

Динамика фотолюминесценции в наноструктурах с квантовыми ямами InGaAsSb/AlGaAsSb

© М.Я. Винниченко[¶], Д.А. Фирсов, Л.Е. Воробьев, М.О. Машко, L. Shterengas⁺, G. Belenky⁺

Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

Department of Electrical and Computer Engineering, State University of New York at Stony Brook,
11794 New York, USA

(Получена 15 апреля 2012 г. Принята к печати 25 апреля 2012 г.)

Исследованы зависимости интенсивности фотолюминесценции от времени в квантовых ямах InGaAsSb/AlGaAsSb, имеющих различную ширину и различный состав материала барьера. Из анализа динамики фотолюминесценции найдены времена захвата носителей заряда в квантовые ямы, времена энергетической релаксации и времена жизни, в том числе время жизни по отношению к резонансной оже-рекомбинации. Показано, что при определенной конфигурации структур может наблюдаться резонансная оже-рекомбинация неравновесных носителей заряда.

1. Введение

Для создания инжекционных лазеров среднего инфракрасного диапазона (длины волн $\lambda = 2\text{--}4$ мкм), работающих в непрерывном режиме при комнатной температуре, используются твердые растворы типа InGaAsSb [1,2]. При конструировании лазеров и прогнозировании их характеристик необходимо знать механизмы рекомбинации носителей заряда, в частности оже-рекомбинации, которая при определенных условиях может становиться резонансной [3].

Задачей настоящей работы является изучение динамики фотолюминесценции (ФЛ) в наноструктурах с квантовыми ямами (КЯ) InGaAsSb/AlGaAsSb и InGaAsSb/InAlGaAsSb, что позволяет получить информацию о процессах рекомбинации носителей заряда в КЯ, а также о процессах релаксации возбужденных светом носителей заряда. Динамика ФЛ с учетом оже-рекомбинации в узкозонных полупроводниках впервые была рассмотрена в работе [4], где была определена зависимость скорости оже-рекомбинации от температуры при оптической накачке в барьере. В настоящей работе при изучении динамики ФЛ и оже-рекомбинации дополнительно используется резонансная накачка в КЯ и находится зависимость скорости оже-рекомбинации от уровня накачки.

При определенных значениях параметров лазерной структуры может наблюдаться резонансная оже-рекомбинация. В работе исследованы структуры с различной шириной квантовой ямы и с различными материалами барьера, что позволило обнаружить оже-рекомбинацию такого типа и изучить процессы захвата носителей заряда в КЯ при различных условиях возбуждения неравновесных электронно-дырочных пар — в барьере и непосредственно в квантовой яме.

2. Объект исследования и методика

Динамика ФЛ исследовалась методом ап-конверсии (up-conversion). Метод основан на преобразовании ча-

стоты излучения фотолюминесценции вверх при сложении сигнала фотолюминесценции и возбуждающего излучения с помощью нелинейного кристалла [5], что позволяет использовать чувствительные малоинерционные детекторы — фотоумножители. Использование линии задержки для возбуждающего излучения, падающего на нелинейный кристалл, позволяет изучать зависимость сигнала фотолюминесценции от времени.

Энергия кванта возбуждающего излучения лазера на неодимовом стекле составляла $h\nu = 1.17$ эВ при длительности импульса излучения $\Delta t = 150$ фс и частоте повторения импульсов 100 МГц. Излучение фокусировалось на поверхности структуры в виде пятна диаметром ~ 10 мкм. Максимальная средняя мощность возбуждающего излучения была равна 30 мВт. Излучение с частотой, равной сумме частот излучения фотолюминесценции и возбуждающего излучения, после взаимодействия с нелинейным кристаллом PPLN отфильтровывалось спектрометром и регистрировалось охлаждаемым фотоумножителем с областью чувствительности 160–930 нм. Линия задержки, управляемая компьютером, позволяла получить максимальный сдвиг импульсов 10 нс при временном разрешении системы ~ 0.5 пс. Исследование динамики фотолюминесценции проводилось при температурах $T = 77$ и 300 К.

