

Термостимулированный перенос возбуждения в асимметричной системе квантовых ям, разделенных толстыми барьерами

© Н.Г. Философов¹, Г.В. Будкин², В.Ф. Агемян¹, G. Karczewski³, А.Ю. Серов¹, С.Ю. Вербин¹, А.Н. Резницкий²

¹ Санкт-Петербургский государственный университет, 194034 Санкт-Петербург, Россия

² Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

³ Institute of Physics PAN, Polish Academy of Sciences, Warsaw, PL-02-668 Poland

E-mail: n.filosofov@spbu.ru

Поступила в Редакцию 3 мая 2024 г.

В окончательной редакции 17 сентября 2024 г.

Принята к публикации 30 октября 2024 г.

В интервале температур $T = 5\text{--}300\text{ К}$ исследованы спектры фотолюминесценции и отражения гетероструктуры $\text{CdTe}/\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$, содержащей четыре квантовые ямы CdTe толщиной 10.2, 5.1, 2.6 и 1.3 нм, которые разделены барьерами $\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$ толщиной 20 нм. При надбарьерном возбуждении в спектре ФЛ при $T = 5\text{ К}$ детектируется четыре полосы, соответствующие рекомбинации экситонов в этих квантовых ямах. Установлено, что с ростом температуры усиливается перенос энергии между соседними квантовыми ямами, имеющий активационный характер. Степень связанности электронных состояний двух соседних квантовых ям убывает с увеличением их толщины. Проведена оценка связанности экситонных состояний соседних квантовых ям и сделан вывод о том, что перенос энергии может происходить посредством фёрстеровского диполь-дипольного взаимодействия или через состояния реальных или виртуальных фотонов.

Ключевые слова: квантовые ямы II-VI, люминесценция, перенос энергии.

DOI: 10.61011/FTP.2024.10.59385.6416A

1. Введение

Перенос электромагнитного возбуждения и носителей заряда между отдельными элементами полупроводниковой гетероструктуры в большой мере определяет ее свойства и возможности практического применения. Этот круг вопросов изучался в структурах, содержащих ансамбли квантовых точек, квантовые ямы различной толщины, в гибридных структурах типа квантовая яма (КЯ) — планарный массив квантовых точек и в других объектах [1–7]. Связь между элементами гетероструктуры может осуществляться туннелированием носителей заряда и экситонов, а также через диполь-дипольное взаимодействие. Эффективность переноса может значительно усиливаться в резонансных условиях, когда оказываются близкими друг к другу или даже совпадают уровни энергии в отдельных элементах гетероструктуры. Следует отметить, что резонанс легче реализуется в системах с квантовыми точками, имеющими значительную размерную дисперсию, для систем с КЯ требуется более тонкая настройка. Перенос в многослойных гетероструктурах с КЯ определяется степенью связанности электронных состояний соседних КЯ, которая зависит от толщины КЯ и от высоты и толщины барьера [1]. Представляет интерес изучение усиления эффективности туннелирования носителей заряда и экситонов при повышении температуры за счет расширения их энергетического спектра. В нашей работе этот вопрос исследовался на основе температурного поведения люминесценции гетероструктуры с КЯ CdTe . В настоящей работе использованы возможности оптической спектроскопии для характеристики связанности/изолированности КЯ, разделенных толстыми барьерами.

исследовался на основе температурного поведения люминесценции гетероструктуры с КЯ CdTe . В настоящей работе использованы возможности оптической спектроскопии для характеристики связанности/изолированности КЯ, разделенных толстыми барьерами.

2. Строение гетероструктуры и детали эксперимента

Исследована гетероструктура $\text{CdTe}/\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$ (рис. 1), имеющая следующее строение: подложка GaAs $\langle 100 \rangle$, 4 мкм CdTe , 50 нм $\text{Cd}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{Te}$, четыре КЯ CdTe QW1–QW4 с толщинами, соответственно, 32, 16, 8, 4 монослоев (1 монослой — 0.32 нм), разделенными барьерами $\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$ толщиной 20 нм, покровный слой толщиной 20 нм. КЯ растились методом атомно-слоевой эпитаксии (ALD), остальное — методом стандартной молекулярно-пучковой эпитаксии (МВЕ).

