

Экситонная динамика в квантовой яме CdTe/CdZnTe*

© А.В. Михайлов¹, А.С. Курдюбов¹, Е.С. Храмцов¹, И.В. Игнатъев¹, Б.Ф. Грибакин²,
S. Cronenberger², D. Scalbert², М.Р. Владимирова², R. André³

¹ Лаборатория Оптики спина, Санкт-Петербургский государственный университет,
199034 Санкт-Петербург, Россия

² Laboratoire Charles Coulomb, Université de Montpellier,
F-34095 Montpellier, France

³ Université Grenoble Alpes, CNRS, Institut Néel,
38000 Grenoble, France

E-mail: mikhailovav@yandex.ru

Поступила в Редакцию 25 августа 2023 г.

В окончательной редакции 20 сентября 2023 г.

Принята к публикации 27 сентября 2023 г.

В широкой квантовой яме CdTe/CdZnTe экспериментально исследованы энергетическая структура и динамика экситонов методом накачки-зондирования со спектральным разрешением. В спектрах отражения обнаружены несколько экситонных резонансов, которые идентифицированы с помощью численного решения трехмерного уравнения Шредингера. Показано, что в динамике фотоиндуцированных изменений экситонных резонансов в спектрах отражения доминирует изменение нерадиационного уширения, тогда как смещение энергий экситонов и уменьшение их сил осцилляторов мало. Это изменение нерадиационного уширения вызвано резервуаром темных экситонов с большим волновым вектором в плоскости квантовой ямы, которые связаны с состояниями светлых экситонов. В индуцированной импульсами накачки динамике нерадиационного уширения экспериментально наблюдались три компоненты: (i) нарастание сигнала на временах в десятки пикосекунд и биэкспоненциальное затухание на масштабах (ii) одной и (iii) десяти наносекунд. Предложены возможные механизмы заполнения и опустошения резервуара темных экситонов, ответственные за это поведение.

Ключевые слова: экситоны, квантовые ямы, CdTe/CdZnTe, динамика экситонных резонансов.

DOI: 10.61011/FTP.2023.07.56837.23k

1. Введение

Экситоны в квантовых ямах (КЯ) демонстрируют замечательные оптические свойства. В структурах высокого качества они проявляются в виде интенсивных линий фотолюминесценции (ФЛ) при нерезонансном оптическом возбуждении. В спектрах ФЛ наблюдается сложная структура линий, изученная в работах [1–3]. Особенности ФЛ в очень узких квантовых ямах изучались в работе [4]. Установлено, что эта структура линий обусловлена наличием в КЯ трионов и связанных на донорах экситонов. Их спиновые и когерентные свойства изучены в работах [5–8].

В спектрах отражения также наблюдается ряд ярких эффектов, в частности интересный эффект магнитоиндуцированной гиротропии [9]. Спектральные особенности обусловлены в основном эффектами размерного квантования. Эти эффекты связаны с нарушением правил отбора по волновому вектору для оптических переходов вследствие наличия гетерограниц квантовая яма/барьерный слой. Вместе с тем для экситонов, распространяющихся в плоскости КЯ, волновой вектор является хорошим квантовым числом. Соответственно, когда волновой вектор экситона (K_x) превосходит вол-

новой вектор света в слое КЯ (K_c), экситон не может излучить или поглотить фотон. Такие экситоны обычно называют неизлучающими или темными экситонами.

Для широко изученных КЯ высокого качества на основе GaAs показано, что время жизни темных экситонов достигает десятков наносекунд [10–12]. Это намного дольше, чем радиационное время жизни светлых экситонов с $K_x < K_c$, которое обычно в 1000 раз меньше [13]. Соответственно, темные экситоны накапливаются в неизлучающем резервуаре до плотностей на порядки больше, чем плотности светлых экситонов. Этот резервуар сильно влияет на оптические свойства и динамику светлых экситонов.

В этой работе мы изучаем энергетический спектр и динамику экситонов в широкой (шириной $L = 47$ нм) КЯ CdTe/Cd_{1-x}Zn_xTe с небольшим содержанием Zn в барьерных слоях, $x = 0.05$. Это структура типа I для экситонов с тяжелой дыркой (электрон и дырка находятся в одном слое) и типа II для экситонов с легкой дыркой (электрон находится в КЯ, а легкая дырка — в барьерном слое) [1,2,14–16]. Таким образом, динамика экситонов с тяжелой дыркой в этой КЯ может отличаться от КЯ из GaAs.

Экситонная динамика в КЯ CdTe/Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te изучена с помощью время-разрешенной спектроскопии отражения с фотовозбуждением. Эксперименты показыва-

* XXVII Международный симпозиум „Нанопизика и наноэлектроника“, Н. Новгород, 13–16 марта 2023 г.

ют, что основным эффектом резонансного оптического возбуждения является нерадиационное уширение экситонных резонансов, в то время как индуцированные накачкой сдвиг энергий экситона и уменьшение силы осциллятора пренебрежимо малы. Мы интерпретируем это уширение как вызванное взаимодействием фоторожденных экситонов с другими квазичастицами, такими как свободные носители заряда, другие экситоны, трионы, фононы. Рассеяние фоторожденных экситонов друг на друге может оказывать влияние только на очень коротких временах (< 10 пс) из-за быстрой экситонной рекомбинации. Рассеяние также включает чистую дефазировку (оптическую декогеренцию) на масштабах 10 пс, которую обычно исследуют в экспериментах по четырехволновому смешиванию [17–20]. В этой статье нас интересует оставшийся механизм — экситонное рассеяние, связанное с резервуаром темных экситонов, которое происходит на масштабе 1–10 нс. В этот процесс также вовлечены акустические фононы. Он является неупругим рассеянием с эффективностью, зависящей от температуры (фононной плотности) и плотности населенности резервуара темных экситонов.

