

# Влияние внешнего электрического поля на кинетику рекомбинации фотовозбужденных носителей в гетероструктуре 2-го типа ZnSe/BeTe

Е. В. Филатов<sup>1)</sup>, А. А. Максимов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев<sup>+×</sup>, В. Вагг<sup>\*2)</sup>

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

<sup>+</sup> Experimentelle Physik II, Technische Universität Dortmund, 44227 Dortmund, Germany

<sup>×</sup> Физико-технический институт им. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

<sup>\*</sup> Institute of Semiconductor Technology, Braunschweig Technical University, D-38106 Braunschweig, Germany

Поступила в редакцию 23 ноября 2011 г.

Исследована кинетика излучательной рекомбинации фотовозбужденных электронов и дырок для пространственно прямого перехода в гетероструктуре 2-го типа ZnSe/BeTe при приложении внешнего электрического поля. Обнаружены значительное (в сотни раз) уменьшение интенсивности фотолюминесценции (ФЛ) и уменьшение длительности свечения прямого перехода при приложении электрического поля. Проведены численные расчеты уровней энергии и волновых функций электронов и дырок при приложении электрического поля к гетероструктуре ZnSe/BeTe. Показано, что наблюдаемое уменьшение интенсивности ФЛ и длительности свечения прямого перехода связано как с возрастанием времени излучательной рекомбинации, так и с увеличением скорости ухода фотовозбужденных дырок с надбарьерного уровня в слое ZnSe в слой BeTe.

В полупроводниковых гетероструктурах 2-го типа минимумы энергии для электронов и для дырок находятся в соседних слоях [1]. При фотовозбуждении таких структур в результате релаксации носителей по энергии происходит формирование чередующихся слоев разделенных электронов и дырок [2, 3]. При этом в спектре фотолюминесценции (ФЛ) гетероструктур наблюдается две полосы, отвечающие излучательной рекомбинации носителей при пространственно прямом и пространственно непрямом переходах [4–6].

Зонная структура гетероструктуры и концентрация фотовозбужденных носителей определяет как спектральный состав и интенсивность фотолюминесценции, так и кинетику для пространственно прямых и не прямых переходов. Как ранее было показано, в структурах ZnSe/BeTe при высокой плотности оптического возбуждения в результате пространственного разделения фотовозбужденных электронов и дырок возникают сильные электрические поля внутри гетероструктуры, модифицирующие ее зонную структуру [6]. Это приводит к сдвигу уровней энергии и изменению волновых функций носителей, определяющих характеристики оптических переходов. В отношении пространственно непрямого оптического

перехода наличие сильных электрических полей проявляется в гигантском фиолетовом сдвиге полосы ФЛ [6], сверхлинейном росте ее интенсивности [7] и значительном уменьшении времени свечения за счет более сильного перекрытия волновых функций рекомбинирующих электронов и дырок в соседних слоях [7–9]. Сильные электрические поля внутри структуры, возникающие при высокой концентрации разделенных носителей, приводят также к существенному увеличению длительности свечения пространственно прямого перехода. Более длинные времена в прямом переходе связаны с формированием метастабильного дырочного состояния и с увеличением времени излучательной рекомбинации носителей за счет уменьшения перекрытия волновых функций носителей, участвующих в прямом переходе [10, 11].

Модификация зонной структуры может быть вызвана не только сильными внутренними электрическими полями при высокой концентрации пространственно разделенных электронов и дырок, но и сильными внешними полями. Как показано в работе [12], при приложении внешнего электрического поля к гетероструктуре первого типа увеличивается время жизни фотовозбужденных носителей, поскольку электрон и дырка в основном состоянии локализуются у различных интерфейсов квантовой ямы и их волновые функции слабее перекрываются. Для гетероструктуры 2-го типа ZnSe/BeTe было показано, что прило-

<sup>1)</sup> e-mail: filatov@issp.ac.ru

<sup>2)</sup> A. Waag.

жение внешнего электрического поля приводит как к сдвигу энергии, так и к изменению интенсивности ФЛ непрямого перехода [13]. Поскольку направления поляризации ФЛ непрямого перехода на прямых и обратных интерфейсах ортогональны, приложение внешнего поля позволяет выделить вклад в ФЛ от интерфейсов каждого типа [13, 14].

Целью данной работы является изучение влияния внешнего электрического поля на ФЛ прямого перехода в гетероструктурах 2-го типа ZnSe/BeTe.