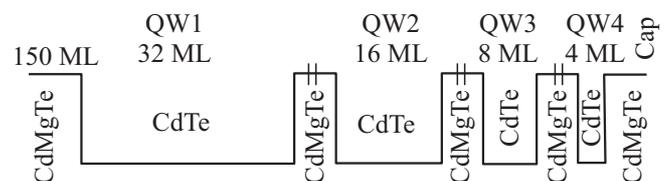


Рис. 1. Схема строения гетероструктуры $\text{CdTe}/\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) гетероструктуры CdTe/Cd_{0.65}Mg_{0.35}Te исследованы в температурном интервале 5–300 К. Образец помещался в оптический криостат замкнутого цикла, для надбарьерного возбуждения ФЛ использовалось излучение полупроводникового лазера с энергией фотонов 3.06 эВ. Для исключения нагрева образца интенсивность возбуждения не превышала 30 Вт/см², что соответствует максимальной плотности фотоносителей в КЯ < 10¹⁰ см⁻². Для получения спектров отражения использовалось излучение лампы накаливания.

3. Спектры фотолюминесценции и отражения

При низких температурах в спектре ФЛ наблюдаются четыре полосы, соответствующие рекомбинации экситонов в КЯ (QW1–QW4), а также полоса излучения из состояний, связанных с барьером (рис. 2). В табл. 1 приведены характеристики низкотемпературных оптических спектров образца. E_{abs} — энергии экситонных переходов в спектре отражения, соответствующие нижайшим уровням размерного квантования для каждой КЯ (см. рис. 2), E_{PL} — энергии максимумов полос в спектре ФЛ КЯ. Таким образом, разность ($E_{\text{abs}} - E_{\text{PL}}$) представляет собой стоксов сдвиг между энергиями поглощения и излучения и является мерой протяженности хвоста локализованных экситонных состояний. Полученные экспериментальные результаты обсуждаются нами в рамках экситонного приближения, поскольку монотонное уменьшение величины ($E_{\text{abs}} - E_{\text{PL}}$) с ростом толщины

Таблица 1. Характеристики низкотемпературных оптических спектров образца

| КЯ | E_{PL} (эВ) | E_{abs} (эВ) | $E_{\text{abs}} - E_{\text{PL}}$ (мэВ) | D (мэВ) |
|-----|----------------------|-----------------------|----------------------------------------|-----------|
| QW4 | 2.048 | 2.100 | 52 | 259 |
| QW3 | 1.845 | 1.871 | 26 | 462 |
| QW2 | 1.693 | 1.705 | 12 | 614 |
| QW1 | 1.622 | 1.625 | 3 | 685 |

КЯ является, помимо всего прочего, прямым указанием на экситонную природу локализованных состояний, формирующих спектры ФЛ. Величина $D = E_{\text{CdMgTe}} - E_{\text{PL}}$, где $E_{\text{CdMgTe}} = 2.307$ эВ, дает оценку энергии, необходимой для выброса экситона из основного состояния КЯ в барьерный слой.

4. Температурная зависимость интенсивности фотолюминесценции и ее анализ

Обратимся к температурным зависимостям интегральных интенсивностей ФЛ КЯ QW1–QW4. В работе [8] показано, что в случае изолированных КЯ температурная зависимость интегральной интенсивности излучения $I(T)$ может быть хорошо аппроксимирована функцией, содержащей две экспоненты с заметно отличающимися энергиями E_1 и E_2 :

