Температурное тушение спонтанного излучения в туннельно-инжекционных наноструктурах

© В.Г. Талалаев^{*+¶}, Б.В. Новиков^{*}, Г.Э. Цырлин[•], Н.S. Leipner[■]

* Санкт-Петербургский государственный университет, НИИ физики им. В.А. Фока,

198504 Петродворец, Россия

⁺ Max Planck Institute of Microstructure Physics,

06120 Halle, Germany

 Академический университет — научно-образовательный центр нанотехнологий Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

• Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,

190103 Санкт-Петербург, Россия

[■]Martin Luther University Halle-Wittenberg, Interdisciplinary Center of Materials Science,

06120 Halle, Germany

(Получена 13 апреля 2015 г. Принята к печати 20 апреля 2015 г.)

Измерены спектры спонтанного излучения в ближнем ИК-диапазоне 0.8-1.3 мкм от инвертированных туннельно-инжекционных наноструктур, состоящих из слоя квантовых точек InAs, покрытых слоем квантовой ямы InGaAs через барьерную прослойку GaAs разной толщины (3-9 нм). Исследована температурная зависимость (5-295 K) этого излучения как при оптическом возбуждении (фотолюминесценция), так и в режиме инжекции в p-n-переходе (электролюминесценция). Показано, что при комнатной температуре токовая накачка наиболее эффективна для инвертированных туннельно-инжекционных наноструктур с тонким барьером (менее 6 нм), когда вершины квантовых точек соединены с квантовой ямой узкими перемычками InGaAs (наномостиками). В этом случае тушение электролюминесценции при нагреве от 5 до 295 К незначительное. Фактор тушения $S_{\rm T}$ интегральной интенсивности I составил: $S_{\rm T} = I_5/I_{295} \approx 3$. На основе расширенного анализа Аррениуса обсуждаются механизмы температурной стабильности излучения инвертированных туннельно-инжекционных туннельно-инжекционных туннельно-инжекционных ваноструктур.

1. Введение

Развитие современной оптоэлектроники предполагает разработку новых светоизлучающих устройств, обладающих набором уникальных свойств: миниатюрными размерами, низким энергопотреблением, высокой яркостью спектра излучения с возможностью его настройки, температурной стабильностью и помехозащищенностью. Особое место в этом ряду занимают полупроводниковые наноструктуры на основе квантовых точек (КТ), хорошо удовлетворяющие некоторым из перечисленных выше требований [1]. Однако что касается температурной стабильности, то перспективы массива КТ в качестве активного температурно-независимого элемента оказались преувеличенными [2,3]. Поэтому в настоящее время излучение КТ со свойственным им δ -образным спектром рассматривается в приложении к излучателям одиночных фотонов, построенным на отдельных КТ [4,5].

К другому недостатку светоизлучающего массива КТ можно отнести проблему его накачки. Одна сторона этой проблемы связана с малым сечением захвата КТ при прямом возбуждении их основных состояний. С другой стороны, накачка КТ "горячими" носителями через матрицу и(или) смачивающий слой приводит к паразитному влиянию возбужденных состояний [3]. Решение этой проблемы, казалось, было найдено добавлением к массиву КТ слоя квантовой ямы (КЯ), которая размещалась в туннельной близости к слою КТ. Такие структуры получили название туннельно-инжекционных структур с КТ [6]. Туннельно-инжекционные лазеры на КТ [7] имели "прямую" последовательность слоев в направлении роста, а именно КЯ-барьер-КТ. Пространственное разделение инжектора носителей (КЯ) и наноэмиттера света (КТ) обеспечило новую степень свободы в дизайне активной области лазеров — возможность "подгонки" энергетических спектров КЯ и КТ. Туннелирование "холодных" носителей из КЯ на основное состояние КТ существенно снизило внутренние потери и диффузионную емкость, повысило быстродействие и дифференциальную эффективность лазерных диодов. Однако пороговый ток туннельно-инжекционных лазеров на КТ $(180\,A\cdot cm^{-2})~[8]$ не мог конкурировать с лазерами на КТ, срощенных со слоем КЯ (40 A \cdot см⁻² для двух периодов КТ-КЯ) [9]. Очевидно, что этот недостаток туннельно-инжекционных лазеров на КТ связан с туннельным ограничением на перенос носителей из инжектора (КЯ) в эмиттер света (КТ).

Как сообщалось ранее [10–13], мы использовали инвертированную туннельно-инжекционную наноструктуру (ИТИНС) КТ InGaAs-барьер GaAs-КЯ InGaAs. Инверсия нанослоев сохраняет все преимущества традиционной (прямой) структуры. КЯ, благодаря большому сечению захвата и ступенчатому характеру плотности состояний, по-прежнему играет роль эффективного аккумулятора носителей, а инжекция "холодных" носителей заселяет непосредственно основные состояния КТ, участвующие в излучательной рекомбинации. Проблема эффективности переноса носителей из КЯ