Структуры ZnSe/BeTe являются полупроводниковыми широкозонными  $A^2B^6$ -гетероструктурами с большой величиной локализирующего потенциала как для электронов в слое ZnSe ( $\approx 2.4$  эВ), так и для дырок в слое BeTe ( $\approx 0.8$  эВ), рис. 1, вставка. Большая величина локализирующего потенциала приводит к слабому перекрытию волновых функций про-

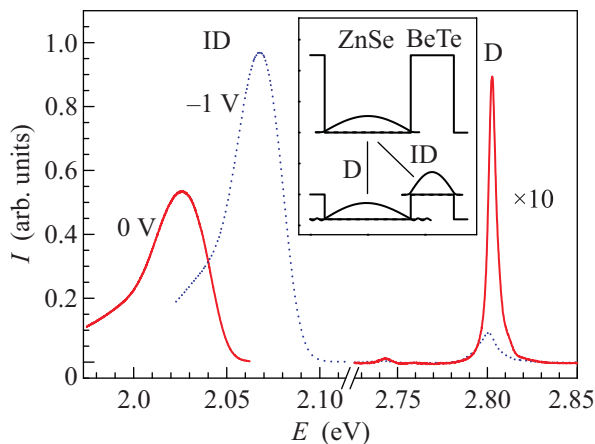


Рис. 1. Спектры ФЛ структуры ZnSe/BeTe при  $T \approx 5$  К и возбуждении непрерывным лазером с длиной волны  $\lambda = 325$  нм при слабой оптической накачке, при двух значениях приложенного напряжения:  $U = 0$  В (сплошная кривая),  $U = -1$  В (точечная). Спектры в области пространственно прямого оптического перехода для наглядности умножены на 10. На вставке приведена схема зон исследуемой структуры ZnSe/BeTe, волновые функции электрона в основном состоянии, дырки в основном и в надбарьерном состояниях, схема пространственно прямого (D) и непрямого (ID) оптических переходов

странственно разделенных электронов и дырок и, соответственно, к большим временам рекомбинации в пространственно непрямо оптическом переходе. Это позволяет создавать значительные концентрации разделенных носителей (до  $n \sim 10^{13}$  см $^{-2}$ ).

Сильное различие ширины запрещенной зоны в слоях гетероструктуры ZnSe/BeTe (2.8 эВ в ZnSe и 4.5 эВ в BeTe) позволяет избирательно генерировать фотовозбужденные электронно-дырочные пары в сло-

ях ZnSe. Нерезонансное фотовозбуждение структуры ZnSe/BeTe сопровождается релаксацией электронов и дырок по энергии. Фотовозбужденные в слое ZnSe электроны релаксируют в свое основное состояние, которое находится в слое ZnSe. Несмотря на то что основное состояние дырок находится в слое BeTe, они могут существовать в надбарьерном состоянии [15], локализованном в слое ZnSe. Основным каналом релаксации фотовозбужденных дырок по энергии является переход на надбарьерный уровень энергии в слое ZnSe с последующей релаксацией в основное дырочное состояние в слое BeTe. Пока фотовозбужденная дырка находится в надбарьерном состоянии, она излучательно рекомбинирует с электроном в пространственно прямом (D) переходе, а после релаксации в основное состояние в слое BeTe дырка рекомбинирует в пространственно непрямо (ID) оптическом переходе (рис. 1, вставка).

Следует ожидать, что при приложении внешнего электрического поля к структуре ZnSe/BeTe изменятся параметры релаксации фотовозбужденных дырок и это окажет влияние на кинетику прямого перехода.

Как показано в работе [12], при приложении поперечного электрического поля к одиночной квантовой яме наклон дна зоны проводимости и потолка валентной зоны приводит к локализации электрона и дырки вблизи различных интерфейсов квантовой ямы. Уменьшение перекрытия волновых функций электрона и дырки в основном состоянии приводит к увеличению времени излучательной рекомбинации носителей в квантовой яме на порядки.

В одиночной квантовой яме первого типа время излучательной рекомбинации носителей  $\tau_{\text{rad}}$  определяет длительность свечения оптического перехода, в силу чего его можно измерить непосредственно. В отличие от такой системы в гетероструктуре 2-го типа время  $\tau_{\text{rad}}$  для электрона и дырки в прямом переходе является лишь одним из факторов, определяющих кинетику релаксации фотовозбужденной дырки, и в общем случае его величина не может быть определена с помощью прямых измерений.

