Письма в ЖЭТФ, том 83, вып. 4, с. 173 – 177 

# Пикосекундная релаксация носителей в гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe

*А. А. Максимов[1], И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев*[2], М. Байер*, А. Вааг+[3]*

*Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия*

**Experimentelle Physik II, University of Dortmund, D-44227 Dortmund, Germany*

*+Institute of Semiconductor Technology, Braunschweig Technical University, D-38106 Braunschweig, Germany*

Поступила в редакцию 27 декабря 2005 г.

На основании исследования быстрой кинетики люминесценции с высоким временным разрешением изучена релаксация фотовозбужденных носителей в процессе формирования пространственно разделенных слоев электронов и дырок в гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe. Измерены времена ухода дырок $\tau$ из слоя ZnSe в структурах с различной толщиной слоя ZnSe ($\tau = 2.5$, 7.5 и 23 пс для толщин $d = 10$, 15 и 20 нм, соответственно). Показано, что увеличение времени $\tau$ может быть объяснено уменьшением скорости ухода фотовозбужденных дырок из нижнего надбарьерного уровня в слое ZnSe в слой BeTe с ростом толщины слоя ZnSe.

PACS: 73.21.–b, 78.66.Hf, 78.67.De

Гетероструктуры 2-го типа являются чрезвычайно интересными квазидвумерными системами, отличительная особенность которых – наличие минимумов энергии для электронов и дырок в соседних слоях структуры, что существенно влияет на их оптические свойства [1 – 3]. В таких системах в процессе релаксации свободных носителей по энергии происходит их пространственное разделение, в результате чего формируются чередующиеся слои электронов и дырок.

В настоящей работе проведено детальное изучение пикосекундной кинетики формирования электронно-дырочных слоев на примере структур 2-го типа ZnSe/BeTe.

Структуры с квантовыми ямами (КЯ) на основе ZnSe/BeTe являются широкозонными II-VI гетероструктурами 2-го типа с большой величиной локализующего потенциала как для электронов в слое ZnSe ($\gtrsim 2.2$ эВ), так и для дырок ($\simeq 0.8$ эВ), минимум энергии которых находится в слое BeTe [4]. Зонная схема гетероструктур ZnSe/BeTe представлена на рис.1a. Величина запрещенной зоны в слое ZnSe составляет $E_g^{\mathrm{ZnSe}} \simeq 2.8$ эВ, тогда как в слое BeTe она существенно больше: $E_g^{\mathrm{BeTe}} \simeq 4.5$ эВ [5]. Сильное различие в величине запрещенной зоны позволяет при фотовозбуждении генерировать электронно-дырочные пары только в слое ZnSe. Затем, при последующей релаксации по энергии, происходит рассеяние дырок из слоя ZnSe в слой BeTe.

Пространственно прямые оптические переходы – переходы 1-го типа (стрелка DT на зонной схеме на рис.1a) реализуются в структурах 2-го типа между состояниями электронов и дырок, локализованными в одном и том же слое. При этом один из носителей, участвующих в таком переходе, находится в нижайшем возбужденном состоянии в КЯ, а другой – на нижнем надбарьерном уровне. Наличие надбарьерных уровней было продемонстрировано в работах [6 – 10]. В случае структуры ZnSe/BeTe носителем, который находится в надбарьерном состоянии, является фотовозбужденная дырка. Исследование надбарьерных дырочных состояний в структурах на основе ZnSe/BeTe было проведено в [11, 12]. Существование фотовозбужденной дырки на нижайшем надбарьерном уровне проявляется в наличии полосы в спектре фотолюминесценции (ФЛ), отвечающей излучательной рекомбинации фотовозбужденных электронов и дырок в слое ZnSe в области энергий $E_{g1} \approx 2.8$ эВ (полоса DT на рис.1b). Таким образом, прямые измерения кинетики ФЛ для полосы DT открывают возможность получения данных о скорости ухода дырки из надбарьерного состояния в соседний слой гетероструктуры. Как ранее нами было показано в работе [13], для спектральной полосы прямого перехода наблюдается существенное возрастание интенсивности ФЛ с ростом толщины слоя ZnSe, что свидетельствует о зависимости скорости ухода фотовозбужденной

[1] e-mail: maksimov@issp.ac.ru

[2] Также: Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия.

[3] M. Bayer, A. Waag.