[¶] E-mail: vadimtalalaev@yandex.com

в КТ в таких ИТИНС была решена неожиданным образом. Инверсия нанослоев привела к возникновению квазиточечных контактов (наномостиков) между вершинами КТ и КЯ, разделенных тонким барьером. Наномостик устраняет этот барьер и ускоряет инжекцию носителей из КЯ в КТ. Тем самым снимаются ограничения на плотность потока носителей, связанные с его туннельным, экспоненциальным истощением. Такой выход за рамки квазиклассического приближения Вентцеля-Крамерса-Бриллюэна (ВКБ) позволил не только преодолеть экспоненциальное ограничение на темп туннелирования носителей из КЯ в КТ вплоть до "мгновенной" инжекции через наномостик [10,11], но и управлять числом активных КТ [14,15], что открывает путь к реализации ИТИНС-излучателя одиночных фотонов. В основе решения лежит использование атрибута любого массива КТ-дисперсии по размерам. Нами было установлено, что наномостики формируются у наиболее крупных КТ и имеют дисперсию по длине [13,14,16]. При этом короткие наномостики InGaAs (менее 2 нм) не содержат собственных дырочных состояний и не приводят к "мгновенному" переносу носителей из КЯ в КТ. В результате число активных наномостиков сокращается. Кроме того, было установлено, что короткие наномостики могут быть "выжжены" пропусканием через систему импульсного тока определенной амплитуды [14,15].

В данной работе мы исследуем эффективность ИТИНС с массивом КТ в качестве ИК-эмиттера с точки зрения температурной стабильности ее спектра спонтанного излучения.

Особенности температурной зависимости люминесценции полупроводниковых КТ систематически исследовались в связи с возможностью реализации на их основе лазеров видимого и ближнего ИК-диапазонов, работающих при комнатной температуре [17-21]. Аномалии температурной зависимости спектра люминесценции всегда являлись предметом пристального изучения [20-23]. Тем не менее интерпретация экспериментальных данных была часто противоречивой. Предметом разногласий до сих пор является, например, роль смачивающего слоя в температурной зависимости спектров излучения КТ, лежащих в соседних слоях, выращенных через барьерную прослойку [20,24]. Несмотря на всю сложность кинетической модели релаксации, захвата, перераспределения и рекомбинации носителей в массиве КТ, неизменным остается представление о температурном тушении люминесценции как о процессе термического выброса электрона и(или) дырки с основного уровня из потенциальной ямы КТ в континуум барьерного слоя [18,25–27]. В этом случае температурная зависимость интегральной интенсивности полосы излучения может быть представлена уравнением Аррениуса:

$$I(T) = \frac{I_{\rm M}}{1 + C_{\rm F} \exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right)},\tag{1}$$

где $I_{\rm M}$ — максимальная интенсивность (обычно при низкой температуре), $C_{\rm F}$ — безразмерный коэффициент,

определяемый положением уровня Ферми [28] и(или) соотношением времени жизни экситона в КТ и временем его рассеяния в барьер через интерфейс [29]. В уравнении (1) обычно пренебрегают температурной зависимостью коэффициента $C_{\rm F}$ по сравнению с экспонентой $\exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right)$. E_A — энергия активации данного состояния, т. е. энергический зазор между основным уровнем в КТ и барьером. Таким образом, анализ Аррениуса может быть мощным инструментом построения энергетической и кинетической моделей полупроводниковых наноструктур.

2. Эксперимент

Методом молекулярно-пучковой эпитаксии выращивались два типа экспериментальных ИТИНС InGaAs/GaAs с туннельной парой КТ-КЯ. Первый тип структур был предназначен для исследования фотолюминесценции (ФЛ) и содержал только полуизолирующие, специально не легированные слои. После осаждения на подложку GaAs(100) буферного слоя GaAs выращивалась ограничивающая трехпериодная сверхрешетка SL1 Al_{0.25}Ga_{0.75}As (2.5 нм)/GaAs(2.5 нм) и затем слой GaAs толщиной 20 нм. Далее температура подложки понижалась с 550 до 485°C и формировалась активная область путем последовательного напыления 2 монослоев InAs, из которых по механизму Странски-Крастанова образовывались КТ, барьерной прослойки GaAs и КЯ $In_{0.15}Ga_{0.85}As$ толщиной 11 нм (рис. 1, *a*). Толщина барьера В варьировалась от 3 до 9 нм. На завершающем этапе роста температура подложки поднималась до 550°С и выращивался верхний набор слоев, симметричный нижнему, который заканчивался прикрывающим слоем GaAs. Второй тип структур был предназначен для исследования электролюминесценции (ЭЛ). С этой целью активная область между ограничивающими сверхрешетками SL1 и SL2 оставалась нелегированной, а внешние слои легировались: буферный слой и SL1, как и сама подложка, были p-типа, а SL2 и прикрывающий контактный слой — *n*-типа. Уровень легирования составлял 5 · 10¹⁸ см⁻³. Таким образом, данный тип ИТИНС представлял собой активную і-область со слоями КТ-барьер-КЯ, встроенную в *p*-*n*-переход.

Для возбуждения инжекционной ЭЛ использовалась токовая накачка при прямом смещении на p-i-n-структуре. Методами фотолитографии и реактивного ионноплазменного травления формировалась мезаструктура M диаметром 1.4 мм, основанием которой служил буферный слой p-типа (рис. 1, b). Омические контакты наносились методом термического напыления в вакууме и формировались в процессе фотолитографии в виде плоских колец. Нижнее кольцо K_1 к слою p-типа (внешний диаметр 2.2 мм) выполнялось из эвтектики золото-цинк, верхнее кольцо K_2 к слою n-типа — на основе эвтектики золото-германий. Внутренний диаметр этого кольца (0.8 мм) формировал выходное окно L эмиттера света. Оба слоя эвтектики усиливались золотом толщиной 100 нм, после чего контакты вжигались



Рис. 1. *а* — схема построения ИТИНС на основе КТ-барьер-КЯ (справа) и КТ-наномостик-КЯ (слева). *b* — светоизлучающий диод — чип с ИТИНС в виде мезаструктуры с контактами в корпусе. Пояснения даны в тексте.