В структуре ZnSe/BeTe время  $\tau$  жизни дырки в надбарьерном состоянии определяется конкуренцией между процессами излучательной рекомбинации носителей в ZnSe с характерным временем  $\tau_{\text{rad}}$ , релаксации дырки из надбарьерного состояния в основное в слое BeTe со временем  $\tau_{\text{rel}}$  и безизлучательной рекомбинации носителей ( $\tau_{nr}$ ) [2]:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}} + \frac{1}{\tau_{\text{rel}}} + \frac{1}{\tau_{nr}}. \quad (1)$$

Время безызлучательной рекомбинации  $\tau_{nr}$  намного превосходит времена  $\tau_{rel}$  и  $\tau_{rad}$  [2, 7]. Поэтому оно не влияет на время жизни дырки в слое ZnSe.

В пределе плоских зон время излучательной рекомбинации электрона и дырки в ZnSe можно оценить как  $\tau_{rad} \simeq 40$  пс [16]. Время ухода дырки в слой BeTe зависит от толщин слоев гетероструктуры и составляет от  $\tau_{rel} < 2$  пс до  $\tau_{rel} \simeq 20$  пс для структур ZnSe/BeTe с толщинами слоя ZnSe от 10 до 20 нм [2, 11]. Таким образом, в структурах ZnSe/BeTe с толщинами слоя ZnSe до 20 нм время  $\tau$  жизни дырки в надбарьерном состоянии при низкой плотности оптического возбуждения в основном определяется временем  $\tau_{rel}$  ухода дырки в слой BeTe [2].

С другой стороны, интенсивность ФЛ прямого перехода определяется отношением времени жизни дырки в слое ZnSe к времени излучательной рекомбинации носителей в ZnSe:  $I_D \propto \tau/\tau_{rad}$ .

Таким образом, для получения информации о временах  $\tau_{rel}$  и  $\tau_{rad}$  при релаксации фотовозбужденных дырок в ZnSe/BeTe необходимы согласованные измерения как длительности свечения прямого перехода, так и его интенсивности.

Времена  $\tau_{rel}$  и  $\tau_{rad}$  являются функциями концентрации разделенных носителей  $n$ . В данной работе мы ограничимся только случаем низких плотностей оптического возбуждения и, соответственно, низких концентраций  $n$ , при которых  $\tau_{rel}$  и  $\tau_{rad}$  практически не зависят от  $n$ .

При приложении электрического поля к гетероструктуре необходимо независимым образом оценивать напряженность электрического поля непосредственно внутри структуры. В структуре ZnSe/BeTe внутренним “вольтметром” может служить спектральное положение полосы ФЛ непрямого перехода. Поскольку в непрямом переходе участвуют пространственно разделенные электроны и дырки, приложение электрического поля приводит к значительным спектральным сдвигам полосы ФЛ [13].

Исследуемая гетероструктура была выращена методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке из  $n$ -допированного (до  $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) GaAs с ориентацией (001). Она представляет собой сверхрешетку из 5 периодов чередующихся слоев ZnSe толщиной 15 нм и BeTe толщиной 7.5 нм. Соотношение толщин слоев 2:1 выбрано для взаимной компенсации упругих напряжений в соседних слоях [17].

Напряжение к структуре прикладывалось между проводящей подложкой и напыленным на гетероструктуру полупрозрачным слоем золота толщиной  $\simeq 5$  нм. Сама подложка была заземлена.

Исследования проводились в оптическом криостате при низких температурах: либо в парах жидкого гелия ( $T \approx 5 \text{ K}$ ), либо в сверхтекучем гелии ( $T \approx 1.5 \text{ K}$ ). Фотовозбужденные носители генерировались как непрерывным, так и импульсным оптическим возбуждением. Для режима непрерывного возбуждения использовался He-Cd лазер с длиной волны генерации  $\lambda = 325 \text{ нм}$ . При этом ФЛ регистрировалась с помощью спектрометра с CCD-камерой.

Импульсное возбуждение ФЛ осуществлялось 2-й гармоникой Ti:Sa лазера ( $\lambda = 382 \text{ нм}$ ), работающего в режиме самосинхронизации мод с длительностью импульсов  $\sim 80$  фс. Фотолюминесценция регистрировалась с помощью спектрометра, оснащенного стрик-камерой, с временным разрешением  $\simeq 2.0$  пс.