Динамика ФЛ исследовалась в наноструктурах с 10 квантовыми ямами $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}_{0.24}\text{Sb}_{0.76}/\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}_{0.056}\text{Sb}_{0.944}$. Образцы различались шириной КЯ: 4, 5, 6, 7 и 9 нм. Квантовые ямы разделялись барьерами шириной 50 нм. Для сравнения мы использовали структуру с более узкозонным барьером, описанную в [6], в которой динамика ФЛ исследовалась при оптическом возбуждении в барьере. Эта структура содержала 4 квантовые ямы $\text{In}_{0.545}\text{Ga}_{0.455}\text{As}_{0.255}\text{Sb}_{0.745}/\text{In}_{0.25}\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.55}\text{As}_{0.245}\text{Sb}_{0.755}$ шириной 17 нм. На расстоянии 300 нм от квантовых ям с обеих сторон находились ограничивающие слои $\text{Al}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}_{0.05}\text{Sb}_{0.95}$. Все структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии с использованием реактора Veeco GEN-930. Все слои в структуре, кроме слоев квантовых ям,

[¶] E-mail: mvin@spbstu.ru

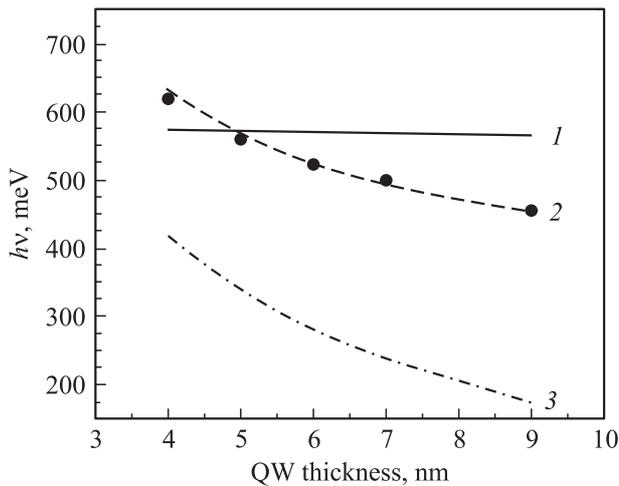


Рис. 1. Зависимости энергии разрешенных переходов от ширины КЯ (QW) InGaAsSb/AlGaAsSb при $T = 77$ К. Точки — энергии пиков фотолуминесценции для переходов $e1-hh1$, кривые — рассчитанные значения энергетических зазоров $E(hh1)-E(so1)$ (1), $E(e1)-E(hh1)$ (2), $E(e2)-E(e1)$ (3).

были согласованы по постоянной решетки с подложкой из GaSb.

Положение энергетических уровней было рассчитано в рамках модели Кейна, учитывающей непараболичность подзон. Данное приближение необходимо использовать, поскольку энергия электронов в подзонах размерного квантования исследуемых структур составляет величину порядка ширины запрещенной зоны. На рис. 1 приведены расчетные значения энергии $h\nu$ основных переходов носителей заряда в зависимости от ширины квантовой ямы и энергии пиков ФЛ при $T = 77$ К. Согласно расчетам, в образце с шириной КЯ 5 нм при $T = 77$ К расстояние между зоной $E(so1)$, отщепленной спин-орбитальным взаимодействием, и основным состоянием дырок $E(hh1)$ примерно равно эффективной ширине запрещенной зоны:

$$E(hh1) - E(so1) = E(e1) - E(hh1). \quad (1)$$

Равенство (1) является условием существования резонансной оже-рекомбинации с участием двух дырок и электрона. Резонансная оже-рекомбинация может на 2–3 порядка уменьшить безызлучательное время жизни по сравнению с нерезонансной оже-рекомбинацией [3] и соответственно ухудшить характеристики лазеров.

3. Экспериментальные результаты и их анализ

Зависимость интенсивности ФЛ от времени, $J_{PL}^v(t)$, была исследована в наноструктурах с разной шириной КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb при разных интенсивностях оптической накачки J_{ex} для температур $T = 77$ и 300 К.

Спектры ФЛ различались для структур, имеющих различную ширину КЯ и различный материал барьера. В каждом случае зависимость интенсивности ФЛ от времени изучалась при длине волны, соответствующей максимуму интенсивности ФЛ.

В структурах с КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb энергия кванта излучения накачки 1.17 эВ была меньше ширины запрещенной зоны барьера (1.72 эВ при $T = 77$ К) и соответствовала возбуждению неравновесных носителей заряда непосредственно в квантовой яме при переходах $hh1 \rightarrow e1$ и $hh2 \rightarrow e2$. На рис. 2 приведена нормированная зависимость интенсивности ФЛ от времени при $T = 300$ К и при максимальной интенсивности оптической накачки в КЯ шириной 5 нм (кривая 1). Для структур с другой шириной КЯ эта зависимость для температур $T = 77$ и 300 К выглядит аналогично.