$$I(T) = I_0 / \{1 + a \exp(-E_1/k_B T) + b \exp(-E_2/k_B T)\}. \quad (1)$$

В этом случае параметры a, b, E_1 и E_2 описывают перенос возбуждения к двум группам центров безызлучательной рекомбинации, который приводит к температурному тушению ФЛ. В случае связанности двух КЯ различной толщины в некотором температурном интервале наблюдается существенное перераспределение интенсивности ФЛ, которое обусловлено переносом возбуждения из тонкой КЯ в соседнюю, более толстую КЯ. В работе [8] показано, что если суммарную интенсивность излучения из пары соседних КЯ $I_{\text{PL}}(T)$ удастся описать выражением (1), то температурная зависимость интенсивности излучения из тонкой КЯ при учете переноса возбуждения в толстую КЯ описывается введением в уравнение (1) дополнительного члена $c^1 \exp(-E_t^1/k_B T)$:

$$I(T) = I_0 / \{1 + a \exp(-E_1/k_B T) + b \exp(-E_2/k_B T) + c^1 \exp(-E_t^1/k_B T)\}. \quad (2)$$

В этой модели после подгонки с использованием уравнения (1) температурной зависимости суммарной интегральной интенсивности $I_{\text{PL}}(T)$ ФЛ двух соседних КЯ параметры a, b, E_1 и E_2 зафиксированы, и для описания парциальной температурной зависимости излучения этих КЯ свободными остаются только параметры c^1 и E_t^1 .

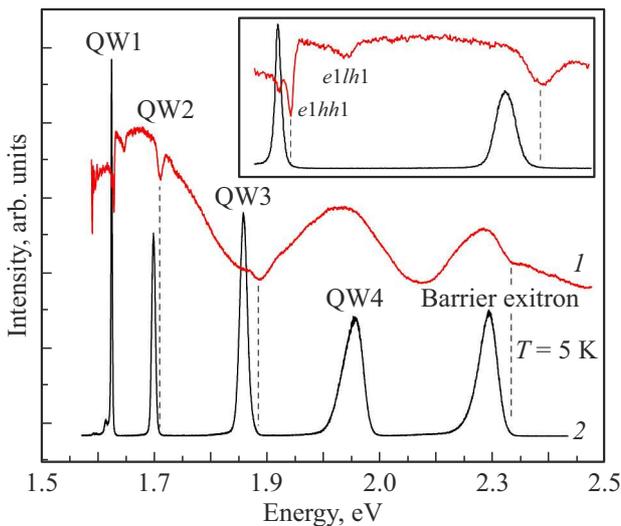


Рис. 2. Спектры отражения (1) и ФЛ (2) гетероструктуры CdTe/Cd_{0.65}Mg_{0.35}Te. На вставке приведены в увеличенном масштабе участки спектров отражения и ФЛ в окрестности переходов в QW1 и QW2. Особенности в спектре отражения, отмеченные пунктирными линиями, соответствуют экситонным резонансам в КЯ и барьере.