при температуре 400°С. Распайка чипа с мезаструктурой производилась золотой проволокой в корпусе ТО-39 (рис. 1, b).

Возбуждение стационарной ФЛ осуществлялось аргоновым лазером Innova-308 Coherent с длиной волны 488 нм. Плотность возбуждения составляла 18 Вт · см⁻². Для возбуждения ЭЛ использовался источник постоянного тока ITC-4005 Thorlabs. Плотность тока поддерживалась на уровне $9 \text{ A} \cdot \text{см}^{-2}$, что соответствовало плотности электрической мощности 18 Вт · см⁻². Излучение ИТИНС собиралось зеркальной оптикой на входную щель монохроматора Acton SpectraPro с фокусным расстоянием 0.5 м. После монохроматора спектр люминесценции регистрировался охлаждаемой линейной InGaAs-матрицей OMA-V (Princeton Instruments).

Для исследования температурной зависимости ФЛ и ЭЛ в диапазоне 5–295 К образцы помещались в оптический гелиевый криостат проточного типа Konti CryoVac. Точность стабилизации температуры в экспериментах составляла 0.5 К.

3. Экспериментальные результаты

Измерения ИТИНС в просвечивающем электронном микроскопе Philips CM20 показали, что КТ имеют форму усеченного конуса с основанием 180 нм, вершиной 2 нм, высотой 4 нм и содержанием индия x = 0.6. КТ лежат с плотностью $5 \cdot 10^{10} \, \mathrm{cm}^{-2}$ на смачивающем слое InAs (*WL* на рис. 1, a). Спектр низкотемпературной $\Phi \Pi$ (рис. 2) отражает рекомбинационные процессы между основными состояниями отдельных компонент ИТИНС: KT $In_0 6Ga_0 4As$ (широкая полоса *OD*, центрированная вблизи 1050 нм) и КЯ In_{0.15}Ga_{0.85}As (узкая линия QW на 910 нм). Отношение интенсивности полос I_{OD}/I_{OW} росло с уменьшением толщины B барьера GaAs от 9 до 3 нм из-за увеличения вклада туннелирования носителей из КЯ в КТ (см. вставку на рис. 2). Это отражает принцип накачки эмиттера света (КТ), заложенный в туннельно-инжекционных структурах.

Предварительно исследовались излучательные свойства референтных структур, которые были выращены только с одной из компонент: с КТ или с КЯ. Так, например, измерения ФЛ с временным разрешением 10 пс, выполненные при импульсном (100 фс) возбуждении с регистрацией на стрик-камеру Hamamatsu, показали, что время жизни экситона в КТ одиночного массива составляет $\tau_0 = 750$ пс, а в одиночной КЯ $\tau_0 = 420$ пс [10].

Из температурной зависимости спектров ФЛ референтных структур, подвергнутых анализу Аррениуса,



Рис. 2. Спектр ФЛ ИТИНС с толстым барьером (B = 8 нм) при температуре T = 5 К. На вставке — экспериментальная зависимость относительной интенсивности низкотемпературной ФЛ полос *QD* и *QW* от толщины барьера (*B*).



Рис. 3. Схемы энергетического строения структур с излучательными переходами QD, QW, HW и тепловыми выбросами E_{Ae} , E_{Ah} , E_{Ahh} для трех случаев: a — референтные КТ и КЯ или ИТИНС с толстым барьером (B > 6 нм); b и c — ИТИНС с тонким барьером (B < 6 нм) и гибридной ямой hh0: b — слабое фотовозбуждение; c — слабая токовая накачка при прямом смещении на p-n-переходе. $E_{\rm F}$ — уровень Ферми или квазиуровень Ферми для дырок в нестационарном случае слабого возбуждения.

были получены значения энергии активации основных состояний КЯ и КТ. Далее они были сопоставлены с расчетами в приближении эффективной массы для КЯ толщиной 11 нм состава x = 0.15 и КТ в виде усеченного конуса с диаметрами 180 и 2 нм, высотой 4 нм и составом x = 0.6. На основе этих результатов была построена энергетическая схема ИТИНС (рис. 3, *a*). В таблице приведены значения энергии активации E_A основных состояний для тех носителей, тепловой выброс которых определяет ход графика Аррениуса в актуальном диапазоне температур. Две первые строки таблицы относятся к референтным структурам: с одиночной КЯ (строка N_0 1) и с одиночным слоем КТ (строка N_0 2). Анализ полученных результатов представлен в следующем разделе.

Основное внимание в данной работе уделялось температурной зависимости спектра излучения ИТИНС с туннельной парой КТ-КЯ. На рис. 4 показан график Аррениуса в исходных координатах $I(T)/I_{\rm M}$ для ИТИНС с толстым барьером (B = 8 нм) для обеих компонент: КТ (QD) и КЯ (QW). Пунктирные кривые являются результатом подгонки графика Аррениуса (I) к экспериментальным данным. Следует отметить, что уравнение (1) описывает эти данные неудовлетворительно. В этой связи, как и ранее в таких случаях [28,30], в знаменатель уравнения Аррениуса была добавлена еще



Рис. 4. Температурная зависимость приведенной интегральной интенсивности $I/I_{\rm M}$ для КТ (QD) и КЯ (QW) в ИТИНС с толстым барьером (B = 8 нм): пунктирные кривые — результат подгонки по формуле (1) простого анализа Аррениуса; сплошные кривые — подгонка по формуле (2) расширенного анализа Аррениуса.