Начальный участок зависимости $J_{PL}^v(t)$ определяется процессами энергетической релаксации неравновесных электронов и для кривой 1 (рис. 2) может быть аппроксимирован следующей функцией:

$$J_{PL}^v(t) = J_0[1 - \exp(-t/\tau)], \quad (2)$$

где время τ для структуры с шириной КЯ 5 нм оказалось равным 3.8 пс.

Зависимости, приведенные на рис. 2, получены для комнатной температуры при высоком уровне возбуждения. В связи с этим образованием горячих экситонов и их релаксацией [7] можно пренебречь и использовать приближение электронно-дырочной релаксации. Возбужденные в квантовую яму высокоэнергетичные электроны с энергией $\varepsilon \gg \hbar\omega_{LO}$ теряют свою энергию при испускании продольных оптических (LO) фононов. Время внутризонного испускания оптического фонона τ_{LO} можно определить, зная τ . Энергия возбужденных электронов составляет ~ 450 мэВ, и, если принять энергию продольного оптического фонона равной $\hbar\omega_{LO} = 30$ мэВ

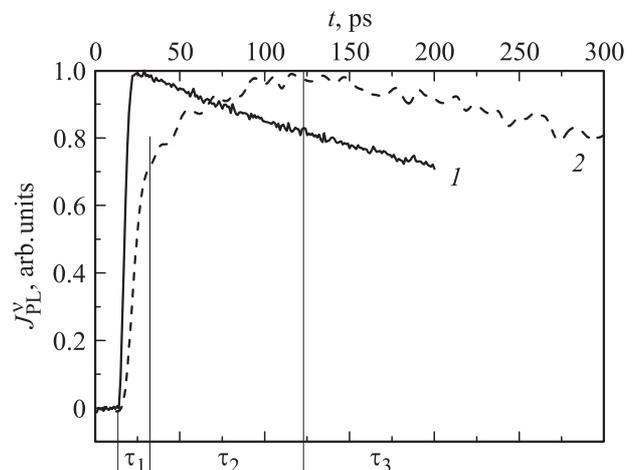


Рис. 2. Нормированные зависимости интенсивности ФЛ J_{PL}^v от времени t при $T = 300$ К при оптической накачке в КЯ шириной 5 нм (1) и при накачке в барьере (2).

(как в GaSb), нетрудно найти: $\tau_{LO} \approx 0.25$ пс. Эта оценка является достаточно грубой, так как релаксация энергии электронов может происходить также при эмиссии LO-фононов подрешеток GaAs, InSb, InAs с энергиями фононов соответственно 36, 25 и 30 мэВ. Кроме того, релаксация энергии электронов, имеющих после испускания последнего фонона энергию $k_B T < \varepsilon < \hbar\omega_{LO}$ (k_B — постоянная Больцмана), может происходить за время релаксации энергии τ_ε при межэлектронных столкновениях с последующим испусканием LO-фонона [8]. При высоких концентрациях носителей заряда время τ_ε примерно равно τ_{LO} . Отметим также, что при взаимодействии электронов с импульсом излучения длительностью $\Delta t = 150$ фс электроны возбуждаются в состоянии с диапазоном энергий $\Delta\varepsilon \approx \hbar/\Delta t$. Вклад в расширение этого диапазона вносит также гофрировка изоэнергетических поверхностей.

Для структуры с КЯ InGaAsSb/InAlGaAsSb энергия кванта излучения накачки (1.17 эВ) превышала ширину запрещенной зоны барьера (0.72 эВ). При этом возбуждение электронно-дырочных пар происходило также в области барьера. В этом случае зависимость нарастания интенсивности ФЛ имеет другой характер. При использовании накачки в барьере время нарастания ФЛ определяется не только временем энергетической релаксации электронов в КЯ, но и временем захвата носителей заряда в КЯ. На рис. 2 (кривая 2) представлена нормированная зависимость интенсивности ФЛ J_{PL}^v от времени при комнатной температуре в структуре InGaAsSb/InAlGaAsSb. Более подробно результаты исследования динамики ФЛ в этой структуре изложены в работе [6].

