

Исследование квантово-каскадных структур GaAs/AlGaAs оптическими методами на основе горячей люминесценции в ближнем ИК диапазоне

© К.В. Маремьянин^{*+¶}, Д.И. Крыжков^{*+}, С.В. Морозов^{*+}, С.М. Сергеев^{*}, Д.И. Курицын^{*}, Д.М. Гапонова^{*}, В.Я. Алешкин^{*+}, Ю.Г. Садофьев^{*}

^{*} Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 Нижний Новгород, Россия

⁺ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

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

(Получена 14 апреля 2014 г. Принята к печати 22 апреля 2014 г.)

Выполнено исследование фотолюминесценции с временным разрешением квантово-каскадных структур GaAs/AlGaAs в условиях мощного импульсного возбуждения, которое дало возможность в начальные моменты времени после возбуждения наблюдать особенности на спектре фотолюминесценции, соответствующие как переходам между основными, так и между возбужденными состояниями двух туннельно-связанных ям, которые не видны при интегральных измерениях спектров фотолюминесценции. Показано, что высокий уровень накачки приводит к сильному разогреву электронного газа в начальный момент времени, что и позволяет наблюдать межзонные переходы не только между основными, но и между возбужденными состояниями. Характерное время остывания неравновесных носителей составляло ~ 125 пс.

1. Введение

Исследованию межзонной фотолюминесценции (ФЛ) и кинетики ее релаксации в гетеросистеме GaAs/AlGaAs посвящено большое количество работ (см., например, [1,2]). Как правило, исследовались гетероструктуры с одиночными квантовыми ямами (КЯ) или массивом КЯ GaAs/AlGaAs, разделенных туннельно-непрозрачными барьерами [3,4]. В настоящее время ведутся активные исследования по созданию и исследованию квантовых каскадных лазеров (ККЛ) терагерцового диапазона (60–250 мкм) на основе гетероструктур GaAs/AlGaAs. Хорошо известно, что в таких структурах наличие туннельной прозрачности между квантовыми ямами инжекционной и активной областей одного каскада при соответствующем дизайне зонной структуры — одно из необходимых условий создания инверсии и лазерной генерации. В этом случае эффекты туннелирования между соседними ямами одного каскада могут существенно влиять на времена жизни носителей на уровнях размерного квантования в КЯ, что важно учитывать при последующем изготовлении терагерцовых ККЛ на основе таких структур. Время-разрешенные исследования ФЛ позволяют определять времена жизни носителей на основных и возбужденных состояниях в КЯ и могут быть полезны для предварительной диагностики соответствия выращенных структур расчетному дизайну. Следует отметить, что за два с лишним десятилетия работ по созданию ККЛ вопросам межзонной люминесценции структур уделялось очень мало внимания. Отчасти это обусловлено тем, что принцип работы ККЛ основан на использовании межподзонных переходов. Авторам

статьи известна лишь одна работа [5] по исследованию межзонной ФЛ в работающем ККЛ. В работе оптическими методами исследовалась зависимость электронной температуры на основных состояниях квантовых ям каскадов в зависимости от мощности оптической накачки и токовой инжекции. В работе [6] при $T = 20$ К в непрерывном режиме исследовалась межзонная катодолюминесценция структур GaAs/AlGaAs ККЛ терагерцового диапазона в отсутствие электрического смещения. Определенные значения наблюдаемых энергий оптических переходов в двух (из четырех) КЯ каскада использовались для оценки точности изготовления лазерной структуры. Авторами статьи ранее уже проводились предварительные исследования межзонной ФЛ и кинетики ее релаксации в квантово-каскадных структурах GaAs/AlGaAs [7], однако плохое разрешение полученных спектров и плохое соотношение сигнал/шум не позволило сделать окончательный вывод о механизме возникновения коротковолновой, „возбужденной“ люминесценции.

Исследованию процессов разогрева носителей заряда при оптической накачке и рассеянию энергии неравновесных носителей заряда в квантовых ямах посвящено достаточно много работ [8]. Процессы рассеяния энергии на оптических и акустических фононах, в том числе с учетом эффекта накопления фононов, изучались как в объемных полупроводниках [8,9–11], так и в квантовых ямах (см., например, [12,13]). В частности, установлено, что эффект накопления фононов приводит к уменьшению скорости рассеяния энергии [14], а также к изменению динамических свойств неравновесных носителей заряда. Модели расчета процессов электрон-фононного взаимодействия дают удовлетворительное согласие с экспериментальными данными. В данной работе также

¶ E-mail: kirillm@ipm.sci-nnov.ru

были рассмотрены результаты некоторых экспериментов по разогреву носителей заряда в квантовых ямах и исследование влияния неравновесных оптических фононов на скорость рассеяния их энергии.