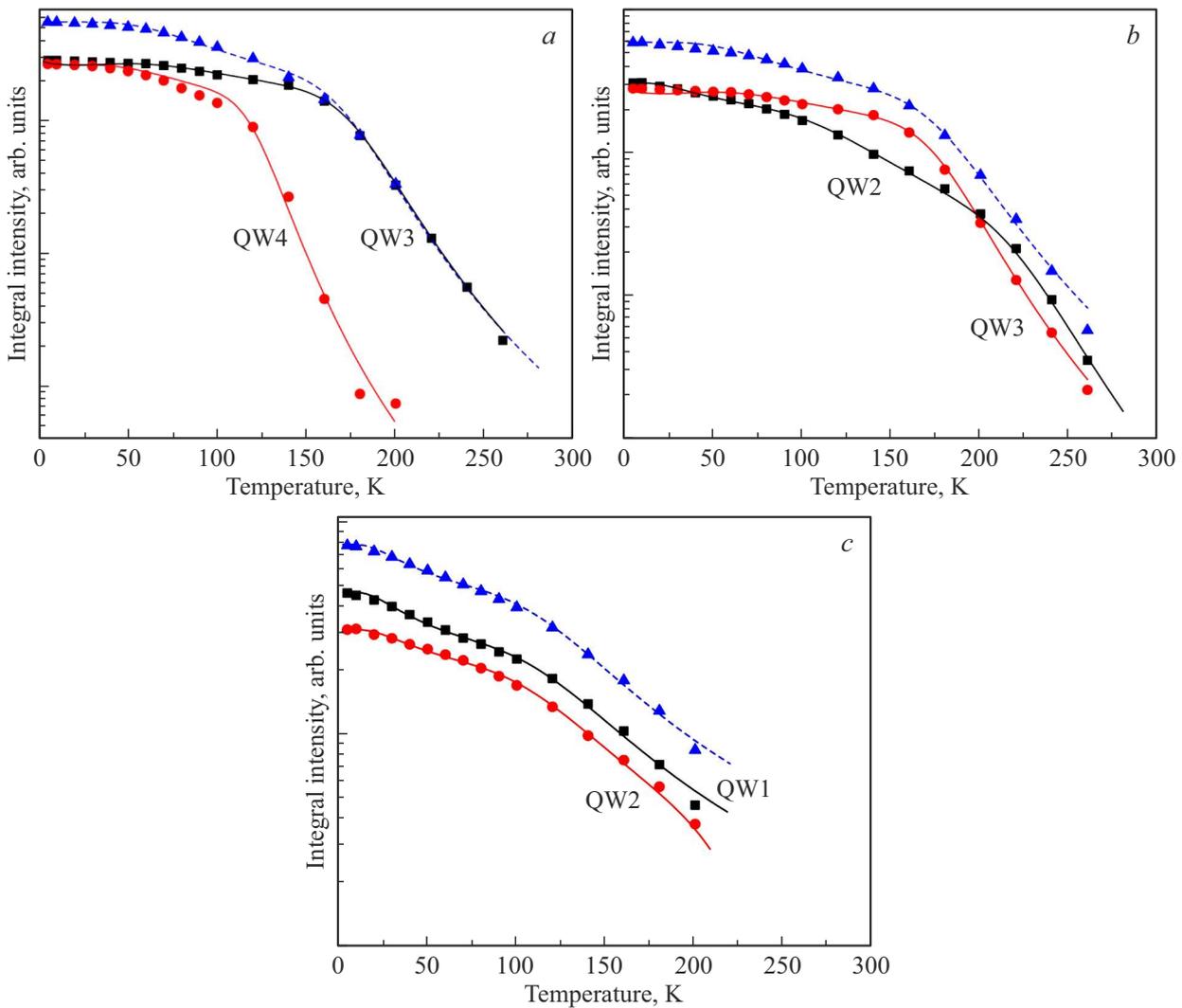


Рис. 3. Температурные зависимости интегральных интенсивностей люминесценции КЯ. Маркерами обозначены экспериментальные данные, линиями — расчетные зависимости по формуле (2) с параметрами, приведенными в табл. 2. Штриховыми линиями показана суммарная интегральная интенсивность люминесценции пары КЯ.

Для проверки предложенной модели переноса возбуждения мы рассмотрели уравнения баланса для трех пар соседних КЯ QW4–QW3, QW3–QW2 и QW2–QW1. Оказалось, что наиболее близко модель, предложенная в [8], применима к описанию переноса возбуждения из QW4 в QW3: в области температур $T > 100$ К происходит быстрое уменьшение интегральной интенсивности излучения $I_4(T)$ с одновременным замедлением температурного гашения излучения $I_3(T)$ (рис. 3, *a*). Как видно из рисунка, суммарная интенсивность излучения из QW4 и QW3 может быть описана уравнением (1), при этом парциальная температурная зависимость $I_4(T)$ описывается уравнением (2) введением дополнительного экспоненциального члена с активационной энергией E_t . Для пары QW4–QW3 эффект перераспределения интенсивности излучения между QW4 и QW3 становится заметным в области $T > 100$ К, E_t^1 для этой пары составляет 20 мэВ.

