

Температурные зависимости излучательного и безызлучательного времени жизни носителей в квантовых яма-точках InGaAs

© А.М. Надточий^{1,2}, И.А. Мельниченко¹, К.А. Иванов¹, С.А. Минтаиров³, Н.А. Калюжный³,
М.В. Максимов², Н.В. Крыжановская¹, А.Е. Жуков¹

¹ Национальный исследовательский университет „Высшая школа экономики“,
190008 Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет им. Ж.И. Алфёрова
Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

³ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: al.nadtochy@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 20 сентября 2022 г.

В окончательной редакции 26 сентября 2022 г.

Принята к публикации 26 сентября 2022 г.

Методами спектроскопии фотолюминесценции в непрерывном режиме и с разрешением по времени исследована гетероструктура с квантовыми яма-точками InGaAs/GaAs в диапазоне температур 10–300 К. Полученное время спада ФЛ разделено на излучательную и безызлучательную составляющие времени жизни носителей заряда. Обнаружено, что излучательное время жизни демонстрирует экспоненциальный рост с увеличением температуры, в то время как температурная зависимость безызлучательного времени жизни намного слабее.

Ключевые слова: полупроводники, квантовые яма-точки, фотолюминесценция, временное разрешение, время жизни, температурная зависимость.

DOI: 10.21883/FTP.2022.10.53961.9963

1. Введение

В последние десятилетия полупроводниковые приборы на основе квантово-размерных гетероструктур все шире используются в различных областях науки и техники. Модификация плотности состояний в активной области таких приборов позволяет улучшать их характеристики, например, уменьшать пороговую плотность тока [1] и увеличивать температурную стабильность [2], а также открывает возможности для создания принципиально новых приборов, таких как источники одиночных фотонов [3]. В связи с этим исследование физических свойств квантово-размерных гетероструктур является чрезвычайно актуальным как с практической, так и с фундаментальной точки зрения. Глубокое понимание процессов, происходящих в полупроводниковых структурах, может дать оптические исследования с высоким временным разрешением. Методами время-разрешенной фотолюминесценции (ФЛ) были достаточно детально исследованы двумерные (квантовые ямы, КЯ [4]), одномерные (квантовые проволоки [5]) и нульмерные (квантовые точки, КТ [6]) полупроводниковые наноструктуры. В то же время недавно предложенная активная среда переходной размерности (0D/2D) (так называемые квантовые яма-точки, КЯТ) этими методами изучена достаточно слабо [7].

КЯТ представляют собой квантовую яму InGaAs/GaAs с неоднородностями по составу и толщине, и также могут рассматриваться как сверхплотный массив КТ

с относительно малой энергией локализации электронов и дырок [8]. При этом они демонстрируют ряд преимуществ, присущих как 2D квантовым ямам, так и 0D квантовым точкам. В частности, КЯТ обладают большим коэффициентом усиления/поглощения. Было достигнуто рекордно высокое материальное усиление выше 10^4 см^{-1} , превышающее материальное усиление КЯ и КТ, а также модальное оптическое усиление около 75 см^{-1} на один ряд КЯТ [8,9]. В силу своих уникальных свойств [9] КЯТ представляются весьма перспективными в качестве активной области фотоэлектрических преобразователей, торцевых лазеров, волноводных фотодетекторов, микролазеров и других приборов.

В данной статье мы приводим результаты исследования КЯТ методом время-разрешенной ФЛ при различных температурах и сопоставления этих результатов с ФЛ при непрерывном возбуждении с целью детального исследования процессов излучательной и безызлучательной рекомбинации в новом типе наноструктур — КЯТ.

2. Эксперимент

Гетероструктуры были выращены методом газовой эпитаксии из металлорганических соединений на слабо ориентированных подложках GaAs. Образец для исследований состоял из барьеров $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ толщиной 50 нм, ограничивающих матрицу GaAs толщиной 600 нм

с одним слоем КЯТ в центре. КЯТ были сформированы путем осаждения $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ с эффективной толщиной 8 монослоев. Детали роста КЯТ могут быть найдены в обзоре [8].