2. Методика эксперимента

В данной работе представлены результаты цикла исследований спектров и кинетики релаксации межзонной ФЛ в ближнем ИК диапазоне гетероструктур GaAs/AlGaAs для ККЛ терагерцового диапазона. Была исследована структура № 750, „сконструированная“ для генерации в области 4.4 ТГц. Структура содержала двести каскадов, каждый из которых состоял из двух туннельно-связанных КЯ (рис. 1). В этом случае одна КЯ — инжектор, вторая, в которой и возникает фотон при межподзонном переходе между электронными уровнями — активная область. Период структуры составляет 40 нм, общая толщина структуры 8 мкм (рис. 1).

Исследования спектров и кинетики межзонной ФЛ проводились при температуре 4.2 К при возбуждении мощным импульсным фемтосекундным перестраиваемым лазером с диапазоном перестройки от 700 до 950 нм, частотой повторения 80 МГц, длительностью импульса 120 фс и средней мощностью до 900 мВт. Мощность оптической накачки варьировалась в диапазоне от 5 мВт до 675 мВт (диаметр пятна ~ 200 мкм). Кинетики ФЛ квантово-каскадных структур в интервале длин волн 760–810 нм с шагом 0.5 нм измерялись с помощью стрик-камеры с временным разрешением около 15 пс (при этом длина волны возбуждающего надбарьерного излучения составляла 700 нм). Для измерения спектров использовался решеточный монохроматор с разрешением до 0.3 нм, оснащенный высокочувствительной CCD

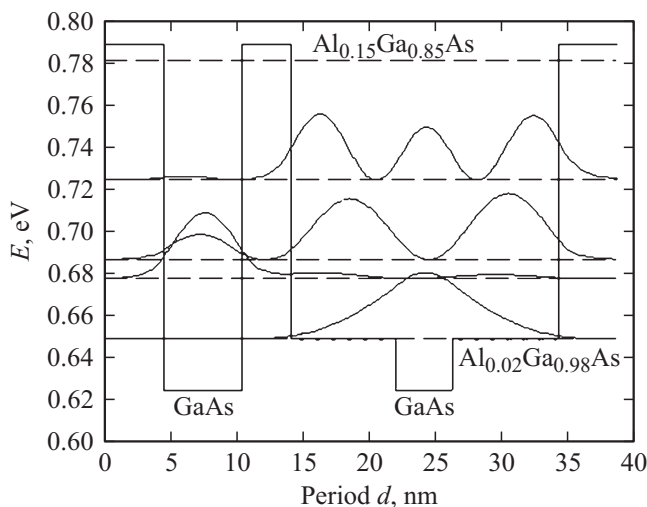


Рис. 1. Расчетный дизайн зоны проводимости одного периода квантово-каскадной структуры № 50. Пунктирными горизонтальными линиями показаны края подзон размерного квантования, сплошные кривые — квадраты волновых функций электронов.

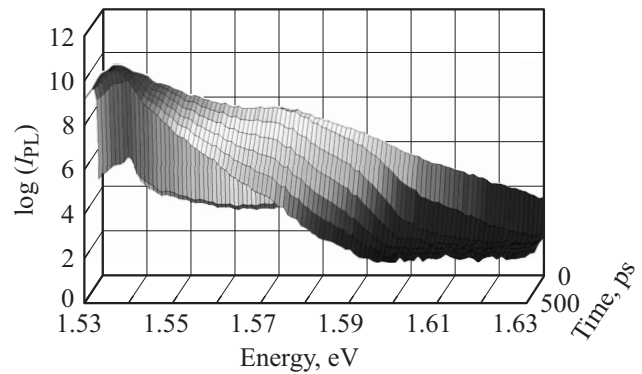


Рис. 2. Спектры ФЛ квантово-каскадной структуры № 750 в различные моменты времени от начала импульса накачки. Для удобства по оси абсцисс отложен логарифм амплитуды сигнала ФЛ. Оптическая накачка осуществлялась на длине волны 700 нм импульсами длительностью 120 фс.

камерой, которая использовалась для измерения спектров ФЛ без временного разрешения.