На рис. 1 показаны спектры ФЛ в области прямого и непрямого переходов при двух различных значениях приложенного напряжения. В области непрямого перехода заметен сильный сдвиг энергии полосы ФЛ. Основной эффект в области прямого перехода – изменение интенсивности ФЛ. Сдвиг же энергии полосы ФЛ прямого перехода незначителен.

На рис. 2 приведены зависимости энергии полосы ФЛ непрямого перехода (рис. 2а) и интегральной интенсивности ФЛ прямого перехода (рис. 2б) от приложенного внешнего напряжения. При приложении внешнего напряжения в диапазоне от  $-2.0$  до  $+0.6 \text{ В}$  сдвиг края полосы непрямого перехода составлял  $100 \text{ мэВ}$ . При этом интенсивность  $I_D$  прямого перехода изменялась в 240 раз. Зависимость интенсивности  $I_D$  от внешнего поля сохраняла свой вид при увеличении мощности оптической накачки в 3 раза (см. рис. 2б).

Величина напряженности поля внутри структуры калибровалась по спектральному сдвигу полосы ФЛ непрямого перехода. При определении значения напряженности электрического поля внутри структуры по известному падению напряжения на образце необходимо учесть наличие встроенного поля барьера Шоттки высотой  $\approx 0.75 \text{ В}$  [18] и падение напряжения на контактах к подложке, вследствие чего напряжение на структуре составляло примерно половину от приложенного к образцу [14]. При этом достигалось хорошее согласие как экспериментальных, так и расчетных значений сдвига энергии полосы ФЛ непрямого перехода (см. рис. 2а). Ширину барьера Шоттки для контакта Au-ZnSe можно оценить как  $d \gtrsim 300 \text{ нм}$  при концентрации электронов в ZnSe  $\lesssim 10^{16} \text{ см}^{-3}$  и падении напряжения на контакте  $\simeq 1 \text{ В}$  [19]. Таким образом, в первом приближении электрическое поле внутри структуры ZnSe/BeTe можно считать однородным.

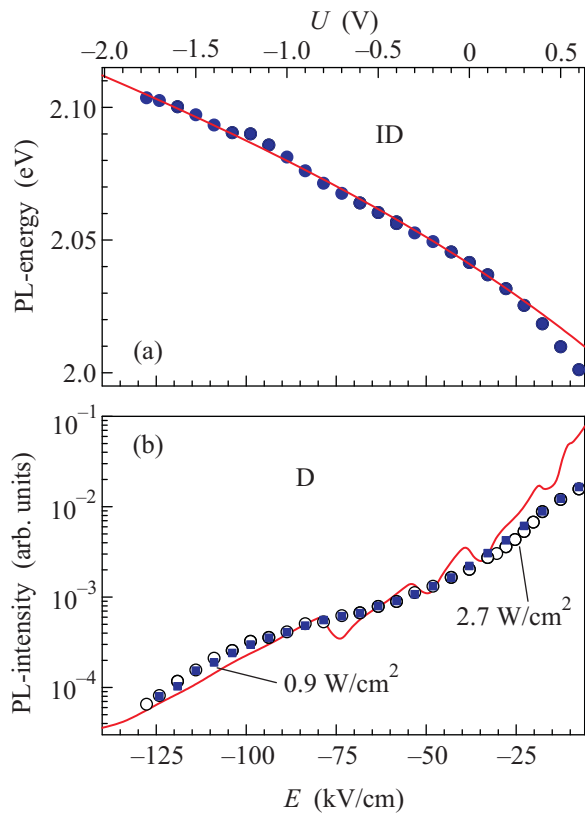


Рис. 2. Зависимость энергии высокоэнергетического края полосы пространственно непрямого оптического перехода (а) и интегральной интенсивности ФЛ пространственно прямого оптического перехода (б) от приложенного внешнего напряжения при низкой мощности оптического возбуждения и  $T \approx 5$  К. Символы – результаты эксперимента, сплошные кривые – расчет

Определение напряженности поля внутри структуры позволило построить зависимость интенсивности  $I_D$  от величины напряженности поля  $E$ , приведенную на рис. 2б.