Время-разрешенные исследования фотолюминесценции (ФЛ) были проведены с помощью оптического стробирования методом ап-конверсии. Накачка образца производилась с помощью титан-сапфирового лазера Coherent Mira 900 D в фемтосекундном режиме с длительностью лазерного импульса 120 фс (частота повторения — 76 МГц) и длиной волны излучения 780 нм. Регистрация время-разрешенного сигнала ФЛ производилась с помощью спектрометра FOG (CDP systems) с использованием нелинейного кристалла ВВО. Экспериментальная установка позволяла регистрировать ФЛ с разрешением по времени ~ 0.2 пс в диапазоне 8 нс. Оптическое разрешение в таком эксперименте мы оцениваем как 10 нм. Плотность энергии возбуждения составила ~ 10 мкДж/см², что соответствует $3 \cdot 10^{13}$ фотон/см².

Накачка образца при непрерывном возбуждении осуществлялась с помощью YAG:Nd-лазера с длиной волны 532 нм и плотностью мощности возбуждения 0.3 Вт/см². ФЛ измерялась при помощи охлаждаемого германиевого диода, сопряженного с монохроматором МДР-23. Для исследований ФЛ при пониженных температурах использовались гелиевые криостаты замкнутого цикла: Montana S-50 — в случае время-разрешенных экспериментов и Janis — для непрерывного возбуждения.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены результаты исследований кинетики основного состояния КЯТ при различных температурах (примеры спектров при импульсном и непрерывном возбуждении приведены на вставках к рис. 2). На всех кривых можно отметить участок, на котором интенсивность ФЛ практически не меняется со временем. Это можно объяснить тем, что избыточной концентрации носителей, созданной в начальный момент оптическим импульсом в матрице GaAs, требуется определенное время для захвата и рекомбинации в КЯТ. В течение данного промежутка времени скорость поступления носителей из GaAs на основное состояние КЯТ равна скорости рекомбинации. Однако матрица GaAs опустошается быстрее уровней в КЯТ и при больших временах задержки подпитка носителями основного состояния КЯТ прекращается, после чего интенсивность сигнала $\text{PL}(t)$ демонстрирует близкий к экспоненциальному спад.

В настоящей работе мы ограничились исследованием этого участка при различных температурах, так как именно он характеризует рекомбинационные процессы, происходящие в КЯТ. Путем аппроксимации с помощью зависимости $\text{PL}(t) \propto \exp(-t/\tau_{\text{PL}})$ было получено время спада сигнала ФЛ от КЯТ, τ_{PL} , которое, как было

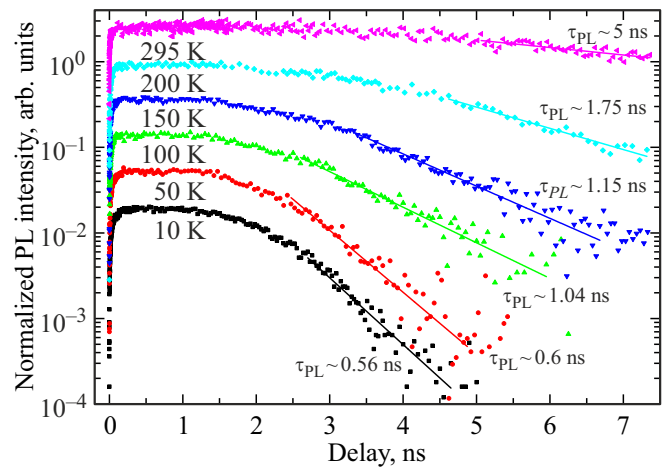


Рис. 1. Кинетика ФЛ КЯТ при различных температурах. Кривые смещены по вертикальной оси для наглядности. Также показана экспоненциальная аппроксимация участка спада ФЛ.

обнаружено, уменьшается с понижением температуры (рис. 2, а).

Как показано, например, в [4], время спада ФЛ можно разделить на излучательное τ_{R} и безызлучательное τ_{NR} времена жизни носителей заряда:

$$\frac{1}{\tau_{\text{PL}}} = \frac{1}{\tau_{\text{R}}} + \frac{1}{\tau_{\text{NR}}}, \quad (1)$$

связь между которыми может быть охарактеризована с помощью квантовой эффективности излучательной рекомбинации η :

$$\eta = \frac{\frac{1}{\tau_{\text{R}}}}{\frac{1}{\tau_{\text{R}}} + \frac{1}{\tau_{\text{NR}}}} = \frac{\tau_{\text{PL}}}{\tau_{\text{R}}}. \quad (2)$$