2. Оптическая характеристика образца

Исследуемая структура была выращена методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МВЕ) на подложке $\text{Cd}_{0.96}\text{Zn}_{0.04}\text{Te}$ с кристаллографической ориентацией (001). Она содержит слой с КЯ CdTe толщиной 47 нм между барьерными слоями $\text{Cd}_{0.95}\text{Zn}_{0.05}\text{Te}$. Толщина барьерного слоя $L_b = 1064$ нм, верхнего — $L_t = 102$ нм. Толщины всех слоев тщательно контролировались (с точностью 1%) во время процесса роста. Градиент толщин также очень мал ($< 1\%$). Толщина верхнего барьерного слоя была выбрана так, чтобы получить конструктивную интерференцию световых волн, отраженных от поверхности образца и слоя КЯ. Благодаря этому самый нижний экситонный резонанс в спектре отражения имеет форму пика. Из-за сильного рассогласования постоянных решеток для кристаллов CdTe и ZnTe (6% [21]) в структуре происходит вызванное механическими напряжениями расщепление состояний тяжелой и легкой дырок [22,23]. В результате состояния экситонов с тяжелой дыркой отщеплены от состояний экситонов с легкой дыркой на величину порядка ≈ 15 мэВ. Это позволяет нам в этой работе изучать только экситоны с тяжелой дыркой.

Чтобы получить сведения об энергетическом спектре тяжелых экситонов в изучаемой структуре, были использованы две стандартные экспериментальные техники — спектроскопия ФЛ и отражения. ФЛ возбуждалась излучением непрерывного титан-сапфирового лазера, настроенного в полосу поглощения барьерных слоев ($E_{\text{exc}} = 1.653$ эВ), и детектировалась спектрометром с решеткой 1800 штр./мм и охлаждаемой жидким азотом ПЗС-матрицей.

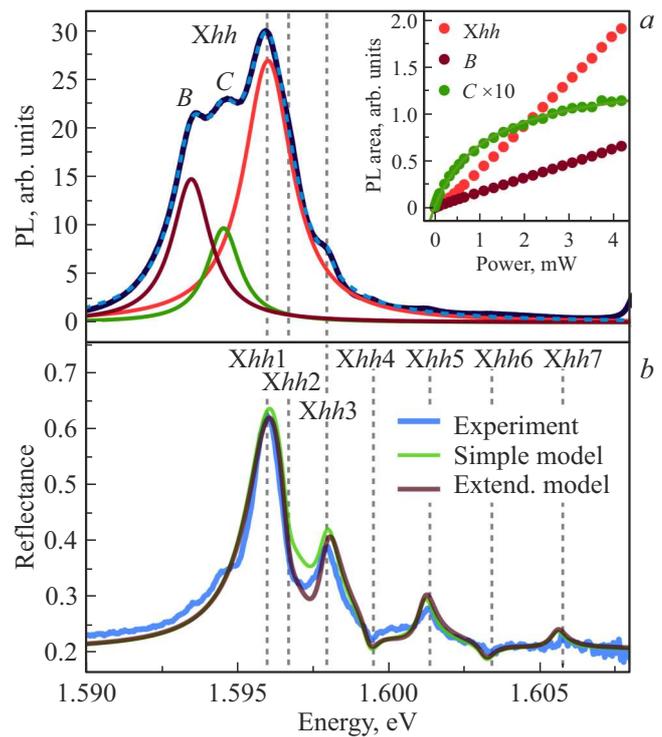


Рис. 1. *a* — спектр ФЛ, измеренный при $E_{\text{exc}} = 1.653$ эВ и $P_{\text{exc}} = 0.6$ мВт. Диаметр лазерного пятна $d = 0.1$ мм. Лоренцевые кривые показывают вклад отдельных компонент в полосу ФЛ. Штриховая кривая — сумма лоренцевых кривых. На вставке показаны зависимости площадей компонент Xhh , B и C от мощности накачки (кружки). Сплошные кривые — линейные аппроксимации для компонент Xhh и B и аппроксимация функцией (2) с $P_0 = 1.2$ мВт для компоненты C . *b* — спектр отражения и его моделирование в рамках простой и расширенной моделей (см. описание в тексте). Вычисленные спектры смещены на 2.15 мэВ и масштабированы с коэффициентом 0.93. Вертикальные штриховые линии с маркировкой $Xhh1$, $Xhh2$ и т.д. показывают энергии квантово-размерных состояний экситона с тяжелой дыркой. Температура образца 4 К для обоих экспериментов. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

Спектры отражения были измерены практически при нормальном падении (угол $< 10^\circ$) света импульсного титан-сапфирового лазера с длительностью импульсов ≈ 150 фс и частотой повторения 80 МГц. Эти спектрально широкие импульсы покрывали всю нужную нам спектральную область. Отраженный лазерный пучок детектировался тем же спектрометром, что и ФЛ. Для получения спектра отражения образца производилась нормировка сигнала на спектральный профиль лазерного света. Диаметр лазерного пятна на образце составлял $d = 100$ мкм.

На рис. 1 показаны спектры ФЛ и отражения образца. В спектре ФЛ идентифицированы три компонента с формой лоренцевых кривых. Компонента Xhh может быть отнесена к самому низкому квантово-размерному состоянию экситона с тяжелой дыркой в КЯ. Ее интегральная

интенсивность увеличивается практически линейно с мощностью возбуждения (см. вставку на рис. 1, *a*), энергия незначительно уменьшается (приблизительно на 0.05 мэВ для $P_{\text{exc}} = 5$ мВт), а полуширина на полувысоте (*HWHM*) увеличивается с 0.7 мэВ при малой мощности до 1.2 мэВ при мощности $P_{\text{exc}} = 5$ мВт (не приведено на рисунке).

Ниже линии *Xhh* наблюдаются две линии ФЛ, отмеченные буквами В и С. Похожие спектральные компоненты наблюдались также в работах [1–3]. Для нашего образца величина расщепления между линиями В и *Xhh* составляет ~ 2.5 мэВ, что близко к энергии связи отрицательных трионов в КЯ CdTe [7,19,24–26]. Энергия и *HWHM* линии В увеличиваются с увеличением мощности возбуждения так же, как и для *Xhh*. Эти наблюдения дают возможность предположить, что линия В — излучение триона с тяжелой дыркой.