При возбуждении неравновесных электронов и дырок в области барьера участок нарастания ФЛ содержит наряду с быстрой также и инерционную часть. Природа быстрого нарастания ФЛ, так же как и в случае структур первого типа, связана с процессами захвата носителей заряда в КЯ. Наличие инерционного участка может быть объяснено особенностями захвата носителей заряда в КЯ из барьера.

Изменение интенсивности ФЛ со временем при условии накачки в барьер (рис. 2, кривая 2) было аппроксимировано следующей зависимостью, содержащей три экспоненты:

$$J_{PL}^v(t) = \left\{ J_1 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right] + J_2 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right] \right\} \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right), \quad (3)$$

где τ_1 — время быстрого нарастания ФЛ после действия импульса, τ_2 — время инерционного участка нарастания ФЛ, τ_3 — характерное время спада интенсивности ФЛ. Отметим, что время спада интенсивности ФЛ не совпадает со временем жизни носителей заряда, которое определяется из временной зависимости концентрацией носителей заряда (см. далее).

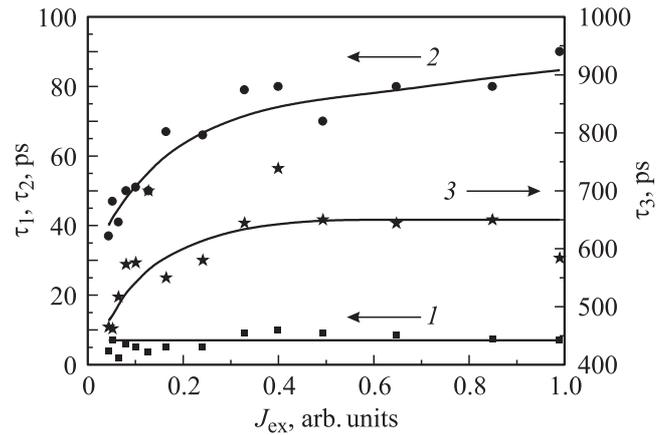


Рис. 3. Зависимости характерных времен кривой $J_{PL}^v(t)$ от интенсивности накачки при оптической накачке в барьере структуры с КЯ InGaAsSb/InAlGaAsSb: 1 — время быстрого нарастания ФЛ τ_1 , 2 — время инерционного участка нарастания ФЛ τ_2 , 3 — время спада ФЛ τ_3 .

На рис. 3 представлены зависимости этих трех времен от интенсивности накачки J_{ex} . При возбуждении носителей заряда в области барьера поглощение возбуждающего излучения происходит также и в области квантовых ям. Время τ_1 быстрого нарастания ФЛ определяется процессами релаксации носителей заряда, рожденных в квантовой яме, на нижний уровень размерного квантования $e1$. Основным механизмом релаксации, как и в первом случае, является внутризонное испускание полярных оптических фононов. Время τ_1 составляет величину порядка ~ 7 пс (рис. 3), энергия возбужденных электронов составляет 755 мэВ. Таким образом, если принять энергию продольного оптического фонона равной 30 мэВ (как в GaSb), можно считать, что происходит испускание 25 фононов, откуда следует: $\tau_{LO} \approx 0.28$ пс. Несмотря на различный состав слоев и гетерограниц структур и упрощения процедуры оценок значения времени испускания LO-фонона в схожих структурах с КЯ InGaAsSb/InAlGaAsSb и InGaAsSb/AlGaAsSb оказались примерно равными.

Время медленного нарастания интенсивности ФЛ τ_2 может определяться процессами диффузии и баллистического пролета носителей заряда из барьера в область квантовой ямы, где происходит их захват. Это время существенно превышает время τ_1 , определяемое внутризонной релаксацией. Увеличение времени τ_2 с ростом интенсивности накачки (см. рис. 3), возможно, связано с замедлением процессов диффузии электронов при высоких уровнях накачки. С ростом интенсивности накачки увеличивается концентрация электронов в области барьера, что приводит к росту рассеяния при столкновениях носителей заряда и уменьшению подвижности и коэффициента диффузии электронов. Дополнительным фактором, приводящим к увеличению интенсивности рассеяния, является рождение неравновесных оптиче-