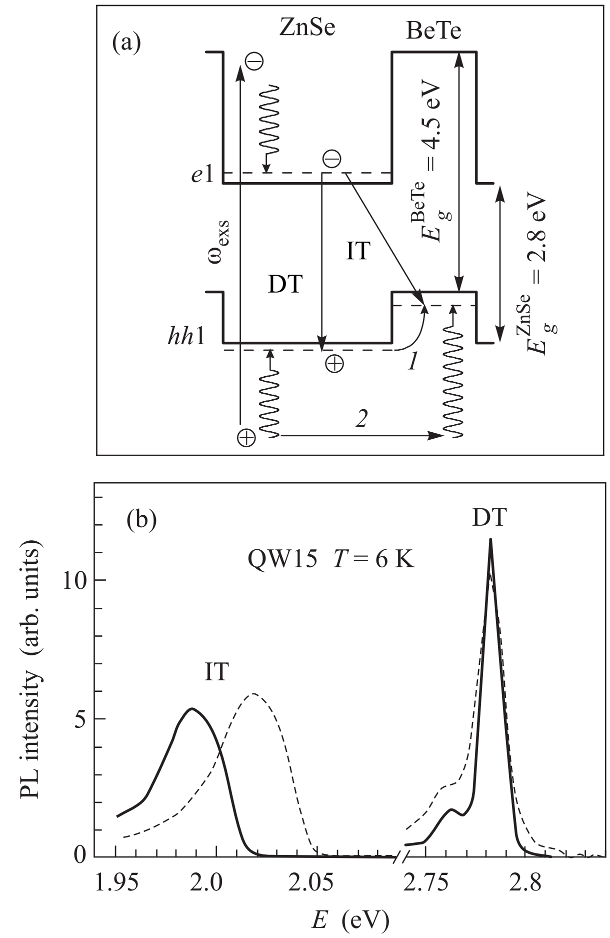


Рис.1. (a) – зонная схема гетероструктур 2-го типа ZnSe/BeTe. Волнистые стрелки отвечают безызлучательным переходам электронов и дырок с испусканием оптических и акустических фононов; $e1$ – нижний электронный уровень и $hh1$ – нижний надбарьерный уровень дырки в слое ZnSe. (b) – спектры ФЛ ZnSe/BeTe при фотовозбуждении непрерывным He-Cd – лазером (сплошная кривая) и 2-ой гармоникой пикосекундного Ti-Sp лазера (точечная кривая)

дырки из слоя ZnSe от его толщины. Подобная зависимость интенсивности ФЛ для прямых переходов 1-го типа в гетероструктурах 2-го типа CdSe/ZnTe от толщины слоя CdSe была изучена в работе [14].

Непрямые в пространстве оптические переходы (стрелка IT на зонной схеме рис.1a и, соответственно, спектральная полоса IT на рис.1b), отвечающие излучательной рекомбинации фотовозбужденных электронов в слое ZnSe и дырок в слое BeTe, находятся в спектральной области $\approx 2.0$ эВ [4, 12] при низких уровнях фотовозбуждения. С ростом интенсивности фотовозбуждения из-за возрастания плотности носителей тока в пространственно разделенных электронно-дырочных слоях происходит изгиб зон, в результате чего наблюдается фиолетовый сдвиг полосы ФЛ для непрямого перехода, который достигает величины $\approx 0.5$ эВ при высоких уровнях оптической накачки [3]. Фиолетовый сдвиг сопровождается уменьшением времени излучательной рекомбинации непрямого перехода от величины 100 нс при низких уровнях накачки вплоть до 0.1 нс при максимально высоких уровнях возбуждения [15]. Кинетика формирования и форма спектральной полосы ФЛ, отвечающей излучательной рекомбинации электронов и дырок, находящихся в разных слоях гетероструктуры, позволяет проследить за релаксацией дырок в слое BeTe с КЯ для дырок.

Исследования кинетики ФЛ пространственно прямых переходов проводились на гетероструктурах 2-го типа на основе ZnSe/BeTe. Структуры были выращены в Университете г. Вюрцбург методом MBE на подложках GaAs [11, 12] с ориентацией (001) и представляли собой сверхрешетки, состоящие из чередующихся слоев ZnSe и BeTe: образец QW20 – $(20/10)\times10$, QW15 – $(15/7.5)\times5$, QW10 – $(10/5)\times5$ (первой цифрой указана толщина слоя ZnSe в нм, второй – слоя BeTe, затем – число периодов).

Образцы помещались в парах гелия в оптическом термостате с температурой, регулируемой в диапазоне $T = 4.5-100$ K.