Физика и техника полупроводников, 2015, том 49, вып. 11



Рис. 5. a — спектр ФЛ ИТИНС с тонким барьером (B < 6 нм) при температуре T = 5 K. b — температурная зависимость приведенной интегральной интенсивности I/I_{M} полосы ФЛ *HW* и ее расширенный анализ Аррениуса по формуле (2).

одна экспонента с помощью которой в рассмотрение вводится дополнительный термически стимулируемый процесс, конкурирующий с основным. Уравнение Аррениуса приобретает вид:

$$\frac{I(T)}{I_{\rm M}} = \frac{N}{1 + C_{\rm F} \exp\left(-\frac{E_{\rm A}}{kT}\right) + C_{\rm F}' \exp\left(-\frac{E_{\rm A}'}{kT}\right)}.$$
 (2)

Конкурирующий процесс характеризуется энергией активации $E'_{\rm A}$ и коэффициентом $C'_{\rm F}$. Числитель N является подгоночным параметром, близким к 1.

Описание экспериментальной температурной зависимости интегральной интенсивности компонент ИТИНС расширенным выражением Аррениуса (2) оказалось весьма точным. На рис. 4 такая подгонка демонстрируется сплошными кривыми для обеих компонент ИТИНС с барьером B = 8 нм, а извлеченные при этом значения E_A , C_F и S_T занимают строки № 3 и 4 в таблице. В этой связи расширенный анализ Аррениуса был использован нами для всех случаев, представленных в таблице. Отметим, что конкурирующий процесс, улучшающий подгонку графика Аррениуса к экспериментальным данным, характеризовался во всех случаях с фотовозбуждением малыми значениями энергии активации $E'_A = 8-24$ мэВ и коэффициента $C'_F = 4-7$ и рассматривался нами в соответствии с [31] как тепловая диссоциация экситона внутри данной компоненты ИТИНС.



Рис. 6. a — спектры ЭЛ при токовой накачке ИТИНС с тонким барьером (B < 6 нм), встроенной в p-n-переход: I - T = 5 К, 2 - T = 295 К. b — температурная зависимость приведенной интегральной интенсивности $I/I_{\rm M}$ полосы ЭЛ *HW* и ее расширенный анализ Аррениуса по формуле (2).

Значения энергии активации E_A (мэВ) основных состояний, коэффициентов C_F и фактора тушения S_T , полученные из расширенного анализа Аррениуса (2) для различных компонент ИТИНС, определяющих температурнуе тушение соответствующих полос в спектре излучения. В скобках приведены значения E_A (мэВ), полученные теоретически как результат решения уравнения Шредингера

N₂	Компонента	E_{Ae}	$E_{\mathrm{A}h}$	$C_{\mathrm{F}e}$	$C_{\mathrm Fh}$	$S_{\rm T} = I_5 / I_{295}$
1	Полоса ФЛ QW — одиночная КЯ	(95)	90 (90)	_	300	22
2	Полоса ФЛ <i>QD</i> — одиночный слой КТ	210 (219)	(295)	362000	_	12
3	Полоса ФЛ QW — КЯ в составе ИТИНС с барьером $B = 8$ нм	(95)	55 (90)	_	16 800	1500
4	Полоса ФЛ QD — КТ в составе ИТИНС с барьером $B = 8$ н	199 (219)	(295)	23 500	—	11
5	Полоса ФЛ HW — гибридная КЯ в составе ИТИНС с барьером $B = 4$ нм	_	104 (105)	—	12100	1363
6	Полоса ЭЛ HW — гибридная КЯ в составе ИТИНС с барьером $B = 4$ нм	_	64 (105)	_	25	3

При переходе к более тонким барьерам (B < 6 нм) спектр ФЛ ИТИНС меняется, как показано на рис. 5, *a*, для B = 4 нм. Интенсивность полосы *QW* становится пренебрежимо малой. Новая полоса *HW* появляется в позиции 1020 нм. Температурное тушение этой полосы и расширенный анализ Аррениуса представлены на рис. 5, *b*. Полученные в результате подгонки значения энергии активации E_A и параметры C_F и S_T для компоненты *HW* внесены в строку № 5 таблицы.

Токовая накачка при прямом смещении на ИТИНС с B = 4 нм, встроенной в p-n-переход, модифицирует спектр излучения, как показано на рис. 6, *a* для T = 5 К (кривая 1). Компонента *QD* исчезает из спектра ЭЛ. При повышении температуры до комнатной спектр ЭЛ существенно не меняется (кривая 2 на рис. 6, *a*). При анализе температурной зависимости полосы *HW* на рис. 6, *b* обращает на себя внимание первоначальный рост интенсивности *HW* в температурном интервале 5-100 К. Как следует из таблицы (строка № 6), несмотря на снижение барьера при токовой накачке (64 мэВ вместо 104 мэВ при оптической накачке) фактор тушения ЭЛ становится рекордно низким $S_{\rm T} = 3$, как и коэффициент $C_{\rm F}$, равный 25.

Обсуждение температурной зависимости

Значения параметров, полученные из анализа Аррениуса для изолированной КЯ (см. таблицу, строка № 1), соответствуют простой физической модели. Энергия активации дырочного состояния хорошо описывается приближением эффективной массы ($E_{Ah} = 90$ мэВ). Из значения коэффициента $C_{\rm F} = \tau_0/\tau_S = 300$ и времени жизни экситона в КЯ ($\tau_0 = 420$ пс) можно оценить время рассеяния дырки на интерфейсе InGaAs/GaAs как $\tau_S = 1.4$ пс, что соответствует литературным данным [32].