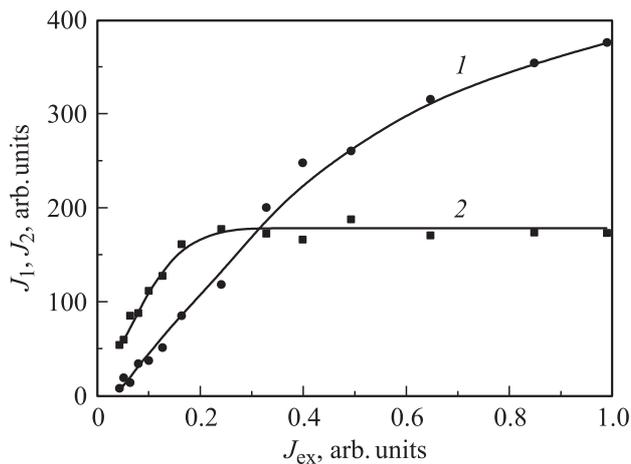


Рис. 4. Зависимости амплитуд быстрого (1) и медленного (2) нарастания ФЛ от интенсивности накачки в барьере структуры с КЯ InGaAsSb/InAlGaAsSb — см. формулу (3).

ских фононов высокоэнергетичными неравновесными электронами.

На рис. 4 представлены зависимости, определяющие амплитуды быстрой и медленной составляющих роста зависимости интенсивности ФЛ от времени (см. формулу (3)). Амплитуда быстрой составляющей J_1 , определяемой внутризонной энергетической релаксацией возбужденных электронов, примерно пропорциональна интенсивности накачки и отклоняется от этой зависимости только при больших интенсивностях. Рост амплитуды медленной составляющей J_2 с увеличением интенсивности накачки значительно замедляется, и зависимость выходит на насыщение. Следует также отметить, что при небольших уровнях возбуждения амплитуда медленной составляющей J_2 больше, чем амплитуда быстрой составляющей J_1 . Это связано с тем, что значительная часть носителей заряда поступает в КЯ из барьера. С ростом накачки доля носителей заряда, поступающих из барьера, уменьшается, что может объясняться уменьшением поглощения возбуждающего излучения из-за динамического эффекта Бурштейна–Мосса. Интенсивное возбуждение неравновесных электронов и дырок осуществляется коротким импульсом излучения накачки с длительностью $\Delta t = 150$ фс. За это время электроны и дырки не успевают покинуть энергетические состояния, в которых они оказались после поглощения кванта излучения, поскольку характерное время релаксации энергии превышает эту величину. Таким образом, носители заряда, рожденные в начале импульса накачки, препятствуют поглощению излучения в конце этого импульса. Это приводит к уменьшению среднего коэффициента поглощения за время действия импульса. В результате с ростом интенсивности накачки излучение накачки проникает все глубже. Между тем эффективный сбор неравновесных электронов в КЯ осуществляется из области, ограниченной внешними барьерами AlGaAsSb. С ростом интенсивности накачки

из-за уменьшения коэффициента поглощения доля электронов, рождающихся в этой области, уменьшается, что и приводит к уменьшению доли инерционной составляющей в общем росте интенсивности ФЛ.

Покажем, что интенсивность излучения накачки достаточно велика для проявления эффекта Бурштейна–Мосса. Для заданной максимальной интенсивности накачки объемная концентрация неравновесных электронов в барьере составляет $\sim 2.6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ в приближении, что каждый фотон рождает электронно-дырочную пару. Плотность же квантовых состояний зоны проводимости в полосе энергий, соответствующих конечным состояниям электронов, с учетом уширения энергии кванта лазерного импульса составляет $\sim 2.8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Полученные с помощью такой оценки величины, свидетельствуют о наличии эффекта Бурштейна–Мосса и уменьшении среднего коэффициента поглощения за время действия импульса.

Анализ участка спада интенсивности ФЛ $J_{PL}^v(t)$, характеризующегося временем τ_3 , позволяет найти времена жизни неравновесных носителей заряда, связанные с различными механизмами рекомбинации.