Возбуждение ФЛ осуществлялось с помощью импульсов 2-й гармоники Ti–Sp-лазера, работавшего в пикосекундном режиме (длительность импульса $\approx 1$ пс, частота повторений импульсов 76 МГц, средняя мощность 2-й гармоники составляла $\approx 400$ мкВт). Лазерное излучение на длине волны $\lambda \simeq 420$ нм ($\hbar\omega_{\text{exc}} \simeq 2.952$ эВ) фокусировалось в пятно диаметром $\approx 50$ мкм на поверхности образца и поглощалось только в слоях ZnSe (так как величина запрещенной зоны в BeTe $E_g^{\text{BeTe}} \simeq 4.5$ эВ).

Разрешенные по времени спектры ФЛ регистрировались с помощью спектрометра с низкой дисперсией (с дифракционной решеткой 300 шт/мм) и со специально ограниченной апертурой. Спектрометр был сопряжен со стрик-камерой с временным разрешением $\simeq 2$ пс. В целом установка позволяла проводить прямые измерения времен затухания импульсов ФЛ для различных спектральных полос вплоть до 5 пс, а с использованием деконволюции импульсов свечения можно было проводить оценку времен затухания до величин $\approx 1.5$ пс.

При фотовозбуждении электронно-дырочных пар в слое ZnSe коротким лазерным импульсом в процессе их быстрой релаксации по энергии электроны (при относительно низких плотностях носителей) заселяют нижайший уровень $e1$ КЯ в ZnSe, тогда как дырки релаксируют либо до нижайшего надбарьерного уровня в ZnSe $hh1$, либо могут частично (стрелки *2* на рис.1a) перейти в слой BeTe. Время затухания ФЛ для прямого перехода будет определяться временем жизни $\tau$ фотовозбужденных дырок на нижайшем надбарьерном уровне в слое ZnSe. Время жизни $\tau$ определяется излучательным временем электронно-дырочной рекомбинации $\tau_R$ в слое ZnSe, временем их безызлучательной рекомбинации $\tau_{NR}$ и временем ухода фотовозбужденных дырок $\tau_{\rm rel}$ (стрелка *1* на рис.1a) из слоя ZnSe в слой BeTe:

$$1/\tau = 1/\tau_R + 1/\tau_{NR} + 1/\tau_{\rm rel}. \qquad (1)$$

На рис.2a представлены данные по затуханию ФЛ в области прямого оптического перехода для образцов QW20, QW15 и QW10, соответственно. Точками показаны данные эксперимента. Тонкие прямые отвечают одноэкспоненциальному закону затухания ФЛ:

$$I_{PL}(t) = I_{PL}(t=0)\cdot\exp(-t/\tau), \qquad (2)$$

с постоянными времени 23, 7.5 и 2.5 пс. Легко видеть, что для образцов QW20 и QW15 экспериментальные данные (сплошные кривые) хорошо описываются зависимостью (2) с временами $\tau = 23$ и 7.5 пс, соответственно. В случае образца QW10 для корректного определения величины $\tau$ необходимо было учитывать аппаратную функцию временного разрешения регистрирующей системы. Значение времени затухания $\tau \simeq 2.5\pm1$ пс оценено путем деконволюции данных эксперимента.

На вставке рис.2a в двойной логарифмической шкале отложены экспериментально определенные времена затухания ФЛ для пространственно прямых оптических переходов в зависимости от толщины $d$ слоя ZnSe. Сплошная прямая отвечает зависимости $\tau \propto d^3$. Следует отметить, что для случая плоских зон и одиночного барьера для дырок простые оценки позволяют получить подобную зависимость $\tau \propto d^3$ для времени ухода $\tau_{\rm rel}$ надбарьерной дырки из барьера толщиной $d$. Действительно, для времени пролета $T$ надбарьерной дырки со скоростью $v \propto E_1^{1/2}$ барьера шириной $d$ имеем $T = d/v$ (см. схему на рис.2b). Учитывая, что для энергии нижайшего надбарьерного уровня $E_1$ при большом разрыве зон на интерфейсе $U_0 \gg E_1$ (как и в одиночной КЯ 1-го типа) имеем

$$E_1 = (\pi\hbar)^2/2m_h d^2 \propto 1/d^2, \qquad (3)$$

где $m_h$ – масса дырки, и, таким образом, $T \propto d^2$. Также для коэффициента прозрачности интерфейса