3. Результаты и обсуждение

В работе было проведено измерение кинетики межзонной ФЛ квантово-каскадных структур, соответствующей переходам, как между основными, так и между возбужденными электронными и дырочными уровнями (кинетика ФЛ исследовалась при надбарьерном возбуждении импульсами длительностью 120 фс, длина волны возбуждающего излучения составляла 700 нм). На основе этих данных были построены спектры излучения в различные моменты времени после прихода возбуждающего импульса. На рис. 2 представлены результаты такого построения, спектры ФЛ структуры № 750, измеренные в различные моменты времени от начала импульса накачки в интервале энергий кванта излучения 1.51–1.63 meV.

Как уже отмечалось ранее [7], исследования кинетики время-разрешенной фотолюминесценции дают возможность наблюдать особенности на кривых сигнала ФЛ, связанных с люминесценцией при переходах между подзонами, отвечающими различным уровням размерного квантования электронов и дырок в паре КЯ, которые не видны при интегральных измерениях спектров ФЛ.

При больших мощностях оптического возбуждения в начальные моменты времени после импульса накачки в спектре ФЛ наблюдается несколько линий, отвечающих переходам между уровнями электронов и дырок. Для структуры № 750 в спектре ФЛ удалось наблюдать шесть пиков, связанных с переходами между возбужденными уровнями размерного квантования (787, 784.8, 778 и 775 нм) (рис. 3, представлена коротковолновая часть спектра).

Для исследуемой структуры был выполнен расчет энергий межзонных переходов в КЯ, волновых функций электронов и дырок, а также их интегралов перекрытия

(см. таблицу). Сопоставляя спектры ФЛ с расчетом, можно идентифицировать особенности, наблюдавшиеся в спектрах ФЛ. Пик, наблюдаемый вблизи 787 нм, связан с переходом $e2-hh2$ с уровня второй подзоны размерного квантования электронов на уровень второй подзоны размерного квантования тяжелых дырок во второй квантовой яме. Пик, наблюдаемый около 784.8 нм, скорее всего, связан сразу с тремя переходами $e2-hh3$, $e3-hh2$ и $e3-hh3$, энергии которых находятся очень близко, и их не удастся разрешить с помощью методики измерений спектров, используемой в данной работе. Аналогично пики, наблюдаемые вблизи 778 и 775 нм связаны с переходами $e2-hl2$, и $e3-hl3$ соответственно. Следует отметить, что наблюдается взаимно однозначное соответствие между пиками в спектре ФЛ, возникающими в начальные моменты времени после возбуждающего импульса, и переходами между уровнями электронов и дырок, имеющими, согласно проведенному расчету, большое значение интеграла перекрытия волновых функций.

Особенности в спектре ФЛ, отвечающие переходам между возбужденными уровнями размерного квантования, исчезают через несколько десятков пикосекунд после возбуждающего импульса, что много быстрее времени рекомбинации неравновесных носителей (~ 600 пс). Таким образом, наблюдение в спектре линий, соответствующих переходам между возбужденными состояниями, не может объясняться простой „заливкой“ возбужденных состояний вследствие высокой концентрации неравновесных носителей.

В настоящей работе по коротковолновому краю линий ФЛ была определена температура электронов и дырок в

Расчитанные энергии межзонных переходов в КЯ квантово-каскадной структуры GaAs/AlGaAs № 750, а также интегралы перекрытия волновых функций электронов и дырок в КЯ

Энергии межзонных переходов в КЯ квантово-каскадной структуры GaAs/AlGaAs № 750			Интегралы перекрытия волновых функций электронов и дырок в КЯ структуры
Переходы	эВ	нм	
$E3-Eh1$	1.57199	788.7	0.001
$e2-EL1$	1.57423	787.5	0.003
$E2-Eh2$	1.57524	787	0.057
$E3-EL1$	1.57740	786	0.0001
$E2-Eh3$	1.57816	785.6	0.012
$E3-Eh2$	1.57842	785.5	0.012
$E3-Eh3$	1.58134	784	0.025
$E2-Eh4$	1.58537	782	0.005
$E3-Eh4$	1.58854	781.8	0.002
$E2-EL2$	1.5937	778	0.048
$E2-EL3$	1.59682	776.5	0.003
$E3-EL2$	1.59688	776.4	0.003
$E2-Eh5$	1.59866	775.5	0.002
$E3-EL3$	1.59999	775	0.025
$E3-Eh5$	1.60184	774	0.004
$E4-Eh1$	1.61248	770	0.001
$E4-Eh2$	1.61891	765.8	0.009