Разность энергий компоненты С и линии *Xhh* ~ 1.5 мэВ. Ее интенсивность значительно меньше и растет сублинейно с увеличением мощности возбуждения. Мы предполагаем, что эта компонента возникает из-за дефектов, на которых локализируются экситоны. Действительно, пусть двумерная плотность дефектов равна N_c и соответствующее время жизни связанного экситона равно τ_c . Балансное уравнение для плотности n связанных экситонов запишется как

$$\frac{dn}{dt} = P \left(1 - \frac{n}{N_c} \right) - \frac{n}{\tau_c}. \quad (1)$$

Здесь P — скорость возбуждения дефектных центров, а множитель $(1 - n/N_c)$ описывает вероятность того, что центр не занят экситоном. При непрерывном возбуждении производная в уравнении (1) равна нулю, и плотность n легко находится. Интенсивность ФЛ пропорциональна n :

$$I_c = An = A \frac{P}{P + P_0}, \quad (2)$$

где A — масштабный множитель и $P_0 = N_c/\tau_c$. Эта функция достаточно хорошо описывает зависимость компоненты С от мощности (см. вставку на рис. 1).

Похожее поведение компонент наблюдается при квазирезонансном возбуждении ($E_{\text{exc}} = 1.606$ эВ). Суммарная интенсивность ФЛ всех трех компонент линейно зависит от мощности возбуждения, что указывает на отсутствие заметной концентрации центров тушения ФЛ.

На спектре отражения, показанном на рис. 1, *b*, видны несколько оптических резонансов в форме пиков и провалов. Заметного стоксового сдвига между энергиями экситона *Xhh1* в спектрах ФЛ и отражения не наблюдается. Это указывает на высокое качество структуры и минимальную локализацию экситонов. Наличие нескольких резонансов в спектре отражения связано с оптическими переходами на различные квантово-размерные экситонные состояния. Так как ширина изучаемой КЯ велика по сравнению с боровским радиусом экситона для

Таблица 1. Материальные параметры для гетероструктур CdTe/Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te

CdTe/Cd _{0.95} Zn _{0.05} Te		
ΔE_g , мэВ	27	[32,33]
V_e/V_h	2	
CdTe		
m_e	$0.11m_0$	[34]
m_h	$0.72m_0$	[35]
ϵ	10.2	[36]
E_p , эВ	20.7	[37,38]

Примечание. ΔE_g — разница ширин запрещенных зон Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te и CdTe; V_e и V_h — разрывы зоны проводимости и валентной зоны; m_e и m_h — эффективные массы электрона и тяжелой дырки в CdTe; ϵ — диэлектрическая проницаемость в CdTe; E_p — определена в (5).

объемного материала ($a_B \approx 5$ нм), выше самого низкого экситонного состояния, можно наблюдать несколько близко расположенных квантово-размерных экситонных состояний.

Похожие квантово-размерные состояния в широкой КЯ CdTe/CdZnTe наблюдались в спектрах ФЛ в статье [27]. Авторы анализировали эти состояния в рамках модели квантования движения центра масс, рассматривая экситон как единую частицу с квантованием движения поперек слоя КЯ. Несмотря на то что эта модель применима для широких КЯ, она содержит приближения, которые снижают точность получаемых результатов, в частности, для экситон-фотонной связи [28]. В следующем разделе мы рассматриваем квантово-механическую модель экситонных состояний в КЯ, которая не содержит этих приближений. Модель позволяет нам связать наблюдаемые резонансы с определенными квантово-размерными состояниями экситонов с тяжелой дыркой.

3. Моделирование экситонного спектра отражения

Экситонные энергии и волновые функции в КЯ CdTe/CdZnTe рассчитаны посредством численного решения соответствующего уравнения Шрёдингера. Процедура расчета описана в предыдущих статьях [28–31]. Мы рассматриваем только состояния экситонов с тяжелой дыркой и предполагаем цилиндрическую симметрию задачи, т.е. пренебрегаем анизотропией эффективной массы дырки в плоскости КЯ. Это предположение сводит задачу к трехмерному уравнению Шрёдингера, которое зависит от координат электрона (z_e) и тяжелой дырки (z_h) вдоль оси роста и от относительного расстояния между электроном и дыркой в плоскости КЯ (ρ). Материальные параметры, использованные в уравнении, перечислены в табл. 1. Уравнение Шрёдингера решалось численно на равномерной сетке $215 \times 328 \times 328$ (вдоль

Таблица 2. Параметры экситонных состояний, полученные в микроскопическом моделировании

j	1	2	3	4	5	6	7
$\hbar\omega_j - E_g$, мэВ	-12.2	-11.4	-10.2	-8.8	-7.0	-4.9	-2.6
$\hbar\delta\omega_j$, мэВ	0.13	-0.10	0.03	0.04	0.02	-0.02	0.01
$\hbar\Gamma_{0j}$, мкэВ	428.9	40.4	71.7	19.4	34.2	12.1	11.3
ϕ_j	π	0	π	0	π	0	π

Примечание. Ширина запрещенной зоны для CdTe $E_g = 1.606$ эВ [33].

координат ρ, z_e, z_h соответственно), и были получены несколько наиболее низких квантово-размерных экситонных состояний.