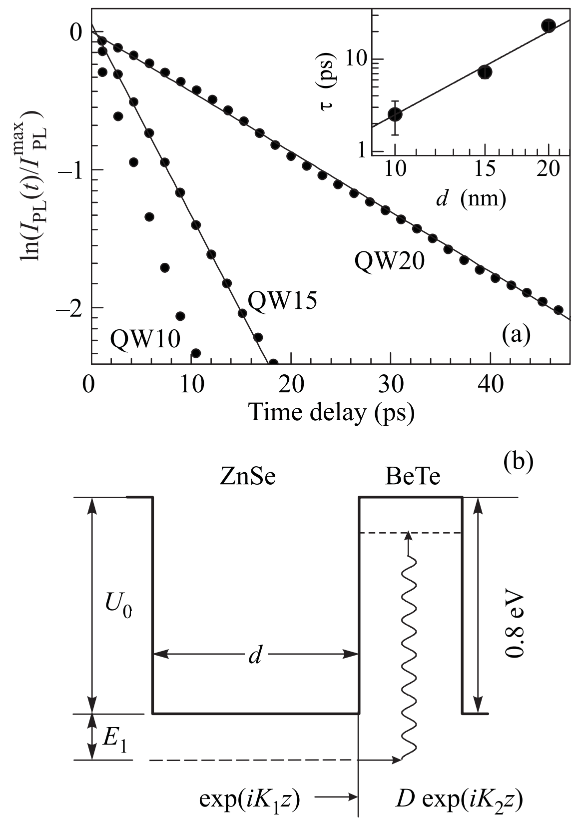


Рис.2.(a) Кривые затухания номированной интенсивности ФЛ в области прямых переходов $I_{PL}(t)$ в логарифмическом масштабе для образцов ZnSe/BeTe с различной толщиной $d$ слоя ZnSe (образцы QW20, QW15 и QW10 с $d$ = 20, 15 и 10 нм, соответственно). Точки – результаты эксперимента, сплошные прямые отвечают одноэкспоненциальному затуханию (2). На вставке в двойном логарифмическом масштабе точками показаны экспериментально определенные времена затухания ФЛ $\tau$ при различной толщине $d$ слоя ZnSe. Сплошная прямая отвечает зависимости $\tau(d) \propto d^3$; (b) схема релаксации фотовозбужденной дырки из надбарьерного состояния в слой BeTe

$D$ имеем $D \propto k_1 \propto E_1^{1/2}$ (см., например, [16]) и, следовательно, $D \propto 1/d$. Окончательно получаем для времени пролета носителя барьера и вылета в соседний слой $\tau_{\rm rel}$:

$$\tau_{\rm rel} \propto T/D \propto d^3. \qquad (4)$$

Проведенные нами численные расчеты величины $\tau_{\rm rel}$ для случая сверхрешеток ZnSe/BeTe при различных значениях $d$ показали, что имеет место более сложная зависимость, чем $\tau_{\rm rel} \propto d^3$. Тем не менее, для исследуемых образцов с конкретными параметрами результаты расчета хорошо согласуются с экспериментальными данными. Тот факт, что, с одной стороны, для всех исследуемых образцов затухание интенсивности полосы ФЛ, отвечающей прямому переходу, имеет одноэкпоненциальную зависимость, а с другой – определяется толщиной слоя ZnSe, позволяет заключить, что для всех исследуемых структур выполняется соотношение $\tau_{\rm rel} \ll \tau_R, \tau_{NR}$.

Обратимся теперь к особенностям формирования ФЛ в области пространственно непрямых переходов. На рис.3a представлены спектры ФЛ для образца