Для КТ в изолированном массиве тепловое тушение ФЛ определяется термической активацией электрона с энергией $E_{Ae} = 210$ мэВ (см. таблицу, строка № 2). Незначительное отличие этого значения от теоретического (219 мэВ) может быть отнесено скорее к неточности расчетной модели, чем к понижению барьера смачивающим слоем InAs. В соответствии с более глубокой потенциальной ямой для КТ по сравнению с КЯ фактор тушения $S_{\rm T}$ полосы QD почти в 2 раза меньше, чем для одиночной QW. Большой коэффициент $C_{\rm F} = 36\,200$ с учетом времени жизни экситона в КТ ($\tau_0 = 750$ пс) приводит к выводу о быстром рассеянии электронов на интерфейсе КТ-матрица (десятки фемтосекунд) изза шероховатости самого интерфейса, образованного фасетками КТ.

Строки № 3 и 4 таблицы показывают, что происходит с параметрами компонент, определяемыми из температурного тушения ФЛ, при их объединении в систему ИТИНС КТ-барьер-КЯ, если толщина барьера не обеспечивает эффективного туннелирования носителей из КЯ в КТ (B = 8 нм). Видно, что энергия активации электронов из КТ и особенно дырок из КЯ уменьшается до величин $E_{Ae} = 199$ мэВ и $E_{Ah} = 55$ мэВ, т.е. высота барьера для обеих компонент понижается. Возможной причиной этого может быть возникновение термостимулированной разности потенциалов на барьерной прослойке из-за теплового выброса носителей разного знака: электронов из КТ и дырок из КЯ. В результате кулоновского взаимодействия потенциальные барьеры для электронов и дырок понижаются. Поскольку вероятность туннелирования сквозь барьер в квазиклассическом приближении ВКБ описывается экспоненциальной функцией

$$W \propto \exp\left[-\frac{2B}{\hbar}\sqrt{2m_{\rm B}^*E_{\rm A}}
ight]$$
 (3)

 $(m_B^* -)$ эффективная масса носителей заряда в барьере), этот эффект неизбежно приводит к туннельному перебросу легких электронов из КЯ в КТ, т.е. система начнет работать в режиме ИТИНС. Именно этим можно объяснить повышение фактора тушения S_T для КЯ почти в 5 раз и незначительное уменьшение S_T для КТ. Одновременно с этим существенно возрастает коэффициент $C_F = 16\,800$ для КЯ. Как показывают данные электронной микроскопии, рельеф массива КТ репродуцируется через барьер GaAs на стенки КЯ, придавая им шероховатость.

Прежде чем перейти к обсуждению данных по температурному тушению спонтанного излучения в ИТИНС с тонким барьером, напомним результаты, полученные нами ранее для таких структур [10-14]. Было установлено, что в ИТИНС с тонким барьером GaAs (B < 6 нм), разделяющим слой КТ и КЯ InGaAs, между вершинами КТ и КЯ формируются наномостики — узкие (2 нм) каналы, обогащенные индием. Наномостики образуются у вершин КТ под влиянием упругих напряжений, вызывающих диффузию атомов индия в процессе роста. Наномостики приводят к локальному исчезновению барьера и, как следствие этого, к аномально быстрому переносу носителей из инжектора (КЯ) в эмиттер света (КТ). Время переноса при наличии наномостиков отклоняется от квазиклассической зависимости ВКБ. Тем самым снимаются ограничения на плотность потока носителей, связанные с его туннельным, экспоненциальным истощением (3).

С точки зрения энергетической структуры в такой ИТИНС образуется единая область размерного квантования — композитная, или гибридная, потенциальная яма с общей системой уровней. Для описания такой системы потребовалось решение методом объемных элементов трехмерного уравнения Шредингера с граничными условиями Дирихле в цилиндрической системе координат [33]. Расчеты были проведены для структуры: КТ In_{0.6}Ga_{0.4}As в виде усеченного конуса (18 и 2) × 4 нм — наномостик InGaAs диаметром 2 нм с градиентом состава по индию 0.6 > x > 0.15 — КЯ In_{0.15}Ga_{0.85}As. Длина наномостика варьировалась в пределах 1-10 нм. Расчетные дляные для E_{Ahh} приведены в таблице (строки № 5 и 6).

Поскольку КТ и наномостик занимают лишь незначительную часть гибридной системы, ее энергетическая структура определяется в основном параметрами исходной "невозмущенной" КЯ InGaAs толщиной 11 нм. Однако тот теоретический факт, что наномостик длиной более 2 нм имеет собственные дырочные состояния, "возмущает" дырочную подсистему. Плотность основного гибридного состояния hh0 в валентной зоне распределяется вдоль оси роста z по всей толщине ИТИНС.

В отличие от тяжелых дырок собственные электронные состояния в наномостике длиной менее 10 нм невозможны [16]. Поэтому электронная подсистема слабо реагирует на появление наномостика. Система электронных уровней гибридной ямы соответствует исходным компонентам КТ и КЯ с той лишь разницей, что потенциальный барьер между ними отсутствует. В этих условиях имеет место "мгновенная" инжекция носителей из КЯ в КТ. Если рассматривать волновые функции конечных состояний, переходы между которыми могли бы проявиться в спектре излучения системы КТ-наномостик-КЯ, то из-за быстрой релаксации электронов на основной уровень КТ [32] наиболее вероятным является переход между основными состояниями электронов КТ e0 и дырочным состоянием hh0 гибридной ямы, как показано на рис. 3, b. Излучательной рекомбинации между этими состояниями как раз и обязана новая полоса HW в спектрах спонтанного излучения ИТИНС с барьером B = 4 нм (рис. 5, *a* и 6, *a*). Сила осциллятора такого перехода велика, так как обеспечено перекрытие волновых функций электронов в КТ и дырок в гибридной яме.