Полученные энергии экситонных состояний $\hbar\omega_j$ и волновые функции $\varphi_j(z_e, z_h, \rho)$ затем используются для моделирования спектров отражения. Вклад экситона в спектр моделируется в рамках теории нелокального диэлектрического отклика, описанной в книге Е.Л. Ивченко [39]. В этой модели амплитудное отражение от КЯ представляется в виде суммы вкладов отдельных экситонных резонансов:

$$r_{\text{QW}}(\omega) = \sum_j \frac{i\Gamma_{0j}e^{i\phi_j}}{(\omega_j + \delta\omega_j - \omega) - i(\Gamma_j + \Gamma_{0j})}. \quad (3)$$

Здесь Γ_{0j} задает скорость радиационного затухания j -го экситонного состояния:

$$\Gamma_{0j} = \frac{2\pi q}{\hbar\epsilon} \left(\frac{e|p_{cv}|}{m_0\omega_j} \right)^2 \left| \int_{-\infty}^{\infty} \Phi_j(z) \exp(iqz) dz \right|^2, \quad (4)$$

$$p_{cv} = \sqrt{m_0 E_p / 2}, \quad (5)$$

где p_{cv} — матричный элемент оператора импульса для межзонного перехода между состояниями электрона и дырки. В (4) $\Phi_j(z)$ — сечение экситонной волновой функции при совпадающих координатах электрона и дырки в экситоне, $\Phi_j(z) = \varphi_j(z, z, 0)$, ω_j — частота экситонного резонанса j , $q = \sqrt{\epsilon}\omega/c \approx \sqrt{\epsilon}\omega_{01}/c$ — волновой вектор света в слое с диэлектрической постоянной ϵ , e и m_0 — заряд и масса электрона соответственно, c — скорость света.

Взаимодействие экситона со светом смещает энергию „голового“ (механического) экситона на величину, вычисляемую следующим образом:

$$\hbar\delta\omega_j = \frac{2\pi q}{\epsilon} \left(\frac{e|p_{cv}|}{m_0\omega_j} \right)^2 \times \iint \Phi_j(z)\Phi_j(z') \sin(q|z - z'|) dz dz'. \quad (6)$$

Вычисленные сдвиги приведены в табл. 2.

Фаза ϕ_j , входящая в (3), рассчитывается согласно выражению

$$\tan\left(\frac{\phi_j}{2}\right) = \frac{\int \Phi_j(z) \sin(qz) dz}{\int \Phi_j(z) \cos(qz) dz}. \quad (7)$$

Для изучаемой КЯ ϕ_j равны 0 или π из-за симметрии потенциала КЯ относительно инверсии координаты $z \rightarrow -z$. Параметры экситонных резонансов, полученные в расчетах, собраны в табл. 2.

Наконец, величина Γ_j введена в (3) феноменологически. Она учитывает все нерадикационные механизмы уширения для состояния j . В расчетах спектров отражения, показанных на рис. 1, *b*, использовано значение $\hbar\Gamma_j = 0.3$ мэВ для всех резонансов. Самый важный механизм нерадикационного уширения в высококачественных гетероструктурах — это взаимодействие светлых экситонов с другими квазичастицами в системе. Отметим, что неоднородное уширение, вызванное дефектами структуры, а также нерадикационная рекомбинация экситонов могут в принципе вносить вклад в уширение. Оптическая характеристика нашей структуры показывает, однако, что нерадикационная рекомбинация, неоднородное уширение и нагревание структуры (по крайней мере при изученных плотностях мощности) малы.

Полная интенсивность отраженного света также зависит от амплитудного коэффициента отражения от поверхности образца r_s и может быть выражена как

$$R(\omega) = \left| \frac{r_s + r_{\text{QW}}(\omega)e^{i2\phi}}{1 + r_s r_{\text{QW}}(\omega)e^{i2\phi}} \right|^2, \quad (8)$$

где ϕ — фаза, приобретенная световой волной, распространяющейся от поверхности структуры до середины слоя КЯ.

Спектр отражения, вычисленный с использованием (3) и (8) и данных из табл. 2, показан на рис. 1, *b*. Для подгонки эксперимента нам пришлось сдвинуть вычисленный спектр на 2 мэВ в сторону больших энергий. Возможная причина этого расхождения между теорией и экспериментом — это напряжение в структуре, вызванное несопадением постоянных решеток слоев КЯ и барьерных слоев [2]. Вычисленный спектр также масштабирован на множитель $A = 0.93$. Это свидетельствует о чувствительности вычисляемых значений $\hbar\Gamma_{0j}$ к модельным параметрам, в частности к диэлектрической константе ϵ , которая известна с ограниченной точностью [15,38,40]. Анализ показывает, что увеличение ϵ на несколько процентов позволяет получить требуемое уменьшение радиационных уширений.

С этими замечаниями вычисленный спектр хорошо воспроизводит эксперимент. Единственное исключение — область между резонансами $Xhh1$ и $Xhh3$. Наблюдаемое отклонение от экспериментальной кривой связано со смешиванием экситонных состояний, вызванным светом. В самом деле, расщепление энергий между состояниями $Xhh1$, $Xhh2$ и $Xhh3$ сравнимо с вызванными

светом смещением и уширением состояний (см. табл. 2). Более общая (расширенная) модель позволяет учесть светоиндуцированное смешивание [28,41]. Мы вычислили спектры отражения в рамках этой расширенной модели и получили более точное описание эксперимента в этой спектральной области (см. рис. 1, b).

4. Экситонная динамика

Динамика экситонных состояний была изучена с помощью спектрально-разрешенной методики накачки-зондирования [11,12]. В этих экспериментах был использован фемтосекундный титан-сапфировый лазер с частотой повторения импульсов $\nu_L = 80$ МГц. Лазерный луч был разделен на лучи накачки и зондирования. Накачивающий луч был пропущен через акустооптический перестраиваемый фильтр, используемый как спектральный селектор. Он уменьшал полную спектральную ширину на полувысоте ($FWHM$) импульсов накачки до ~ 1 мэВ, увеличивая таким образом их длительность до ~ 2 пс. Такая спектрально узкая накачка позволила нам селективно возбуждать резонанс $Xhh1$. Спектрально широкий зондирующий луч ($FWHM \simeq 25$ мэВ) был использован для детектирования спектров отражения на каждой задержке между импульсами накачки и зондирования. Спектры детектировались тем же спектрометром, что и для экспериментов с непрерывным возбуждением (см. разд. 2).