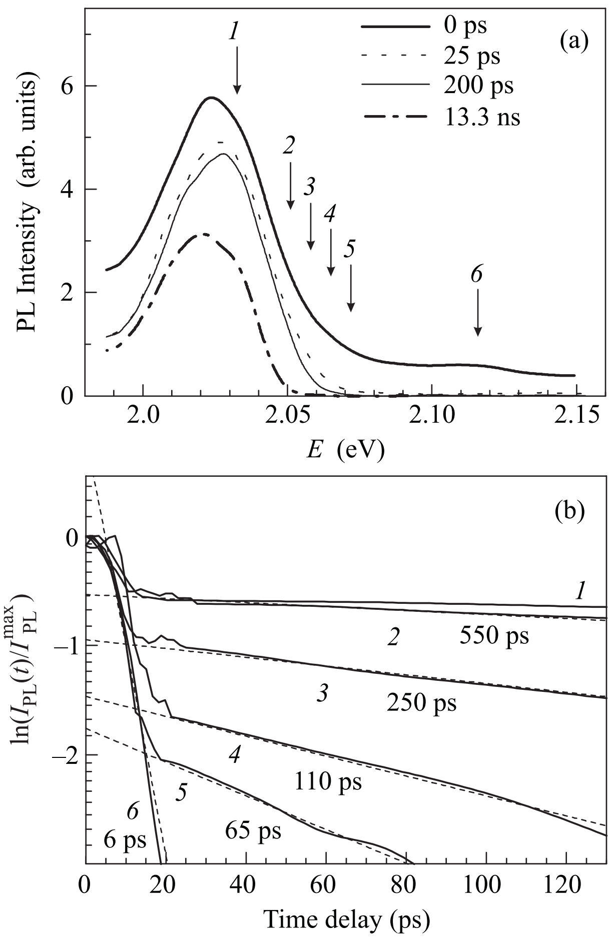


Рис.3. (a) Спектры ФЛ для образца QW15 при $T = 6$ K в области пространственно непрямых переходов в различные моменты времени после возбуждающего лазерного импульса; (b) кривые затухания (сплошные линии) интенсивности ФЛ в спектральных областях, отмеченных стрелками на рис.(a), пунктирные прямые отвечают экспоненциальному затуханию с указанными временами

QW15 в области пространственно непрямых переходов в различные моменты времени после возбуждающего лазерного импульса. Легко видеть, что в самый начальный момент на фиолетовом крыле спектральной полосы ФЛ, отвечающей непрямым переходам, имеется протяженный бесструктурный фон. На рис.3b представлены импульсы ФЛ на различных длинах волн, указанных на рис.3a стрелками. Длительность свечения на фиолетовом крыле (кривая *6* на рис.3b) полосы ФЛ, отвечающей пространственно непрямым оптическим переходам, существенно короче, чем в ее максимуме (кривая *1* на рис.3b). Учитывая, что наблюдаемый бесструктурный фон расположен в коротковолновой области полосы непрямого перехода, а также его очень быстрое время свечения, этот фон естественно отнести к горячей фотолюминесценции (ГФЛ), которая формируется в результате пространственно непрямой излучательной рекомбинации электронов в слое ZnSe и дырок в слое BeTe в процессе их релаксации по энергии. Задний фронт импульса свечения практически не изменяется на всем протяжении коротковолновой области ГФЛ в области энергий $E \approx 2.15 - 2.08$ эВ (кривая *6*) и хорошо описывается одноэкспоненциальным затуханием со временем затухания $\simeq 6$ пс. Как следует из решения кинетических уравнений для двухуровневой системы (которую можно считать хорошим приближением для рассматриваемой реальной системы), задний фронт импульса свечения всегда отвечает более длинному времени системы, тогда как передний фронт отражает наиболее короткое время. Характерное время релаксации дырки в двумерных структурах с участием либо LO-фонона, либо с испусканием высокочастотных акустических фононов, как правило, короче или близко по величине к $\approx 1$ пс [17]. Поэтому наблюдаемое более длинное время затухания $\simeq 6$ пс естественно отнести к скорости прихода “горячих” носителей в данное состояние.

Для структуры QW20 в коротковолновой области ГФЛ (интенсивность которой была заметно ниже, чем в QW15) время затухания составляет $\approx 20$ пс. Таким образом, времена затухания ГФЛ в структурах QW15 и QW20 близки по своей величине $\tau_{\rm rel}$ в данных структурах. Это указывает на то, что на начальном этапе быстрая релаксация фотовозбужденных дырок преимущественно происходит в слое ZnSe до нижайшего надбарьерного уровня, с которого затем дырки уходят в слой BeTe. Только меньшая доля дырок переходит в слой BeTe, не доходя до нижнего надбарьерного уровня в слое ZnSe (стрелки *2* на рис.1a). Тем не менее, этими процессами, по-видимому, определяются более короткие времена затухания ГФЛ (6 пс вместо 7.5 пс для образца QW15 и 20 пс вместо 23 пс для образца QW20) по сравнению со временами $\tau_{\rm rel}$.