Скорость рекомбинации R в структурах с различной шириной КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb находилась из решения скоростного уравнения в предположении, что на начальной стадии релаксации концентрация электронов n пропорциональна интенсивности накачки J_{ex} :

$$\frac{dn}{dt} = -nR(n), \quad (4)$$

$$n|_{t \approx 0} \equiv n_0 \propto J_{ex}; \quad (5)$$

$$\begin{aligned} R(n) &= -\frac{1}{n} \frac{dn}{dt} = -\frac{1}{J_{ex}} \frac{dJ_{ex}}{dJ_{PL}^v} \frac{dJ_{PL}^v}{dt} \\ &= -\frac{1}{J_{ex}} \left(\frac{dJ_{PL}^v}{dJ_{ex}} \right)^{-1} \frac{dJ_{PL}^v}{dt}. \end{aligned} \quad (6)$$

Из формулы (6) видно, что при расчете скорости рекомбинации необходимо учитывать зависимость интенсивности ФЛ от интенсивности накачки. Рассмотрим эту зависимость для разных уровней оптической накачки при определенной выделенной длине волны.

При малых интенсивностях накачки распределение носителей заряда в квантовой яме описывается невырожденной статистикой. Таким образом, можно утверждать, что в этом случае интенсивность ФЛ J_{PL}^v прямо пропорциональна концентрации электронов и дырок, следовательно, производная интенсивности ФЛ по интенсивности накачки будет линейно зависеть от J_{ex} .

С увеличением уровня накачки происходит вырождение электронного газа, интенсивность ФЛ больше не зависит от концентрации электронов и меняется пропорционально концентрации дырок. Зависимость $J_{PL}^v(J_{ex})$ имеет линейный характер, а производная этой зависимости является постоянной величиной, не зависящей от накачки.

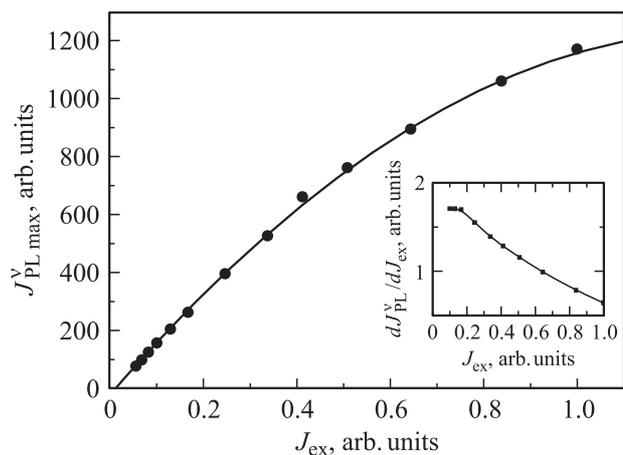


Рис. 5. Зависимость интенсивности ФЛ $J_{PL,max}^v$ в максимуме кривой $J_{PL}^v(t)$, от интенсивности накачки при $T = 77$ К для образца с КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb шириной 5 нм. На вставке — производная интенсивности ФЛ по интенсивности накачки.

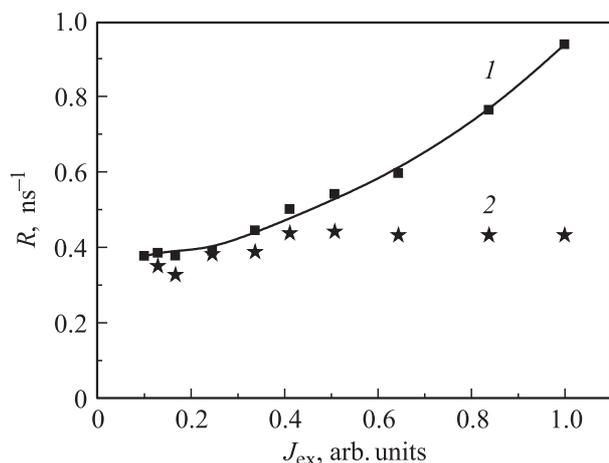


Рис. 6. Зависимость скорости рекомбинации от интенсивности накачки при $T = 77$ К для образцов с шириной КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb 5 (1) и 7 нм (2).

Наконец, при дальнейшем увеличении интенсивности накачки происходит вырождение и дырочного газа. Интенсивность ФЛ перестает зависеть от концентрации электронов и дырок, производная dJ_{PL}^v/dJ_{ex} уменьшается и стремится к нулю.

Зная из эксперимента зависимость J_{PL}^v от J_{ex} (см. рис. 5), можно найти зависимость ее производной от уровня накачки (см. вставку к рис. 5). Видно, что производная в данном интервале накачки не постоянна, и ее надо учитывать при расчете скорости рекомбинации (формула (6)).