Качественно перераспределение интенсивности с ростом температуры наблюдается и для пары QW3–QW2, что также указывает на связанность этих КЯ. Действительно, как видно из рис. 3, *b*, в области температур 100–140 К зависимость $I_3(T)$ становится полой, что, как отмечалось выше, отражает рост потока из QW4 в QW3. В области температур > 180 К интегральная интенсивность $I_3(T)$ быстро уменьшается за счет усиления переноса возбуждения в QW2. При количественном описании этих процессов помимо переноса возбуждения из QW4 в QW3 необходимо учитывать также изменение заселенности QW2 за счет переноса из QW3. Вклад обоих процессов в парциальную температурную зависимость $I_3(T)$ описывается введением в уравнение (1) по аналогии с уравнением (2) двух экспоненциальных членов с активационными энергиями E_t^1 и E_t^2 , при этом отрицательный и положительный знаки этих вкладов отражают, соответственно, приход экситонов в QW3

Таблица 2. Параметры уравнений (1) и (2), использованные при описании зависимостей $I_1(T) - I_4(T)$

| | QW4 | $I_{PL} = QW4 + QW3$ | QW3 | $I_{PL} = QW3 + QW2$ | QW2 | QW1 |
|---------------|-------------------|----------------------|------------------|----------------------|-------|-----|
| I_0 | 2.63 | 5.44 | 2.80 | 5.9 | 3.07 | 4.6 |
| a | 8.7 | 8.70 | 13 | 5.12 | 1.5 | 170 |
| E_1 (мэВ) | 23 | 23 | 24 | 19 | 6.7 | 6 |
| b | $7.45 \cdot 10^7$ | $1.7 \cdot 10^6$ | $3.1 \cdot 10^6$ | $2.2 \cdot 10^5$ | 200 | 213 |
| E_2 (мэВ) | 194 | 202 | 230 | 180 | 60 | 60 |
| c^1 | 7.46 | | -7.46 | | -0.17 | |
| E_r^1 (мэВ) | 20 | | 20 | | 4 | |
| c^2 | | | 0.17 | | | |
| E_r^2 (мэВ) | | | 4 | | | |

из QW4 и уход из QW3 в QW2. В паре QW2–QW1 (рис. 3, *с*) скорости температурного тушения ФЛ практически совпадают, что, на наш взгляд, означает отсутствие переноса возбуждения из QW2 в QW1.

В табл. 2 приведены параметры уравнений (1) и (2), использованные при описании зависимостей $I_1(T) - I_4(T)$ в спектрах ФЛ КЯ QW1–QW4.

Мы провели оценку перекрытий волновых функций экситонных состояний в КЯ QW1–QW4 и установили, что они столь малы, что процессы туннелирования не могут внести существенный вклад в перенос энергии. Возможными механизмами, объясняющими в этом случае наблюдаемый экспериментально перенос возбуждения между КЯ, могут быть фёрстеровский перенос энергии, обусловленный диполь-дипольным взаимодействием между КЯ [3], или перенос энергии через состояния реальных или виртуальных фотонов [5]. Как показано в этих работах, выбор механизма переноса возбуждения между КЯ, разделенными широкими барьерами, может быть сделан на основе изучения зависимости скорости этого процесса от ширины барьера.

Отметим, что температурные зависимости скорости переноса экситонов за счет диполь-дипольного взаимодействия или переноса через состояния реальных или виртуальных фотонов в работах [3,5] описываются в модели простых параболических зон электронов и дырок. В этих работах показано, что даже в такой простой модели зависимости носят сложный немонотонный характер, что обусловлено перераспределением экситонов по энергиям в тонкой КЯ за счет их термализации. В частности, с ростом температуры становятся возможны переходы между КЯ для экситонов с ненулевым волновым вектором. Для детального описания экспериментальных результатов по переносу энергии в изучаемых в нашей работе структурах CdTe/CdMgTe необходимо провести расчет скорости переноса в диапазоне энергий в сотни мэВ, что в свою очередь требует учета сложной структуры валентной зоны, знания энергии связи и плотности состояний экситонов с учетом непараболичности спектра носителей заряда, а также волновых функций экситонов. Такой расчет выходит за рамки представленной работы, но можно ожидать, что

учет этих факторов приведет к существенным отличиям зависимости скорости переноса от температуры по сравнению с работами [3,5] и позволит объяснить излом в температурной зависимости интенсивности ФЛ при температурах ~ 100 К.