В области более низких энергий $E \lesssim 2.075$ эВ на фиолетовом крыле в непосредственной близости к полосе ФЛ непрямого перехода в структуре QW15 (кривые *2 – 5* на рис.3b) наряду с быстрым ($\simeq 6$ пс) можно выделить и заметно более длинное время затухания. По мере уменьшения энергии как сама величина длинного времени затухания, так и относительный вклад более медленного свечения в общую кинетику ГФЛ непрерывно возрастает (см. пунктирные прямые на рис.3b). Длинные времена затухания (от $\simeq 65$ пс вплоть до 550 пс) естественно связать с временами жизни неравновесных высокочастотных акустических фононов, которые возникли в процессе релаксации горячих носителей. Взаимодействие носителей с неравновесными фононами приводит к формированию "горячего хвоста" распределения носителей в области энергий, отвечающих фиолетовому крылу ФЛ полосы непрямого перехода. Особенности кинетики ГФЛ в зависимости от спектрального положения на фиолетовом крыле полосы ФЛ отражают времена жизни и числа заполнения неравновесных фононов, актуальных для соответствующей области энергии.

В области еще более низких энергий вблизи максимума полосы ФЛ, отвечающей непрямому оптическому переходу, время затухания свечения становится характерным для излучательной рекомбинации пространственно разделенных электронов и дырок и составляет $\gtrsim 30$ нс.

Таким образом, проведенные исследования кинетики ФЛ в широкозонных гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe позволили прямыми измерениями определить времена релаксации $\tau_{\mathrm{rel}}$ фотовозбужденной дырки из надбарьерного уровня в ZnSe в слой BeTe и установить характер изменения $\tau_{\mathrm{rel}}$ от толщины слоя ZnSe. Обнаружена горячая ФЛ в области пространственно непрямых оптических переходов и показано, что время затухания ГФЛ определяется в основном временем ухода дырок из нижайшего надбарьерного уровня в слое ZnSe в слой BeTe. Более медленные времена затухания на фиолетовом крыле полосы ФЛ, отвечающей непрямым переходам, связываются с релаксацией неравновесных высокочастотных акустических фононов, возникших при релаксации горячих носителей.

Авторы выражают благодарность В.Д. Кулаковскому и С.А. Пермогорову за плодотворные дискуссии. Данная работа была выполнена при поддержке грантами Российского фонда фундаментальных исследований (# 04-02-16852 и # 05-02-17288), грантами DFG (DFG # 436 RUS 17/97/04 и DFG # 436 RUS 17/49/05) и INTAS (grant # 03-51-5266).

1. J. Feldmann, R. Sattmann, E.O. Göbel et al., Phys. Rev. Lett. **62**, 1892 (1989); J. Feldmann, J. Nunnenkamp, G. Peter et al., Phys. Rev. B **42**, 5809 (1990).
2. E. Finkman and R. Planel, Proc. of the 23rd on the Physics of Semiconductors (ICPS23), Eds. M. Scheffler, R. Zimmermann, **v. 3**, World Scientific, 1996, p. 1723.
3. С. В. Зайцев, В. Д. Кулаковский, А. А. Максимов и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 351 (1997).
4. A. Waag, F. Fisher, H.-J. Lugauer et al., J. Appl. Phys. **80**, 792 (1996).
5. M. Nagelstraßer, H. Dröge, H.-P. Steinrück et al., Phys. Rev. B **58**, 10394 (1998).
6. F. C. Zhang, N. Dai, H. Luo et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 3220 (1992).
7. H. Luo, W.C. Chou, N. Samarth et al., Solid State Commun. **85**, 691 (1993).
8. H. Luo, N. Dai, F. C. Zhang et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 1307 (1993).
9. F.C. Zhang, H. Luo, N. Dai et al., Phys. Rev. B **47**, 3806 (1993).
10. N. Dai, L.R. Ram-Mohan, H. Luo et al., Phys. Rev. B **50**, 18153 (1994).
11. A.V. Platonov, D.R. Yakovlev, U. Zehnder et al., Acta Physica Polonica A **92**, 1063 (1997).
12. A.V. Platonov, D.R. Yakovlev, U. Zehnder et al., J. Crystal Growth **184&185**, 801 (1998).
13. A.A. Maksimov, S.V. Zaitsev, I.I. Tartakovskii et al., Proc. of the 25th Intern. Conf. on the Physics of Semiconductors (ICPS25), Eds. N. Miura, T. Ando, Springer, Berlin, 2001, p. 637.
14. J. Haetty, E. H. Lee, H. Luo et al., Solid State Commun. **108**, 205 (1998).
15. A. A. Maksimov, S. V. Zaitsev, I. I. Tartakovskii et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 1231 (1999).
16. Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, т. **3**, М.: Наука, 1989.
17. F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona et al., Phys. Rev. B **53**, R7642 (1996).