Результат определения R как функции J_{ex} для двух образцов приведен на рис. 6 для двух структур с разной шириной КЯ. Видно, что скорость рекомбинации R в структуре с шириной КЯ 5 нм увеличивается с ростом уровня возбуждения примерно квадратично,

что соответствует вкладу в рекомбинацию оже-процессов. В подобной структуре с шириной КЯ 7 нм и в остальных структурах такого роста нет. Отличием структуры с шириной КЯ 5 нм является энергетический спектр, в котором выполняется условие резонансной оже-рекомбинации (1). Таким образом, увеличение скорости рекомбинации с ростом интенсивности накачки в структуре с шириной КЯ 5 нм может быть связано с резонансной оже-рекомбинацией [3]. Вклад нерезонансных оже-процессов в вероятность рекомбинации для всех структур мал из-за относительно невысокой концентрации возбужденных в квантовых ямах носителей заряда.

По скорости рекомбинации при малых уровнях возбуждения было определено время жизни носителей заряда τ_{SHR} , связанное с рекомбинацией Шокли–Рида–Холла. Обнаружена тенденция к слабому уменьшению этого времени (примерно от 3.5 до 2 нс при $T = 77$ К) с уменьшением ширины КЯ, что можно объяснить влиянием несовершенства гетерограниц.

4. Заключение

Исследованы зависимости интенсивности фотолюминесценции в пикосекундном и наносекундном временных диапазонах в квантовых ямах InGaAsSb/AlGaAsSb с различными барьерами и с различной шириной квантовых ям. Анализ временных зависимостей ФЛ позволил определить времена захвата носителей заряда в квантовые ямы, времена энергетической релаксации, времена жизни, в том числе и время жизни по отношению к резонансной оже-рекомбинации при различных уровнях оптического возбуждения. Показано, что при определенных параметрах в структурах с КЯ InGaAsSb/AlGaAsSb наблюдается резонансная оже-рекомбинация.

Работа выполнена при поддержке ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 годы, грантов РФФИ, правительства Санкт-Петербурга и NSF (Grant No. DMR0710154).

Список литературы

- [1] G. Belenky, L. Shterengas, G. Kipshidze, T. Hosoda. IEEE J. Select. Topics Quant. Electron., **17** (5), 1426 (2011).
- [2] L. Shterengas, G. Belenky, T. Hosoda, G. Kipshidze, S. Suchalkin. Appl. Phys. Lett., **93**, 011 103 (2008).
- [3] Л.В. Данилов, Г.Г. Зегря. ФТП, **42** (5), 566 (2008).
- [4] D.-J. Jang, Michael E. Flatté, C.H. Grein, J.T. Olesberg, T.C. Hansenberg, Thomas F. Boggess. Phys. Rev. B, **58**, 13 047 (1998).
- [5] J. Shah. IEEE J. Quant. Electron., **24**, 276 (1988).
- [6] Д.А. Фирсов, Л. Shterengas, G. Kipshidze, В.Л. Зерова, Т. Hosoda, П. Тхумронгсилапа, Л.Е. Воробьев, G. Belenky. ФТП, **44** (1), 53 (2010).
- [7] A. Amo, M.D. Martin, L. Viña, A.I. Toropov, K.S. Zhuravlev. Phys. Rev. B, **73**, 035 205 (2006).
- [8] Б.Л. Гельмонт, Р.И. Лягушенко, И.Н. Ясевич. ФТТ, **14** (2), 533 (1972).

Редактор Л.В. Шаронова

Dynamics of photoluminescence in nanostructures with InGaAsSb/AlGaAsSb quantum wells

*M.Ya. Vinnichenko, D.A. Firsov, L.E. Vorobjev,
M.O. Mashko, L. Shterengas⁺, G. Belenky⁺*

St. Petersburg State Polytechnical University,
195251 St. Petersburg, Russia

⁺ Department of Electrical and Computer Engineering,
State University of New York at Stony Brook,
11794 New York, USA

Abstract Dependences of photoluminescence intensity upon time were studied in InGaAsSb/AlGaAsSb quantum wells with different compositions of the barrier solid solution and with different width of the quantum wells. From the analysis of photoluminescence dynamics we estimated the time of charge carrier capture in quantum wells, the energy relaxation times, lifetimes, including the lifetime related to resonant Auger recombination. It was shown that under certain design of nanostructures resonant Auger recombination can be observed.