Мы полагаем, что при низкой температуре в ИТИНС с наномостиками экситон из КЯ в КТ переносится как целое, без промежуточного состояния непрямого экситона, поскольку выполняется условие сильного связывания двух потенциальных ям [34]. Время переноса, извлеченное из анализа профилей ФЛ с временным разрешением, сокращается при этом до аппаратного предела временного разрешения [11]. При повышении температуры и переходе к одночастичному переносу изза тепловой диссоциации экситонов эта ситуация должна сохраняться, если длина наномостика обеспечивает наличие в нем собственных состояний, т.е. образуется гибридная яма. В остальных случаях, когда нет наномостиков (B > 6 нм) или наномостики слишком короткие (В < 2 нм), транспорт носителей может замедлиться. Из-за разницы в скорости туннелирования электронов и тяжелых дырок перенос возбуждения из КЯ в КТ лимитируется дырками. Этот эффект известен для двойных КЯ под названием "фильтрация эффективными массами" [35]. Несмотря на то что возникающее кулоновское взаимодействие понижает барьер, из-за большой массы дырок, которая превосходит приведенную массу экситона, перенос возбуждения в ИТИНС без гибридной ямы тормозится.

Рассмотрим, как сказывается повышение температуры на излучательных свойствах ИТИНС с гибридной ямой. Сохраняются ли достоинства спонтанного излучения ИТИНС с тонким барьером при комнатной температуре? Зависимость относительной интенсивности ФЛ полос *QD* и *QW* от толщины барьера (см. вставку на рис. 2) коррелирует с зависимостью скорости переноса экситонов из КЯ в КТ при низких температурах [13]. К этому приводит конкуренция процессов туннелирования из КЯ и излучательной рекомбинации внутри КЯ ($\tau_0 = 420$ пс). Сокращение времени переноса τ_T с уменьшением толщины барьера *В* дает выигрыш в интенсивности актуального перехода. Однако с нагревом ИТИНС до комнатной температуры появляется дополнительный процесс, конкурирующий с переносом — тепловой выброс носителей из гибридной ямы.

Как следует из графика Аррениуса для ИТИНС с барьером *B* = 4 нм (строка № 5 таблицы), интенсивность ФЛ падает более чем на 3 порядка (фактор $S_{\rm T} = 1363$) при том, что энергия активации $E_{Ahh} = 104$ мэВ соответствует расчетной (105 мэВ), а коэффициент $C_{\rm F} = 12\,100$, т.е. $E_{\rm A}$ выше, а $C_{\rm F}$ ниже, чем в случае толстого барьера В = 8 нм, когда нет наномостиков, и гибридная яма не образуется (строка № 3). Этот феномен может означать лишь то, что использованный нами формализм Аррениуса для гибридной ямы КТ-наномостик-КЯ не работает. Это касается, однако, только коэффициента $C_{\rm F}$, предыдущий смысл которого ($C_{\rm F} = \tau_0/\tau_S$) при мгновенной инжекции $(\tau_{\rm T} \rightarrow 0)$ теряется, поскольку $\tau_{\rm T} < \tau_{\rm S}$. В этом случае коэффициент С_F определяется не соотношением времен жизни и рассеяния экситона, а положением термоактивируемого уровня относительно уровня Ферми [28].

Практический вывод, который может быть сделан из вышеизложенного, заключается в следующем. Для получения эффективного спонтанного излучения в ИТИНС с наномостиками при комнатной температуре необходимо сблизить уровень Ферми (в неравновесном случае квазиуровень Ферми для дырок) с основным дырочным уровнем *hh*0 гибридной ямы. При невысокой плотности электрической накачки (18 Вт · см⁻²) этого можно достичь в двух типах структур: p-i-p и p-i-n (или n-i-p). Первый тип нами не исследовался, поскольку не допускает накачку инжекцией. Второй тип был рассмотрен нами ранее [11] при низкой температуре и оптической накачке. Встроенное электрическое поле *p*-*n*-перехода приводит к трапециевидным барьерам и эффективно понижает их высоту. "Выметание" носителей из потенциальных ям не оставляет шанса на высокую интенсивность ФЛ такой структуры при комнатной температуре.

В данной работе нами исследовался вариант, наиболее значимый для светоизлучающих устройств, а именно температурное тушение ЭЛ в условиях инжекции при прямом смещении на p-i-n-структуре с гибридной ямой. Результаты расширенного анализа Аррениуса полосы ЭЛ *HW* получены для ИТИНС с барьером B = 4 нм и приведены на рис. 6, *b* и в таблице (строка № 6). Сближение уровня Ферми и основного дырочного уровня гибридной ямы проиллюстрировано на схеме рис. 3, *c*. Полученные параметры C_F и S_T имеют рекордно низкие значения: коэффициент $C_F = 25$, а фактор гашения $S_T = 3$. Несмотря на частичное понижение барьера при токовой накачке ($E_{Ahh} = 64$ мэВ), интенсивность спонтанного излучения в ИТИНС при комнатной температуре остается высокой.