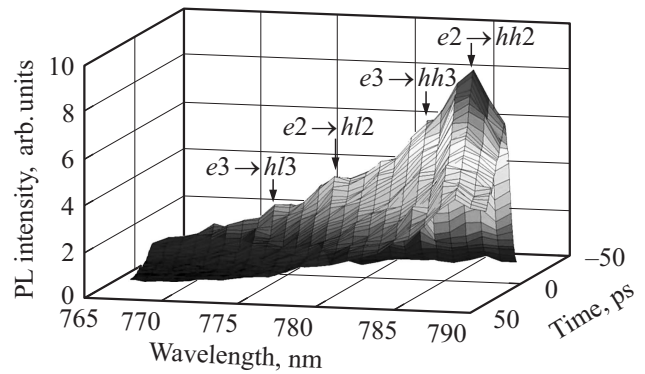


Рис. 3. Спектры ФЛ квантово-каскадной структуры № 750 в различные моменты времени от начала импульса накачки (представлена коротковолновая часть спектра). Стрелками обозначены энергии, отвечающие переходам между возбужденными состояниями.

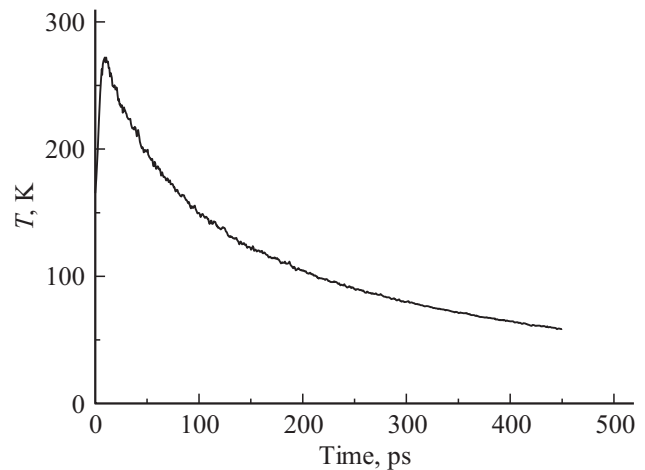


Рис. 4. Температура электронного газа в зависимости от времени после возбуждающего лазерного импульса.

зависимости от времени, прошедшего после возбуждающего импульса (рис. 4). В начальный момент температура носителей значительно выше 4.2 К и далее спадает с характерным временем ~ 125 пс. Объясняется это следующим образом, в случае высокого уровня накачки в процессе остывания носителей рождается большое количество неравновесных LO-фононов; если время жизни фононов (которое определяется временем их распада на другие типы фононов) не является слишком малым, то испущенные горячими электронами фононы накапливаются и могут влиять на процессы как эмиссии, так и поглощения фононов горячими электронами. Эффект накопления фононов уменьшает скорость релаксации энергии электронов вследствие резкого увеличения количества актов поглощения накопившихся неравновесных фононов. При высоких уровнях возбуждения в процессе энергетической релаксации горячих электронов число неравновесных LO-фононов возрастает до такой величины, что скорость релаксации энергии электронов падает на один-два порядка [14–16]. Таким образом, высокая

температура неравновесных электронов в начальный момент времени обеспечивает заметную населенность высоколежащих подзон размерного квантования, что дает возможность наблюдать межзонные переходы не только основного, но и возбужденных состояний.

Изменение температуры неравновесных носителей от времени не описывается экспоненциальной зависимостью, и определение характерного времени спада температуры довольно условно. Мы определяем эту величину как время, за которое температура уменьшается в 2 раза. Это время (~ 125 пс) много больше времени распада оптофононов (~ 10 пс), и, по видимому, остывание неравновесных носителей определяется процессами диффузии тепла из области возбуждения в глубь образца.

4. Заключение

Таким образом, в работе было выполнено исследование время-разрешенной фотолюминесценции квантово-каскадных структур GaAs/AlGaAs в условиях мощного импульсного возбуждения, которое дало возможность в начальные моменты времени после возбуждения наблюдать особенности на спектре фотолюминесценции, соответствующие как переходам между основными, так и между возбужденными состояниями двух туннельно-связанных ям, которые не видны при интегральных измерениях спектров фотолюминесценции. Высокий уровень накачки приводит к сильному разогреву электронного газа и эффекту накопления неравновесных оптофононов, замедляющих процессы остывания электронов, так как испущенные неравновесные фононы вновь поглощаются электронами и таким образом процесс релаксации энергии горячих электронов замедляется. Определенное характерное время спада температуры неравновесных носителей составляло ~ 125 пс.