Для данной структуры были также проведены времяразрешенные измерения ФЛ в области прямого перехода при импульсном возбуждении фемтосекундным лазером. При этом плотность оптического возбуждения соответствовала концентрации фотовозбужденных носителей  $n \approx 7 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$  в одном слое ZnSe, что близко к случаю плоских зон [11]. На рис. 3 приведены измеренные длительности свечения прямого перехода в ZnSe/BeTe в зависимости от напряженности поля внутри структуры. Измеренные времена жизни прямого перехода изменялись от максимального значения  $\tau \approx 4$  пс до значений, меньших временного разрешения измерительной системы ( $\approx 2$  пс). Отметим, что настолько короткие по сравнению с  $\tau_{\text{rad}}$  времена жизни  $\tau$  прямого перехода опре-

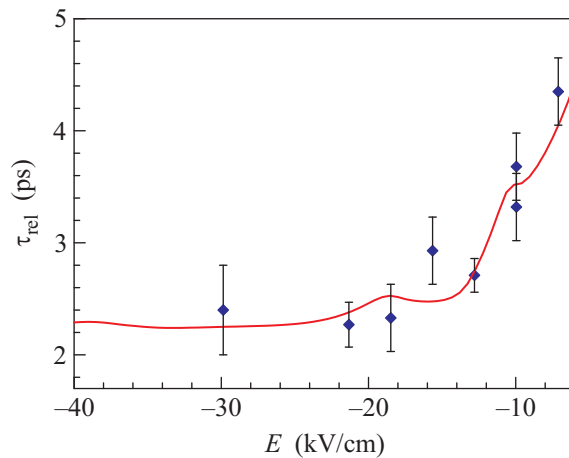


Рис. 3. Экспериментальные (символы) и расчетные (сплошная кривая) значения времени  $\tau_{\text{rel}}$  релаксации фотовозбужденной дырки из надбарьерного состояния в слое ZnSe в основное состояние в слое BeTe при низких уровнях оптической накачки (концентрация разделенных носителей  $n \approx 7 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ ) и  $T \approx 1.5$  К

деляются непосредственно временем  $\tau_{\text{rel}}$  ухода надбарьерной дырки в слой BeTe [2].

Для анализа результатов эксперимента были проведены расчеты электронных и дырочных волновых функций и уровней энергии для структуры ZnSe/BeTe 15/7.5 нм при различных значениях напряженности внешнего электрического поля. Поскольку концентрация разделенных носителей в интересующем нас случае слишком мала для модификации зонной структуры, расчеты сводились к решению стационарного уравнения Шредингера в модельном потенциале. На рис. 4 показаны волновые функции электрона в основном и дырки в надбарьерном состоянии при нулевом электрическом поле (рис. 4а) и в поле  $E = 100$  кВ/см (рис. 4б). Расчеты позволили количественно описать кинетику дырочной релаксации в ZnSe/BeTe в зависимости от величины электрического поля внутри структуры.

При описании релаксации носителей предполагалось, что фотовозбужденные электрон и дырка быстро релаксируют до нижайшего локализованного в слое ZnSe состояния. Дырка в надбарьерном состоянии либо излучательно рекомбинирует с электроном в прямом переходе за время  $\tau_{\text{rad}}$ , либо релаксирует в основное состояние, локализованное в слое BeTe, за время  $\tau_{\text{rel}}$ . Время излучательной рекомбинации  $\tau_{\text{rad}}$  определяется перекрытием волновых функций электрона и дырки в слое ZnSe.

Минимальное время излучательной рекомбинации реализуется при оптимальном перекрытии волновых функций электрона и дырки при нулевой напряженности электрического поля. Это время  $\tau_0$  по-

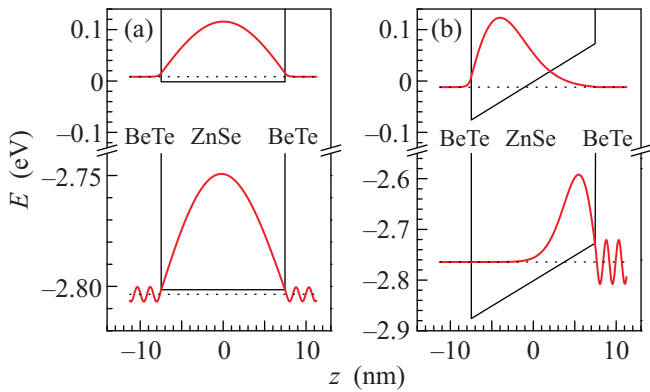


Рис. 4. Расчетные волновые функции электрона и дырки при нулевом электрическом поле (а) и поле  $E = 100$  кВ/см (b) (сплошные кривые). Тонкими линиями изображены профили зоны проводимости и валентной зоны в слое ZnSe в сверхрешетке ZnSe/BeTe с толщинами слоев ZnSe 15 нм и BeTe 7.5 нм. Точечные линии – уровни энергии электрона в основном состоянии и дырки в первом надбарьерном состоянии

