожими номинальными ростовыми толщинами слоя CdTe [3],

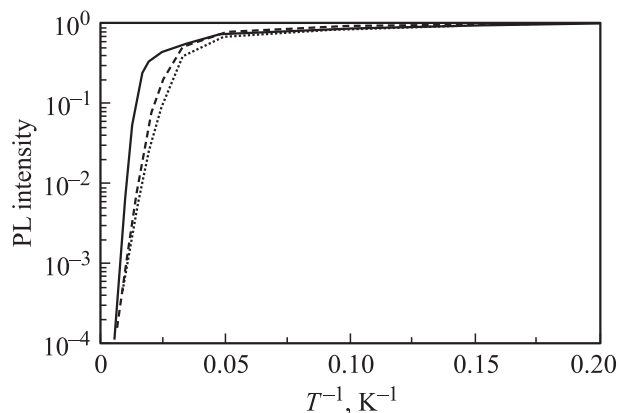


Рис. 2. Зависимость интегральной интенсивности люминесценции структур В75 (сплошная линия), В25 (штриховая линия) и линии излучения изолированных КТ в структуре В12 (точки) (нормировано на интенсивность излучения при 5 К).

значения энергии активации порядка 30 meV нетипичны для структур с одиночными слоями КТ.

Столь существенное уменьшение энергии активации можно связать с изменением картины распределения упругих напряжений в СРКТ по мере уменьшения толщины барьерного слоя ZnTe. Проведенный нами ранее анализ спектров ИК-отражения структур В12, В25 и В75 показал, что при большой толщине барьерных слоев ZnTe упругие напряжения сосредоточены в слоях $Zn_{1-x}Cd_xTe$, а для СРКТ с малой толщиной барьера имеет место более сложная картина распределения упругих напряжений [8]. В структуре В75 (как и в структурах с одиночными слоями КТ) слой $Zn_{1-x}Cd_xTe$ (включая собственно КТ) испытывают двусное сжатие, а барьерные слои ZnTe практически не напряжены, что и определяет относительно большую глубину потенциальной ямы для тяжелой дырки в КТ. В структурах В25 и В12 слои ZnTe сильно растянуты толстым буферным слоем CdTe и слоями $Zn_{1-x}Cd_xTe$, а слои $Zn_{1-x}Cd_xTe$ напряжены в меньшей степени и соответственно глубина потенциальной ямы для тяжелой дырки существенно уменьшается. Тушение люминесценции КТ с ростом температуры обусловлено термическим выбросом носителей заряда из КТ и их последующей безызлучательной рекомбинацией. Поскольку основная часть разницы ширины запрещенных зон ZnTe и CdTe (0.8 eV), как было отмечено выше, приходится на зону проводимости, величина энергии активации определяется глубиной потенциальной ямы для дырки, а не для электрона.

На рис. 3 показаны спектры люминесценции структуры В12 при различных температурах. Относительная интенсивность линии излучения туннельно-связанных КТ растет при повышении температуры до 40 К, при увеличении же температуры до 80 К линия практически полностью исчезает из спектра. В структурах с отдельными слоями КТ CdZn/ZnTe обычно наблюдается обратная ситуация — чем больше длина волны излучения (и соответственно чем более сильно локализованы в КТ носители заряда), тем медленнее происходит тушение люминесценции с ростом температуры [3].

Объяснить наблюдаемую аномалию можно с учетом зонной диаграммы структур CdTe/ZnTe, а также того факта, что исследуемые СРКТ выращены на толстом буферном слое CdTe. Вследствие особенности зонной диаграммы CdTe/ZnTe глубина потенциальной ямы для электронов определяется в основном составом материала ямы и барьера, а для дырок упругими напряжениями. Поэтому большая длина волны излучения не обязательно соответствует большей глубине потенциальных ям для обоих типов носителей. При определенных условиях в низкоразмерных структурах на основе CdTe и ZnTe может иметь место ситуация, когда оптический переход, обусловленный пространственно непрямым экситоном электрон-легкая дырка, имеет меньшую энергию, чем переход обусловленный пространственно прямым экситоном электрон-тяжелая дырка. Так, для обычных сверхрешеток CdTe/ $Cd_{1-x}Zn_xTe$ было показано [9], что

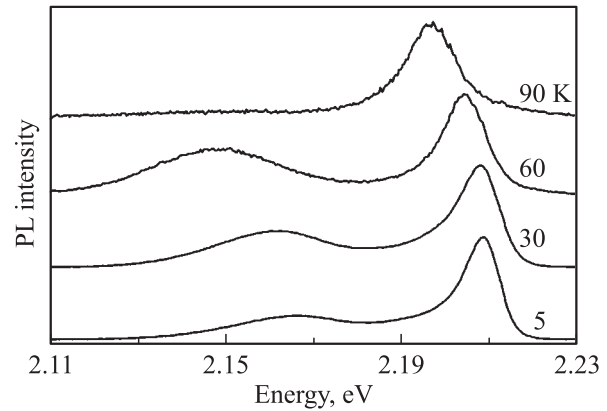


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции структур В12 при различных температурах. Для наглядности спектры нормированы и смещены по оси ординат.