Соотношения (1) и (2) позволяют выразить τ_{R} и τ_{NR} следующим образом:

$$\tau_{\text{R}}(T) = \frac{\tau_{\text{PL}}}{\eta(T)}, \quad \tau_{\text{NR}}(T) = \frac{\tau_{\text{PL}}(T)}{1 - \eta(T)}. \quad (3)$$

Температурная зависимость квантовой эффективности излучательной рекомбинации может быть оценена с помощью температурной зависимости интегральной интенсивности ФЛ при невысоких плотностях возбуждения, когда заселенностью носителями матрицы GaAs и вкладом протекающих там процессов можно пренебречь. При этом можно полагать, что при низких температурах квантовая эффективность близка к 100%, так как выброс носителей в матрицу и безызлучательная рекомбинация подавлены. На рис. 2, б представлена температурная зависимость эффективности излучательной рекомбинации КЯТ, полученная описанным методом из интегральной интенсивности ФЛ в непрерывном режиме, измеренной при плотности возбуждения 0.3 Вт/см², при которой вклад GaAs в излучательную рекомбинацию отсутствует

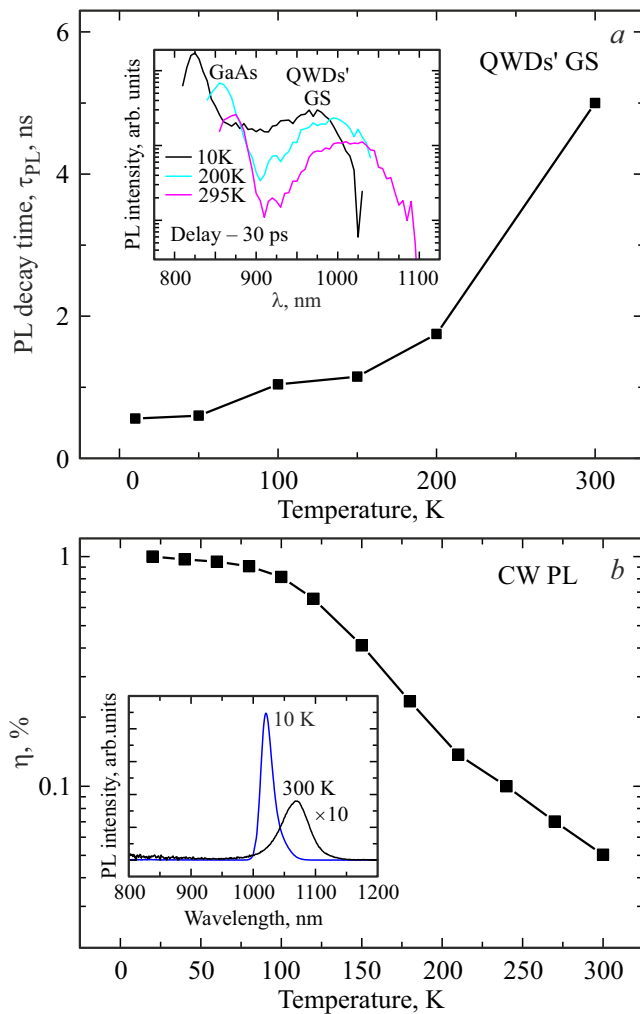


Рис. 2. *a* — температурная зависимость измеренного времени спада ФЛ, τ_{PL} (на вставке показаны примеры спектров ФЛ при импульсном возбуждении и задержке 30 пс); *b* — температурная зависимость квантовой эффективности η (на вставке показаны примеры спектров ФЛ при непрерывном возбуждении).

(см. спектры на вставке). Мы полагаем, что $\eta = 100\%$ при 10 К.

Используя зависимость η и формулы (3), мы получили значения τ_R и τ_{NR} при различных температурах (рис. 3). Отметим, что варьирование низкотемпературного значения эффективности излучательной рекомбинации $\eta(10\text{ К})$ не изменяет вида зависимости $\tau_R(T)$ и приводит только к ее смещению по вертикальной шкале, а зависимость $\tau_{NR}(T)$ незначительно изменяется в области низких температур [4]. Таким образом, несмотря на невозможность точно оценить η , мы можем сделать выводы относительно характера температурных зависимостей времен жизни в КЯТ.