Работа проводилась при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 12-02-00783 и 14-02-00635) и Российской академии наук.

Список литературы

- [1] S. Adachi. *J. Appl. Phys.*, **58**, R1 (1985).
- [2] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, B. Deveaud. *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 147403 (2005).
- [3] K.W. Sun, T.S. Song, C.-K. Sun, J.C. Wang, S.Y. Wang, C.P. Lee. *Physica B*, **272**, 387 (1999).
- [4] W.H. Knox, C. Hirliman, D.A.B. Miller, Jagdeep Shah, D.S. Chemla, C.V. Shank. *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 1191 (1986).
- [5] M.S. Vitiello, G. Scamarcio, V. Spagnolo, B.S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J.L. Reno. *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 111115 (2005).
- [6] Ю.Г. Садофьев, N. Samal, В.И. Козловский. Тр. XV Международн. Симп. „Нанофизика и наноэлектроника“ (Нижегород, Россия, 2011) т. 2, с. 522.
- [7] Д.И. Крыжков, С.В. Морозов, Д.М. Гапонова, С.М. Сергеев, Д.И. Курицын, К.В. Маремьянин, В.И. Гавриленко, Ю.Г. Садофьев. *ФТП*, **46**, 1440 (2012).
- [8] J. Shah. In: *Spectroscopy of nonequilibrium electrons and phonons*, ed. by C.V. Shank, B.P. Zakharchenya [Ser. *Modern problems in condensed matter sciences*, ed. by V.M. Agranovich, A.A. Maradudin (Elsevier Science, Netherlands, 1992) v. 35, p. 57].
- [9] L.E. Vorobjev, V.I. Stafeev, A.V. Shturbin. *Phys. Status Solidi b*, **53**, 47 (1972).
- [10] Л.Е. Воробьев, Ф.И. Осокин, В.И. Стафеев, А.В. Штурбин. *ФТП*, **8**, 1281 (1974).
- [11] Л.Е. Воробьев. *ФТП*, **8**, 1291 (1974).
- [12] K. Hess, G.J. Iafrate. In: *Hot-Electron Transport in Semiconductors*, ed. by L. Reggiani (Springer Verlag, Berlin-Heidelberg, 1985) chap. 7.
- [13] B.K. Ridley. In: *Hot Carriers in Semiconductor Nanostructures: Physics and Applications*, ed. by J. Shah (Academic Press Inc., USA, 1992) chap. 2.
- [14] R. Gupta, N. Balcan, B.K. Ridley. *Semicond. Sci. Technol.*, **7**, B274 (1992).
- [15] Л.Е. Воробьев, В.Ю. Паневин, Н.К. Федосов, Д.А. Фирсов, В.А. Шалыгин, S. Hanna, A. Seilmeier, Kh. Moumanis, F. Julien, A.E. Жуков, В.М. Устинов. *ФТП*, **46**, 119 (2004).
- [16] Л.Е. Воробьев, С.Н. Данилов, Е.Л. Ивченко, М.Е. Левинштейн, Д.А. Фирсов, В.А. Шалыгин. *Кинетические и оптические явления в сильных электрических полях в полупроводниках и наноструктурах* (СПб., Наука, 2000).

Редактор Т.А. Полянская

Investigation of quantum cascade structures GaAs/AlGaAs by optical methods based on hot luminescence in the near infrared range

K.V. Maremyanin^{*,†}, D.I. Kryzhkov^{*,†}, S.V. Morozov^{*,†}, S.M. Sergeev^{*}, D.I. Kuritsyn^{*}, D.M. Gaponova^{*}, V.Ya. Aleshkin^{*,†}, Yu.G. Sadof'ev^{*}

* Institute for Physics of Microstructures
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhniy Novgorod, Russia
† Lobachevsky State University,
603950 Nizhny Novgorod, Russia
• P.N. Lebedev Physical Institute
of the Russian Academy of Sciences,
119991 Moscow, Russia

Abstract In this work the time-resolved photoluminescence study in GaAs/AlGaAs quantum-cascade structures under high pulse excitation has been performed. In general the measurements was shown that at the initial moments after the excitation observed the features on the photoluminescence spectrum corresponding to transitions between the ground states as well as between the two excited states of the tunnel coupled wells, which are not observed at cw measurements of photoluminescence spectra. Shown, that high levels of pumping leads to strong heating of the electron gas at the initial time, and that allows us to observe not only the interband transitions between the ground states, but also between the excited states. Typical relaxation time of nonequilibrium carriers was ~ 125 ps.