Более того, зарегистрировано усиление полосы *HW* с ростом температуры до 100 К (рис. 6, *b*). Для опи-

сания данного эффекта в температурной зависимости интенсивности по формуле (2) анализ Аррениуса приписывает отрицательное значение коэффициенту $C'_{\rm F} = -0.5$, а энергии активации — значение $E'_{\rm A} = 3$ мэВ. Это означает, что конкурирующий процесс, введенный в расширенный анализ Аррениуса (2), "подпитывает" дырками уровень hh0 гибридной ямы, а не истощает его, как это было при фотовозбуждении. Очевидно, данный эффект является атрибутом токовой накачки, так же как исчезновение из спектра полосы QD, и может быть объяснен захватом дырок с соседних с ним уровней гибридной ямы при протекании через нее тока прямого смещения. "Увлечение" дырок током при высокой плотности уровней в валентной зоне гибридной ямы ($E'_{\rm A} = 3 \,{\rm M}$ эВ) препятствует релаксации в основное дырочное состояние КТ.

5. Заключение

В данной работе исследовано температурное тушение люминесценции в ИТИНС для толстых (B > 6 нм) и тонких (B < 6 нм) барьеров между слоями КТ и КЯ InGaAs, помещенных в изолирующую матрицу GaAs или в *i*-область p-i-n-перехода GaAs. Методом расширенного анализа Аррениуса установлены основные параметры, определяющие температурную зависимость интегральной интенсивности спонтанного излучения. Показано, что наибольшую температурную стабильность имеет ЭЛ ИТИНС с тонким барьером в p-i-n-переходе. В этом случае токовая накачка гибридной ямы КТ-наномостик-КЯ дает изолированную узкую полосу *HW*, которая сохраняется в спектре ЭЛ вплоть до комнатной температуры с небольшим фактором затухания $S_T = I_5/I_{295} \approx 3$.

Авторы благодарны Ю.Б. Самсоненко, А.И. Хребтову и В. Fuhrmann за изготовление структур, Н.Д. Захарову и Р. Werner за измерения электронной микроскопией, J.W. Tomm за помощь в исследованиях с временным разрешением, P.N. Racec за участие в теоретических расчетах.

Данная работа поддержана бюджетным грантом 11.39.317.2014 Санкт-Петербургского государственного университета. Образцы были выращены при поддержке Российского научного фонда (проект № 14-12-00393).

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Chichester, John Wiley & Sons, 1999).
- [2] V. Tokranov, M. Yakimov, A. Katsnelson, M. Lamberti, S. Oktyabrsky. Appl. Phys. Lett., 83, 833 (2003).
- [3] А.Е. Жуков. Лазеры на основе полупроводниковых наноструктур (С.-Петербург, Элмор, 2007).
- [4] Zh. Yuan, B.E. Kardynal, R.M. Stevenson, A.J. Shields, C.J. Lobo, K. Cooper, N.S. Beattie, D.A. Ritchie, M. Pepper. Science, 295, 102 (2002).