Излучательное время жизни τ_R с ростом температуры $> 50\text{ К}$ демонстрирует быстрый экспоненциальный рост $\tau_R(T) \sim \exp(T/T_0)$, описываемый характеристической температурой $T_0 \sim 55\text{ К}$. Безызлучательное время

жизни носителей τ_{NR} демонстрирует значительно более слабое немонокотонное изменение в пределах порядка величины в диапазоне 50–300 К. Данный факт говорит либо о неприменимости для КЯТ распространенного подхода описания гашения люминесценции с повышением температуры за счет температурной активации безызлучательных каналов рекомбинации (см., например, [10]), либо о том, что энергия активации этих каналов велика, и данный процесс проявляется при температурах заметно выше 300 К. Тем не менее, если при температурах $< 150\text{ К}$ доминирует излучательная рекомбинация, что соответствует высокой квантовой эффективности люминесценции, то при более высоких температурах τ_{NR} становится меньше τ_R (рис. 3). Ввиду экспоненциального роста излучательного времени жизни от температуры, для того чтобы реализовать ситуацию, когда $\tau_{NR} > \tau_R$ при 300 К, потребовалось бы увеличить τ_{NR} на порядок, что подразумевает кардинальное улучшение структурного и оптического качества материала. Учитывая то, что исследуемые КЯТ использовались в активной области высокоэффективных лазеров, можно сделать вывод, что при комнатных и повышенных температурах время жизни носителей в КЯТ даже в высокосвершенных образцах будет в существенной степени определяться безызлучательной рекомбинацией.

В ранних работах по исследованию времени жизни носителей в КЯ была разработана теория рекомбинации экситона, предсказывающая линейный рост времени излучательной рекомбинации с температурой, чему было получено экспериментальное подтверждение [11,12]. Однако позднее появились сообщения про наблюдение как в КЯ [4,13], так и в квантовых проволоках [5] и в КТ [6] экспоненциального температурного роста

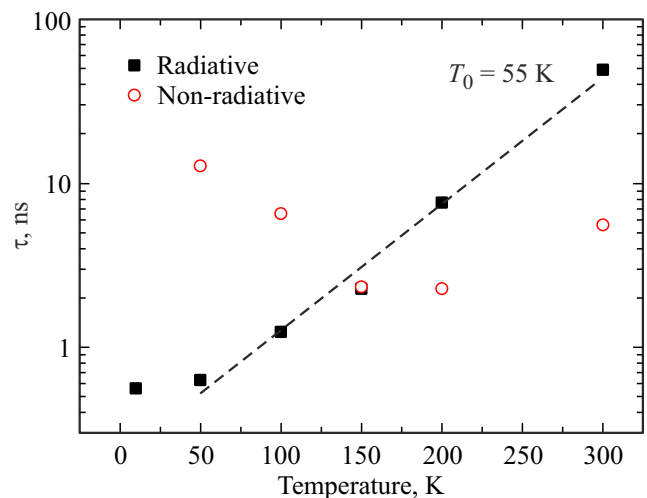


Рис. 3. Вычисленные значения характеристических времен излучательной и безызлучательной рекомбинации (τ_R и τ_{NR}) при различных температурах, а также аппроксимация зависимости излучательного времени экспоненциальной функцией с $T_0 = 55\text{ К}$.

излучательного времени жизни носителей с сопоставимым T_0 (τ_R возрастает приблизительно в ~ 10 раз на 100 К). Предложенная более комплексная теория, учитывающая вклад свободных носителей в рекомбинацию [14], также не смогла удовлетворительно описать эксперимент [4,15]. Таким образом, на данный момент не существует теоретических моделей, объясняющих экспоненциальный рост излучательного времени жизни носителей заряда в квантово-размерных структурах. Стоит также отметить, что авторы в работах [15,16] отмечают сильное влияние неоднородности и толщины КЯ или проволоки на температурную зависимость τ_R как следствие изменения степени локализации экситонов.