за счет вариации состава буферного слоя, приводящей к перераспределению напряжений между слоями CdTe и $Cd_{1-x}Zn_xTe$, можно изменять тип зонной диаграммы структуры. Наименьшую энергию может иметь либо связанное состояние электрона и тяжелой дырки, локализованных в одном слое CdTe — структура первого типа, либо связанное состояние электрона и легкой дырки, локализованных в двух разных слоях (CdTe и $Cd_{1-x}Zn_xTe$) — структура второго типа.

В [8] высказано предположение, что вследствие наличия толстого буферного слоя CdTe люминесценция туннельно-связанных КТ в структуре В12 может быть обусловлена пространственно непрямыми экситонами (напряжения максимальны в области между двумя островками CdTe в соседних слоях КТ, что может приводить к возникновению потенциальной ямы для легких дырок в этих областях, в то время как электроны локализованы в островках CdTe). Это предположение подтверждается данными спектроскопии фотоотражения света (будет опубликовано в отдельной работе): в спектрах фотоотражения особенность, связанная с туннельно-связанными островками, практически отсутствует, в то время как особенность, связанная с изолированными островками, проявляется четко, что свидетельствует о существенно меньшей силе осциллятора экситона в первом случае по сравнению со вторым (как и следует ожидать для не прямых экситонов).

В случае кластеров упорядоченно расположенных КТ имеется совокупность упорядоченно расположенных потенциальных ям для дырки (в областях между островками CdTe в соседних слоях КТ). Ввиду того что глубина этих потенциальных ям относительно невелика, разброс в положении уровней энергии для таких ям должен быть мал. Несколько упрощая ситуацию, можно сказать, что в пределах кластера упорядоченно расположенных КТ легкая дырка локализована в области определенной КТ только за счет кулоновского взаимодействия с электроном, локализованным в глубокой потенциальной яме в КТ. Энергия связи пространственно непрямого экситона

значительно меньше энергии связи прямого экситона, а характерное время его излучательной рекомбинации существенно превышает время излучательной рекомбинации прямого экситона. В такой ситуации следует ожидать, что с ростом температуры будет происходить достаточно быстрое тушение люминесценции туннельно-связанных КТ; именно это и наблюдается в эксперименте. То что уже при незначительном повышении температуры в кластерах упорядоченно расположенных КТ начинается происходить интенсивная миграция экситонов, ведет к увеличению числа экситонов, рекомбинирующих безызлучательно [10], что также способствует тушению люминесценции туннельно-связанных КТ с ростом температуры.

5. Показано, что тушение люминесценции СРКТ CdTe/ZnTe с ростом температуры существенно зависит от толщины барьерного слоя ZnTe. Поведение линии излучения туннельно-связанных КТ, появляющейся в СРКТ с минимальной толщиной барьерного слоя ZnTe (двенадцать монослоев), является необычным — наблюдаются аномально большой сдвиг максимума линии и быстрое падение интенсивности люминесценции с ростом температуры. Такое поведение может быть объяснено в предположении, что люминесценция туннельно-связанных квантовых точек определяется пространственно непрямыми экситонами, и в кластерах упорядоченно расположенных квантовых точек уже при низких температурах имеет место достаточно интенсивная миграция экситонов.

Авторы благодарят Г. Карчевского за предоставленные образцы.

Список литературы

- [1] H. Mathie, A. Chatt, J. Allegre, J.P. Faurie. *Phys. Rev. B* **41**, 6082 (1990).
- [2] S. Mackowski, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, S. Kret, A. Szczepanska, P. Dluzewski, G. Prechtel, W. Heiss. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3884 (2001).
- [3] В.В. Зайцев, В.С. Багаев, Е.Е. Онищенко. *ФТТ* **41**, 717 (1999).
- [4] B. Langen, H. Leiderer, W. Limmer, W. Gebhardt, M. Ruff, U. Rossler. *J. Crystal Growth* **101**, 718 (1990).
- [5] S.D. Baranowski, R. Eichmann, P. Thomas. *Phys. Rev. B* **58**, 13 081 (1998).
- [6] A. Polimeni, A. Patane, M. Henini, L. Eaves, P.C. Main. *Phys. Rev. B* **59**, 5064 (1999).
- [7] A. Klochikhin, A. Reznitsky, B Dal Don, H. Priller, H. Kalt, C. Klingshirn, S. Permogorov, S. Ivanov. *Phys. Rev. B* **69**, 085 308 (2004).
- [8] В.С. Багаев, Л.К. Водопьянов, В.С. Виноградов, В.В. Зайцев, С.П. Козырев, Н.Н. Мельник, Е.Е. Онищенко, Г. Карчевский. *ФТТ* **46**, 171 (2004).
- [9] H. Tuffigo, N. Magnea, H. Marriete, A. Wassiela, Y. Merle, d'Aubigne. *Phys. Rev. B* **43**, 14 629 (1991).
- [10] I.N. Krivorotov, T. Chang, G.D. Gilliland, L.P. Fu, K.K. Bajaj, D.J. Wolford. *Phys. Rev. B* **58**, 10 687 (1998).