Спектры отражения подгонялись по формулам (3), (8). Примеры подгонок приведены на рис. 2. Подгонки позволяют нам получить зависимости от задержки между импульсами накачки и зондирования

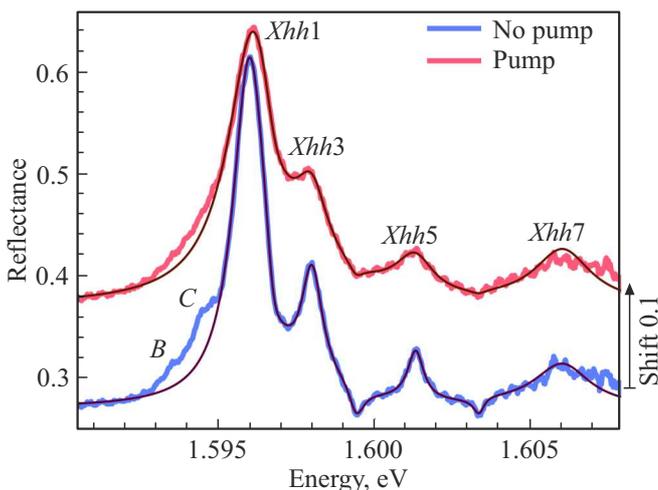


Рис. 2. Спектры отражения экситонных резонансов без накачки (нижняя толстая кривая) и при наличии накачки в резонанс $Xhh1$, $P_{exc} = 1.4$ мВт, временная задержка $\tau = 40$ пс (верхняя толстая кривая). Тонкие кривые показывают подгонки спектров формулами (3), (8). Две верхние кривые сдвинуты вертикально на 0.1 для лучшего представления. Температура образца $T = 4$ К.

Таблица 3. Характерные временные постоянные для подгонных кривых, показанных на рис. 3

Мощность, мВт	Резонанс	t_0 , нс	t_1 , нс	t_2 , нс
0.2	$Xhh1$	0.06	—	1.9
0.2	$Xhh3$	0.01	—	1.3
1.4	$Xhh1$	0.045	0.18	2.1
1.4	$Xhh3$	0.045	0.26	1.4

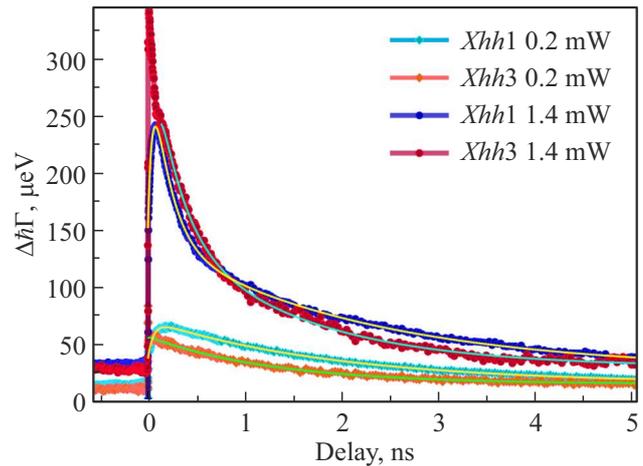


Рис. 3. Динамика фотоиндуцированной части нерadiационного уширения резонансов $Xhh1$ и $Xhh3$ при мощностях накачки, указанных в легенде. Тонкие сплошные линии — подгонки функцией (9) с временными константами из табл. 3. Температура образца $T = 4$ К.

основных экситонных параметров, а именно $\hbar\omega_{0j}$, $\hbar\Gamma_{0j}$, $\hbar\Gamma_j$ и ϕ_j . Установлено, что экситонные энергии $\hbar\omega_{0j}$, радиационные уширения $\hbar\Gamma_{0j}$ и фазы ϕ_j экситонных резонансов практически нечувствительны к возбуждению структуры малыми и средними мощностями накачки, использованными нами в экспериментах. С другой стороны, нерadiационные уширения $\hbar\Gamma_j$ экситонных резонансов чрезвычайно чувствительны к мощности накачки и временной задержке между импульсами. Ранее для КЯ GaAs было показано, что поведение этого фотоиндуцированного уширения содержит важную информацию о взаимодействии светлых экситонов с другими квазичастицами в системе [11,12]. Поэтому мы тщательно проанализировали его динамику.

На рис. 3 показана зависимость индуцированного накачкой нерadiационного уширения резонансов $Xhh1$ и $Xhh3$ от задержки между импульсами накачки и зондирования для двух разных значений мощности накачки. Уширение, не связанное с накачкой, вычтено из этих зависимостей. При малой мощности накачки наблюдается резкое увеличение уширения, которое затем медленно затухает с характерными временами $\sim 1-2$ нс. Кроме того, существует также долгоживущая компонента затухания, которая сохраняется до прихода

следующего лазерного импульса. Это наблюдается как ненулевой сигнал при отрицательных задержках (зондирующий импульс приходит раньше, чем импульс накачки), и его время жизни порядка периода повторения импульсов $T_l = 12.5$ нс. Похожий эффект наблюдался в КЯ GaAs [11,12]. Это указывает на высокое качество структуры, так как означает, что в структуре нет существенных каналов нерадикационных потерь.

При более высокой мощности накачки фотоиндуцированное уширение существенно увеличивается. Кроме того, присутствует еще одна временная компонента уширения, которая затухает с более коротким характерным временем.

Динамику затухания можно описать феноменологической функцией:

$$\hbar\Gamma(t) = \hbar\Gamma(-\tau_0) + \Delta\hbar\Gamma_{\max}[c_1 e^{-t/t_1} + c_2 e^{-t/t_2} - e^{-t/t_0}], \quad (9)$$

где $-\tau_0$ — малая отрицательная задержка ~ -0.1 нс. Первые два слагаемых в скобках описывают затухание уширения с двумя разными временами t_1 и t_2 , а последний член моделирует нарастание уширения с характерным временем t_0 сразу после прихода импульса накачки. Время жизни долгоживущей компоненты динамики не может быть определено с достаточной точностью, и поэтому она моделируется как постоянная (но фотоиндуцированная) компонента уширения.