- [5] A. Lochmann, E. Stock, O. Schulz, F. Hopfer, D. Bimberg, V.A. Haisler, A.I. Toropov, A.K. Bakarov, A.K. Kalagin. Electron. Lett., 42, 774 (2006).
- [6] L.V. Asryan, S. Luryi. Sol. St. Electron., 47, 205 (2003).
- [7] P. Bhattacharya, S. Ghosh. Appl. Phys. Lett., 80, 3482 (2002).
- [8] P. Bhattacharya, S. Fathpour. Appl.Phys.Lett., 86, 153109 (2005).
- [9] В.М. Устинов, А.Е. Жуков, Н.А. Малеев, А.Р. Ковш. Патент РФ № 2205468 (2002).
- [10] V.G. Talalaev, J.W. Tomm, N.D. Zakharov, P. Werner, U. Gösele, B.V. Novikov, A.S. Sokolov, Y.B. Samsonenko, V.A. Egorov, G.E. Cirlin. Appl. Phys. Lett., **93**, 031105 (2008).
- [11] В.Г. Талалаев, А.В. Сеничев, Б.В. Новиков, Ј.W. Tomm, Т. Elsaesser, Н.Д. Захаров, Р. Werner, U. Gosele, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. ФТП, 44, 1084 (2010).
- [12] В.Г. Талалаев, А.А. Тонких, Н.Д. Захаров, А.В. Сеничев, J.W. Tomm, P. Werner, Б.В. Новиков, L.V. Asryan, B. Fuhrmann, J. Schilling, H.S. Leipner, А.Д. Буравлев, Ю.Б. Самсоненко, А.И. Хребтов, И.П. Сошников, Г.Э. Цырлин. ФТП, 46, 1492 (2012).
- [13] В.Г. Талалаев, А.В. Сеничев, Б.В. Новиков, Ј.W. Tomm, L.V. Asryan, Н.Д. Захаров, Р. Werner, А.Д. Буравлев, Ю.Б. Самсоненко, А.И. Хребтов, И.П. Сошников, Г.Э. Цырлин. Вестн. СПбГУ, Сер. 4, 3, 34 (2012).
- [14] В.Г. Талалаев, Г.Э. Цырлин, Л.И. Горай, Б.В. Новиков, J.W. Tomm, P. Werner, B. Fuhrmann, J. Schilling, P.N. Racec. ФТП, 48, 1209 (2014).
- [15] V.G. Talalaev, G.E. Cirlin, B.V. Novikov, B. Fuhrmann, P. Werner, J.W. Tomm. Appl. Phys. Lett., **106**, 013 104 (2015).
- [16] A.V. Senichev, V.G. Talalaev, J.W. Tomm, B.V. Novikov, P. Werner, G.E. Cirlin. Phys. Status Solidi (RRL), 5, 385 (2011).
- [17] S. Fafard, S. Raymond, G. Wang, R. Leon, D. Leonard, S. Charbonneau, J.L. Merz, P.M. Petroff, J.E. Bowers. Surf. Sci., 361/362, 778 (1996).
- [18] S. Sanguinetti, M. Henini, M. Grassi Alessi, M.Capizzi, P. Frigeri, S. Franchi. Phys. Rev. B, 60, 8276 (1999).
- [19] C. Lobo, N. Perret, D. Morris, J. Zou, D.J.H. Cockayne, M.B. Johnston, M. Gal, R. Leon. Phys. Rev. B, 62, 2737 (2000).
- [20] A. Patane, A. Polimeni, P.C. Main, M. Henini, L. Eaves. Appl. Phys. Lett., **75**, 814 (1999).
- [21] H.Y. Liu, B. Xu, Q. Gong, D. Ding, F.Q. Liu, Y.H. Chen, W.H. Jiang, X.L. Ye, Y.F. Li, Z.Z. Sun, J.F. Zhang, J.B. Liang, Z.G. Wang. J. Crystal Growth, **210**, 451 (2000).
- [22] K. Mukai, M. Sugawara. Appl. Phys. Lett., 74, 3963 (1996).
- [23] M.B.Smirnov, V.G. Talalaev, B.V. Novikov, S.V. Sarangov, N.D. Zakharov, P. Werner, U. Gösele, J.W. Tomm, G.E. Cirlin. Phys. Status Solidi B, 247, 347 (2010).
- [24] H. Lee, W. Yang, P.C. Sercel. Phys. Rev. B 55, 9757 (1997).
- [25] Y. Tang, D.H. Rich, I. Mukhametzhanov, P. Chen, A. Madhukar. J. Appl. Phys., 84, 3342 (1998).
- [26] A. Polimeni, A. Patance, M. Henini, L. Eaves, P.C. Main. Phys. Rev. B, 59, 5064 (1999).
- [27] Y.T. Dai, J.C. Fan, Y.F. Chen, R.M. Lin, S.C. Lee, H.H. Lin. J. Appl. Phys., 82, 4489 (1997).
- [28] A.D. Lucio, L.A. Cury, F.M. Matinaga, J.F. Sampaio, A.A. Bernussi, W. de Carvalho. J. Appl. Phys., 86, 537 (1999).
- [29] G. Bacher, H. Schweizer, J. Kovac, A. Forchel. Phys. Rev. B, 43, 9312 (1991).
- [30] В.Г. Талалаев. Вестник СПбГУ Сер. 4, 4, 20 (2001).
- 7* Физика и техника полупроводников, 2015, том 49, вып. 11

- [31] D.I. Lubyshev, P.P. Gonzalez-Borrero, E. Marega, Jr., E. Petitprez, N. La Scala, P. Basmaji. Appl. Phys. Lett., 68, 205 (1996).
- [32] Z.M. Wang. Self-Assembled Quantum Dots (N.Y., Springer, 2008) ch. 5.
- [33] P.N. Racec, L.I. Goray. WIAS Preprint № 1898 (2013); http://wias-berlin.de/publications/wias-publ/index.jsp?lang=1.
- [34] F.C. Michl, R. Winkler, U. Roessler. Sol. St. Commun., 99, 13 (1996).
- [35] D.H. Levi, D.R. Wake, M.V. Klein, S. Kumar, H. Morkos. Phys. Rev. B, 45, 4274 (1992).

Редактор А.Н. Смирнов

Temperature quenching of spontaneous emission in tunnel injection nanostructures

V.G. Talalaev^{*+}, B.V. Novikov⁺, G.E. Cirlin[●], H.S. Leipner[■]

* Saint Petersburg State University,

V.A. Fock Institute of Physics,

198504 Petrodvorets, Russia

+ Max Planck Institute of Microstructure Physics,

06120 Halle, Germany

Academic University —

Nanotechnology Research and Education Centre

of Russian Academy of Sciences,

194021 Saint Petersburg, Russia

- Institute for Analytical Instrumentation
- of Russian Acedemy of Sciences,
- 190103 Saint Petersburg, Russia

 Martin Luther University Halle-Wittenberg, Interdisciplinary Center of Materials Science, 06120 Halle, Germany

Abstract The spontaneous emission spectra are measured in near IR range $0.8-1.3\,\mu m$ from inverted tunnel injection nanostructures (ITINS), containing a layer of InGaAs quantum dots and a layer of InGaAs quantum well, separated by GaAs barrier spacer with different thickness (3-9 nm). The temperature dependence (5-295 K) of such emission both under optical excitation (photoluminescence) and by injection in p-n-junction (electroluminescence) is investigated. It is shown, that the current pumping at room temperature is most efficient for ITINS with thin barrier (less than 6 nm), when the quantum dot apexes are connected with quantum well by the narrow InGaAs straps (nanobridges). In this case, the electroluminescence quenching by the warming from 5K up to 295K is insignificant. A quenching factor $S_{\rm T}$ of integrated intensity I comes to $S_{\rm T} = I_5/I_{295} \approx 3$. The extended Arrhenius analysis is used to discuss the processes, which lead to the temperature stability of emission from ITINS.