5. Заключение

Итак, экспериментально установлены характеристики переноса энергии между соседними КЯ в гетероструктуре, содержащей четыре КЯ CdTe, разделенные барьерами $\text{Cd}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$ толщиной 20 нм. При $T = 5$ К в спектре ФЛ наблюдаются четыре полосы сопоставимой интенсивности, относящиеся к рекомбинации экситонов в КЯ. Обнаружено, что передача энергии между состояниями соседних тонкой и толстой КЯ усиливается с ростом температуры. Эффективность передачи энергии из тонких КЯ в более толстые КЯ при фиксированной толщине барьера заметно уменьшается с увеличением толщины этих двух КЯ. Сделан вывод, что возможными механизмами переноса возбуждения между КЯ исследованной гетероструктуры могут быть термостимулированное диполь-дипольное взаимодействие или перенос через состояния реальных или виртуальных фотонов. Выбор между предложенными механизмами переноса возбуждения между КЯ, разделенными широкими барьерами, может быть сделан на основе изучения зависимости интенсивности этого процесса от толщины барьера.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта СПбГУ № 95440344 (В.Ф. Агемян, А.Ю. Серов) и гранта УМО-2021/41/В/ST3/03651 (G. Karczewski).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.A. Lorenzo-Andrade, F. Sutara, I. Hernández-Calderón. Superlat. Microstr., **87**, 47 (2015).

- [2] D. Guzun, Yu.I. Mazur, V.G. Dorogan, M.E. Ware, E. Marega, Jr.G.G. Tarasov, C. Lienau, G.J. Salamo. *J. Appl. Phys.*, **113**, 154304 (2013).
- [3] A. Tomita, J. Shah, R.S. Knox. *Phys. Rev. B*, **53**, 10793 (1996).
- [4] В.Я. Алешкин, Л.В. Гавриленко, Д.М. Гапонова, З.Ф. Красильник, Д.И. Крыжков, Д.И. Курицын, С.М. Сергеев, В.Г. Лысенко. *Письма ЖЭТФ*, **94**, 890 (2011).
- [5] S.K. Lyo. *Phys. Rev. B*, **62**, 13641 (2000).
- [6] A.N. Poddubny, A.V. Rodina. *ЖЭТФ*, **149**, 614 (2016).
- [7] Yu.I. Mazur, V.G. Dorogan, E. Marega, jr., M. Benamara, Z.Ya. Zhuchenko, G.G. Tarasov, C. Lienau, G.J. Salamo. *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 083118 (2011).
- [8] A.N. Reznitsky, A.A. Klochikhin, M.V. Eremenko. *Semiconductors*, **48**, 332 (2014).

Редактор Г.А. Оганесян

Thermally stimulated excitation transfer in an asymmetric system of quantum wells separated by thick barriers

N.G. Filosofov¹, G.V. Budkin², V.F. Agekyan¹,
G. Karczewski³, A.Yu. Serov¹, S.Yu. Verbin¹,
A.N. Reznitsky²

¹ St. Petersburg State University,
194034 St. Petersburg, Russia

² Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

³ Institute of Physics Polish Academy of Sciences,
Warsaw, PL-02-668 Poland

Abstract The photoluminescence and reflection spectra of the heterostructure CdTe/Cd_{0.65}Mg_{0.35}Te were studied in the temperature range $T = 5–300$ K. The heterostructure contains four CdTe quantum wells with a thickness of 10.2, 5.1, 2.6 and 1.3 nm separated by Cd_{0.65}Mg_{0.35}Te barriers with a thickness of 20 nm. Four emission bands corresponding to the exciton recombination in these quantum wells, were detected under the above-barrier excitation. It was found that the energy transfer between neighboring quantum wells show an activation character. The coupling of the electron states of two neighboring quantum wells decreases with the increasing of their thickness. An estimation of the exciton state coupling between the neighboring quantum wells was carried out. It is concluded that energy transfer occurs through the Förster dipole-dipole interaction or through the real or virtual phonon states.