4. Заключение

В широком температурном диапазоне исследованы излучательная и безызлучательная составляющие времени жизни носителей заряда в структуре с КЯТ InGaAs/GaAs. Показано, что уменьшение интенсивности люминесценции с повышением температуры связано со значительным увеличением времени излучательной рекомбинации, а не с активацией каналов безызлучательной рекомбинации.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 22-72-10002). Время-разрешенные исследования выполнены при поддержке Программы фундаментальных исследований НИУ ВШЭ. М.В. Максимов и А.М. Надточий благодарят Министерство науки и высшего образования РФ (проект 0791-2020-0002).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Z. Alferov. IEEE J. Select. Top. Quant. Electron., **6**(6), 832 (2000).
- [2] O.B. Shchekin, J. Ahn, D.G. Deppe. Electron. Lett., **38**(14), 712 (2002).
- [3] P. Senellart, G. Solomon, A. White. Nature Nanotechnol., **12**(11), (2017).
- [4] M. Gurioli, A. Vinattieri, M. Colocci, C. Deparis, J. Massies, G. Neu, A. Bosacchi, S. Franchi. Phys. Rev. B, **44**(7), 3115 (1991).
- [5] D. Y. Oberli, F. Vouilloz, E. Kapon. Phys. Status Solidi A, **164**(1), 353 (1997).
- [6] O. Nasr, N. Chauvin, M. H. H. Alouane, H. Maaref, C. Bru-Chvallier, L. Sfaxi, B. Ilahi. J. Opt., **19**(2), 025401 (2017).
- [7] A.M. Nadtochiy, S.A. Mintairov, N.A. Kalyuzhnyy, M.V. Maximov, D.A. Sannikov, T.F. Yagafarov, A.E. Zhukov. Semiconductors, **53**(11), 1489 (2019).
- [8] M.V. Maximov, A.M. Nadtochiy, S.A. Mintairov, N.A. Kalyuzhnyy, N.V. Kryzhanovskaya, E.I. Moiseev, N.Y. Gordeev, Y.M. Shernyakov, A.S. Payusov, F.I. Zubov, V.N. Nevedomskiy, S.S. Rouvimov, A.E. Zhukov. Appl. Sci., **10**(3), 1038 (2020).
- [9] N.Y. Gordeev, M.V. Maximov, A.S. Payusov, A.A. Serin, Y.M. Shernyakov, S.A. Mintairov, N.A. Kalyuzhnyy, A.M. Nadtochiy, A.E. Zhukov. Semicond. Sci. Technol., **36**(1), 015008 (2021).
- [10] E.C. Le Ru, J. Fack, R. Murray. Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys., **67**(24), 1 (2003).
- [11] G.W't Hooft, M.R. Leys, H.J. Talen-v.d. Mheen. Superlat. Microstr., **1**(4), 307 (1985). DOI: 10.1016/0749-6036(85)90092-8
- [12] J. Feldmann, G. Peter, E. O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, R. J. Elliott. Phys. Rev. Lett., **59**(20), 2337 (1987).
- [13] G. Bacher, C. Hartmann, H. Schweizer, T. Held, G. Mahler, H. Nickel. Phys. Rev. B, **47**(15), 9545 (1993).
- [14] B.K. Ridley. Phys. Rev. B, **41**(17), 12190 (1990).
- [15] D.Y. Oberli, M.-A. Dupertuis, F. Reinhardt, E. Kapon. Phys. Rev. B, **59**(4), 2910 (1999).
- [16] S. Yamauchi, A. Shikanai, I. Morohashi, S. Furue, K. Komori, T. Sugaya, T. Takagahara. J. Appl. Phys., **102**(9), 094303 (2007).

Редактор Г.А. Оганесян

Temperature dependencies of radiative and nonradiative carrier lifetimes in InGaAs quantum well-dots

A.M. Nadtochiy^{1,2}, I.A. Melnichenko¹, K.A. Ivanov¹, S.A. Mintairov³, N.A. Kalyuzhnyy³, M.V. Maximov², N.V. Kryzhanovskaya³, A.E. Zhukov³

¹ National Research University Higher School of Economics, 190008 St. Petersburg, Russia

² Alferov University, 194021 St. Petersburg, Russia

³ Ioffe Institute, 194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Heterostructure with InGaAs/GaAs quantum well-dots was investigated in temperature range 10–300 K using photoluminescence spectroscopy in CW mode as well with time resolution. Obtained decay times were splitted into radiative and nonradiative components of carrier lifetime. It is found that radiative lifetime demonstrates exponential growth with temperature rise, while temperature dependence of nonradiative one is much weaker.