Чтобы разобраться в этой динамике, мы начнем с модели, разработанной в статьях [11,12]. Она предполагает, что долгоживущее уширение вызвано взаимодействием светлых экситонов с резервуаром неизлучающих экситонов с большими волновыми векторами $K_x > K_c$. Энергия экситона на границе светового конуса мала, $E_{\text{kin}} = \hbar^2 K_c^2 / (2M_X) \simeq 0.1$ мэВ, где $M_X = 0.9m_0$ — трансляционная масса экситона вдоль слоя КЯ [42]. Экситоны достигают этой энергии при температуре образца $T \simeq 1$ К, что намного меньше, чем температура в наших экспериментах, $T = 4$ К. Таким образом, резервуар может быть с легкостью заполнен фоторожденными экситонами, рассеянными на термических фононах. Кроме того, радиационное уширение экситонного состояния $Xhh1 \hbar\Gamma_0$ (см. табл. 2) существенно превышает E_{kin} , т.е. светлые экситоны могут быть рассеяны в неизлучающий резервуар даже с эмиссией акустических фононов. Наконец, неизлучающие экситоны, накопившиеся от предыдущих лазерных импульсов, также могут рассеивать излучающие экситоны из светового конуса. Разнообразие процессов, приводящих к быстрому наполнению резервуара, наблюдается экспериментально как быстрое нарастание нерадикационного уширения экситонных резонансов. В то же время такое разнообразие процессов (также включая когерентные явления) усложняет анализ начальной стадии динамики. Экспериментально наблюдаемое нарастание фотоиндуцированного уширения выглядит зависящим от мощности накачки и более медленным для резонанса $Xhh1$, чем для резонанса $Xhh3$.

Интерпретация этого результата требует дальнейшего исследования.

Депопуляция резервуара с характерными временами t_1 и t_2 , извлеченными из экспериментальных данных, также может происходить за счет нескольких процессов. Здесь мы рассмотрим возможные процессы только качественно. Более тщательный анализ будет проведен в дальнейших работах.

В гетероструктурах высокого качества при низких температурах, когда отсутствуют нерадикационные потери на дефектных центрах, единственный способ опустошения резервуара — это рассеяние нерадикационных экситонов обратно в световой конус, где они немедленно рекомбинируют. За обратное рассеяние могут быть потенциально ответственны несколько механизмов. Это экситон-экситонное ($X-X$), экситон-электронное ($X-e$) и экситон-фононное ($X-ph$) рассеяние.

$X-X$ рассеяние, скорее всего, — неэффективный процесс для опустошения резервуара, по крайней мере при средних плотностях экситонов, создаваемых в наших экспериментах. Действительно, главный механизм $X-X$ взаимодействия — это обменное взаимодействие [43,44]. Так как борковский радиус экситона в CdTe равен ~ 5 нм, что значительно меньше, чем в GaAs (14 нм [28]), мы ожидаем, что этот процесс будет еще менее эффективным, чем в GaAs, где $X-e$ рассеяние преобладает над $X-X$ рассеянием [11,17].

$X-e$ рассеяние может быть эффективным, когда в КЯ присутствуют свободные электроны. Этот процесс может объяснить затухание сигнала на временах в доли наносекунды. Некоторое фоновое легирование, снабжающее КЯ электронами, вероятно, присутствует в изучаемой структуре. Это легирование может объяснить трионные линии B , наблюдаемые в спектре ФЛ на рис. 1, *a*. В то же время динамические кривые, измеренные при низких мощностях возбуждения, не содержат никаких быстрых компонент, которые должны присутствовать благодаря взаимодействию со свободными электронами. Мы вынуждены предположить, что при низких мощностях электроны локализованы на каких-то центрах (донорах). С другой стороны, более сильная накачка может нагревать систему, как было показано в статье [12]. Это приводит к делокализации электронов. В самом деле, относительно быстрая компонента динамики появляется в экспериментах при более высоких мощностях возбуждения (см. рис. 3). Взаимодействие свободных электронов с экситонным резервуаром приводит к эффективному опустошению резервуара. Но этот процесс не может полностью истощить резервуар, так как свободные экситоны охлаждаются и снова локализируются на центрах. Эти процессы контролируют затухание быстрой компоненты динамики с $t_1 \simeq 200$ пс.

Экситон-фононное рассеяние $X-ph$, возможно, является процессом, контролирующим медленные компоненты затухания. Взаимодействие экситонов с акустическими фононами в несколько раз сильнее в КЯ CdTe [18], чем в КЯ GaAs [45]. Наши эксперименты показывают,

что уширение экситонной линии в спектрах ФЛ линейно увеличивается при увеличении температуры образца до 30 К. Это увеличение вызвано взаимодействием экситонов с термическими акустическими фононами и характеризуется постоянной $\gamma_{X-ac} \approx 7$ мкэВ/К, описывающей наклон этой зависимости. Подобные эксперименты для КЯ GaAs дают величину $\gamma_{X-ac} \approx 1.5$ мкэВ/К [12]. Рассеяние темных экситонов в световой конус с испусканием акустических фононов не должно быть моноэкспоненциальным, поскольку резервуар темных экситонов постоянно охлаждается, и вероятность $X-ph$ рассеяния уменьшается из-за уменьшения фононной плотности. Это может объяснить наличие по меньшей мере двух медленных компонент в сигнале: одной с характерным временем в единицах наносекунд и другой — со временем, превосходящим период повторения импульсов. Теоретическое моделирование, необходимое для точного описания этого процесса, будет разработано и представлено в дальнейших работах.

5. Заключение

Наши результаты показывают, что в спектр отражения широкой КЯ CdTe/CdZnTe вносят вклад несколько размерно-квантованных экситонных состояний. Динамика фотоиндуцированного уширения экситонных резонансов изучена при резонансном возбуждении состояния $Xhh1$. Ее долгоживущее поведение предполагает, что, как и в КЯ GaAs, фотоиндуцированный вклад в нерадиационное уширение вызван взаимодействием с резервуаром неизлучающих (темных) экситонов. При низких мощностях возбуждения и низких температурах образца основным процессом опустошения резервуара является, предположительно, рассеяние темных экситонов в световой конус с эмиссией акустических фононов и последующей быстрой рекомбинацией экситонов. Это медленный процесс, поэтому резервуар не опустошается полностью за период повторения импульсов 12.5 нс. Об этом свидетельствует наличие ненулевого фотоиндуцированного уширения экситонных резонансов при отрицательных временных задержках.

При более сильном возбуждении образца появляется относительно быстрая компонента затухания ($t_1 \simeq 200$ пс). Мы предполагаем, что она может быть связана с нагреванием резервуара и делокализацией резидентных электронов, которые присутствуют в изучаемой КЯ. Экситон-электронное рассеяние эффективно опустошает резервуар, что приводит к быстрому уменьшению нерадиационного уширения. Одновременно температура резервуара уменьшается, электроны локализируются снова, и опустошение резервуара замедляется. Более строгое обсуждение процессов будет предложено в дальнейшем.

Благодарности

R. André благодарит за поддержку со стороны научной группы „NanoPhysics and Semiconductor“.

Финансирование работы

Авторы благодарят за финансовую поддержку Санкт-Петербургский государственный университет в рамках грантов № 94030557 и 94271404 и L'Agence nationale de la recherche в рамках гранта ANR-21CE30-0049. И.В. Игнатьев благодарит Российский научный фонд за финансовую поддержку теоретической части работы (грант № 19-72-20039). Б.Ф. Грибакин благодарит за поддержку со стороны Посольства Франции в Москве (стипендия им. Вернадского для молодых исследователей, 2021).

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Y. Merle d'Aubigné, H. Mariette, N. Magnea, H. Tuffigo, R.T. Cox, G. Lentz, L.S. Dang, J.-L. Pautrat, A. Wasiela. *J. Cryst. Growth*, **101**, 650 (1990).
- [2] H. Tuffigo, N. Magnea, H. Mariette, A. Wasiela, Y. Merle d'Aubigné. *Phys. Rev. B*, **43**, 14629 (1991).
- [3] В.Ф. Агекян, С. Ю. Вербин, G. Karczewski, А. Ю. Серов, Н.Г. Филозофов, И.В. Штром. *ФТТ*, **65**, 325 (2023).
- [4] V. Agekyan, G. Budkin, M. Chukeev, N. Filosofov, G. Karczewski, A. Serov, A. Reznitsky. *J. Luminesc.*, **230**, 117762 (2021).
- [5] S.V. Poltavtsev, I. A. Yugova, A. N. Kosarev, D. R. Yakovlev, G. Karczewski, S. Chusnutdinov, T. Wojtowicz, I.A. Akimov, M. Bayer. *Phys. Rev. Res.*, **2** (2), 023160 (2020).
- [6] F. Saeed, M. Kuhnert, I.A. Akimov, V.L. Korenev, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, A. Ali, A.S. Bhatti, D.R. Yakovlev, M. Bayer. *Phys. Rev. B*, **98** (7), 075308 (2018).
- [7] A.N. Kosarev, S.V. Poltavtsev, L.E. Golub, M.M. Glazov, M. Salewski, N.V. Kozyrev, E.A. Zhukov, D.R. Yakovlev, G. Karczewski, S. Chusnutdinov, T. Wojtowicz, I.A. Akimov, M. Bayer. *Phys. Rev. B*, **100** (12), 121401 (2019).
- [8] S.V. Poltavtsev, M. Reichelt, I.A. Akimov, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, D.R. Yakovlev, T. Meier, M. Bayer. *Phys. Rev. B*, **96** (7), 075306 (2017).
- [9] L.V. Kotova, V.N. Kats, A.V. Platonov, V.P. Kochereshko, R. André, L.E. Golub. *Phys. Rev. B*, **97** (12), 125302 (2018).
- [10] A.V. Trifonov, S.N. Korotan, A.S. Kurdyubov, I.Y. Gerlovin, I.V. Ignatiev, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.V. Petrov, Y.K. Dolgikh, V.V. Ovsyankin, A.V. Kavokin. *Phys. Rev. B*, **91**, 115307 (2015).
- [11] A.S. Kurdyubov, A.V. Trifonov, I.Y. Gerlovin, F. Gribakin, P.S. Grigoryev, A.V. Mikhailov, I.V. Ignatiev, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, M. Aßmann, M. Bayer, V. Kavokin. *Phys. Rev. B*, **104**, 035414 (2021).
- [12] A.S. Kurdyubov, A.V. Trifonov, A.V. Mikhailov, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, I.V. Ignatiev. *Phys. Rev. B*, **107** (7), 075302 (2023).

- [13] B. Sermage, S. Long, B. Deveaud, D.S. Katzer. *J. Phys.*, IV, **03** (C5), 19 (1993).
- [14] H. Mariette, F. Dal'bo, N. Magnea, G. Lentz, H. Tuffigo. *Phys. Rev. B*, **38** (17), 12443 (1988).
- [15] P. Peyla, Y. Merle d'Aubigné, A. Wasiela, R. Romestain, H. Mariette, M.D. Sturge, N. Magnea, H. Tuffigo. *Phys. Rev. B*, **46**, 1557 (1992).
- [16] S. Abdi-Ben Nasrallah, S. Mnasri, N. Sfina, N. Bouarissa, M. Said. *J. Alloys Compd.*, **509** (29), 7677 (2011).
- [17] A. Honold, L. Schultheis, J. Kuhl, C.W. Tu. *Phys. Rev. B*, **40** (9), 6442 (1989).
- [18] E.J. Mayer, N.T. Pelekanos, J. Kuhl, N. Magnea, H. Mariette. *Phys. Rev. B*, **51** (23), 17263 (1995).
- [19] M.T. Portella-Oberli, V. Ciulin, S. Haacke, J.-D. Ganière, P. Kossacki, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, B. Deveaud. *Phys. Rev. B*, **66** (15), 155305 (2002).
- [20] D. Persuy, M. Ziegler, O. Crégut, K. Kheng, M. Gallart, B. Hönerlage, P. Gilliot. *Phys. Rev. B*, **92** (11), 115312 (2015).
- [21] J. Cibert, Y. Gobil, L.S. Dang, S. Tatarenko, G. Feuillet, P.H. Jouneau, K. Saminadayar. *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 292 (1990).
- [22] L.C. Smith, J.J. Davies, D. Wolverson, S. Crampin, T. Cox, J. Cibert, H. Mariette, V.P. Kochereshko, M. Wiater, G. Karczewski, T. Wojtowicz. *Phys. Rev. B*, **78** (8), 085204 (2008).
- [23] J.J. Davies, L.C. Smith, D. Wolverson, V.P. Kochereshko, J. Cibert, H. Mariette, H. Boukari, M. Wiater, G. Karczewski, T. Wojtowicz, A. Gust, C. Kruse, D. Hommel. *Phys. Status Solidi B*, **247** (6), 1521 (2010).
- [24] K. Kheng, R.T. Cox, Y. Merle d'Aubigné, F. Bassani, K. Saminadayar, S. Tatarenko. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1752 (1993).
- [25] V. Ciulin, P. Kossacki, S. Haacke, J.-D. Ganière, B. Deveaud, A. Esser, M. Kutrowski, T. Wojtowicz. *Phys. Rev. B*, **62**, R16310 (2000).
- [26] G.V. Astakhov, V.P. Kochereshko, D.R. Yakovlev, W. Ossau, J. Nürnberger, W. Faschinger, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, J. Kossut. *Phys. Rev. B*, **65** (11), 115310 (2002).
- [27] N. Tomassini, A. D'Andrea, R. Del Sole, H. Tuffigo-Ulmer, R.T. Cox. *Phys. Rev. B*, **51** (8), 5005 (1995).
- [28] E.S. Khramtsov, P.S. Grigoryev, D.K. Loginov, I.V. Ignatiev, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, P.Y. Shapochkin, E.L. Ivchenko, M. Bayer. *Phys. Rev. B*, **99** (3), 035431 (2019).
- [29] E.S. Khramtsov, P.A. Belov, P.S. Grigoryev, I.V. Ignatiev, S.Y. Verbin, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, V.V. Petrov, S.L. Yakovlev. *J. Appl. Phys.*, **119**, 184301 (2016).
- [30] P.S. Grigoryev, A.S. Kurdyubov, M.S. Kuznetsova, V. Ignatiev, Y.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.V. Petrov, V.A. Lovtcius, P.Y. Shapochkin. *Superlatt. Microstruct.*, **97**, 452 (2016).
- [31] M.N. Bataev, M.A. Chukeev, M.M. Sharipova, P.A. Belov, P.S. Grigoryev, E.S. Khramtsov, I.V. Ignatiev, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, Y.P. Efimov. *Phys. Rev. B*, **106** (8), 085407 (2022).
- [32] K. Kim, A. Bolotnikov, G. Camarda, A. Hossain, R. James. *J. Cryst. Growth*, **442**, 98 (2016).
- [33] Franc, P. Hlídaek, P. Moravec, E. Belas, P. Höschl, L. Tujarska, R. Varghová. *Semicond. Sci. Technol.*, **15** (6), 561 (2000).
- [34] T.F. Marple. *Phys. Rev.*, **129** (6), 2466 (1963).
- [35] A. Jackson, W. Schröter (eds). *Handbook of Semiconductor Technology* (Wiley, 2000).
- [36] S. Perkowitz, R.H. Thorland. *Phys. Rev. B*, **9** (2), 545 (1974).
- [37] P. Lawaetz. *Phys. Rev. B*, **4** (10), 3460 (1971).
- [38] G.Y. Wu, C. Mailhot, T. C. McGill. *Appl. Phys. Lett.*, **46** (1), 72 (1985).
- [39] E.L. Ivchenko. *Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures* (Alpha Science International, Ltd, 2005).
- [40] I. Strzalkowski, S. Joshi, C.R. Crowell. *Appl. Phys. Lett.*, **28** (6), 350 (1976).
- [41] M.M. Voronov, E.L. Ivchenko, V.A. Kosobukin, A.N. Poddubnyĭ. *Phys. Solid State*, **49** (9), 1792 (2007). [*Fiz. Tverd. Tela*, **49**, 1709 (2007)].
- [42] L.S. Dang, G. Neu, R. Romestain. *Solid State Commun.*, **44** (8), 1187 (1982).
- [43] C. Ciuti, V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, P. Schwendimann. *Phys. Rev. B*, **58** (12), 7926 (1998).
- [44] B.F. Gribakin, E.S. Khramtsov, A.V. Trifonov, I.V. Ignatiev. *Phys. Rev. B*, **104** (20), 205302 (2021).
- [45] S. Rudin, T.L. Reinecke. *Phys. Rev. B*, **65** (12), 121311 (2002).

Редактор А.Н. Смирнов

Exciton dynamics in CdTe/CdZnTe quantum well

A.V. Mikhailov¹, A.S. Kurdyubov¹, E.S. Khramtsov¹, I.V. Ignatiev¹, B.F. Gribakin², S. Cronenberger², D. Scalbert², M.R. Vladimirova², R. André³

¹ Spin Optics Laboratory, St. Petersburg State University, 190034 Peterhof, St. Petersburg, Russia

² Laboratoire Charles Coulomb, Université de Montpellier, F-34095 Montpellier, France

³ Université Grenoble Alpes, CNRS, Institut Néel, 38000 Grenoble, France

Abstract Exciton energy structure and population dynamics in a wide CdTe/CdZnTe quantum well are studied by spectrally-resolved pump-probe spectroscopy. Multiple excitonic resonances in reflectance spectra are observed and identified by solving numerically three-dimensional Schrödinger equation. The pump-probe reflectivity signal is shown to be dominated by the photoinduced nonradiative broadening of the excitonic resonances, while pump-induced exciton energy shift and reduction of the oscillator strength appear to be negligible. This broadening is induced by the reservoir of dark excitons with large in-plane wave vector, which are coupled to the bright excitons' states. The dynamics of the pump-induced nonradiative broadening observed experimentally is characterised by three components: (i) signal build up on the scale of tens of picoseconds and biexponential decay on the scale of (ii) one nanosecond and (iii) ten nanoseconds. Possible mechanisms of the reservoir population and depletion responsible for this behavior are discussed.