ложено равным 40 пс, что соответствует времени излучательной рекомбинации носителей в одиночной квантовой яме первого типа ZnSe [16]. При приложении внешнего электрического поля перекрытие волновых функций электрона в основном и дырки в надбарьерном состоянии уменьшается (см. рис. 4). Это приводит к росту излучательного времени:

$$\tau_{\text{rad}} = \frac{\tau_0}{\left| \int dz \Psi_{e_1}(z) \Psi_{d_1}(z) \right|^2}. \quad (2)$$

Здесь  $\tau_{\text{rad}}$  – время излучательной рекомбинации электрона в основном и дырки в нижайшем надбарьерном состоянии,  $\tau_0$  – это  $\tau_{\text{rad}}$  в случае плоских зон,  $\Psi_{e_1}$  – волновая функция электрона в основном состоянии,  $\Psi_{d_1}$  – волновая функция дырки в нижайшем надбарьерном состоянии.

Время  $\tau_{\text{rel}}$  ухода дырки из нижайшего надбарьерного состояния в основное состояние в слое BeTe определяется интегралом квадрата модуля волновой функции надбарьерной дырки в слое BeTe [10, 11]:

$$\tau_{\text{rel}} \propto \frac{1}{\int_{\text{В слое BeTe}} |\Psi_{d_1}(z)|^2 dz}. \quad (3)$$

При этом максимальное время  $\tau_{\text{rel}}$  достигается при нулевом электрическом поле, а при приложении поля  $\tau_{\text{rel}}$  существенно уменьшается, т.к. увеличивается доля волновой функции надбарьерной дырки в слое BeTe (см. рис. 4). Нормировка расчетной зависимости для  $\tau_{\text{rel}}$  осуществлена таким образом, что при нулевом электрическом поле  $\tau_{\text{rel}}$  составило бы 6 пс. Это соответствует экспериментальному значе-

нию длительности свечения прямого перехода, измененному в аналогичном образце ZnSe/BeTe без металлической маски на поверхности, равному  $5 \pm 1$  пс. Отметим, что в расчет введено ограничение минимального значения времени  $\tau_{\text{rel}}$ , принятое равным 0.9 пс. С помощью данного ограничения мы учитывали, что время дырочной релаксации ограничено снизу временем взаимодействия надбарьерной дырки с ЛО-фононом.

При этих параметрах расчетные значения времени жизни  $\tau$  дырки в надбарьерном состоянии (см. рис. 3) и интегральной интенсивности  $I_D$  прямого перехода (см. рис. 2b) показали хорошее согласие с данными эксперимента. Отметим, что изображенная на рис. 3 кривая представляет собой результат свертки расчетных значений  $\tau_{\text{rel}}$  с приборной функцией. При этом в диапазоне экспериментальных значений приложенного электрического поля основной эффект уменьшения  $I_D \propto \tau/\tau_{\text{rad}}$  достигается за счет роста  $\tau_{\text{rad}}$ , в то время как в том же диапазоне  $\tau_{\text{rel}}$  уменьшается всего лишь в  $\simeq 4$  раза.

Таким образом, нами измерены зависимости интенсивности прямого перехода  $I_D \propto \tau/\tau_{\text{rad}}$ , а также времени  $\tau_{\text{rel}}$  от приложенного к структуре ZnSe/BeTe электрического поля. Сопоставление расчетов с экспериментальными данными позволило количественно описать зависимости от приложенного поля времени  $\tau_{\text{rel}}$  релаксации дырок по энергии из надбарьерного состояния в основное и времени  $\tau_{\text{rad}}$  излучательной рекомбинации надбарьерных дырок. Приложение электрического поля к структуре ZnSe/BeTe приводит к уменьшению времени  $\tau_{\text{rel}}$  за счет увеличения амплитуды осциллирующей части волновой функции надбарьерной дырки в слое BeTe, а также к увеличению времени  $\tau_{\text{rad}}$  за счет уменьшения перекрытия волновых функций дырки в надбарьерном и электрона в основном состоянии. При этом в исследованном диапазоне приложенных напряжений эффект изменения  $\tau_{\text{rad}}$  выражен сильнее, чем эффект изменения  $\tau_{\text{rel}}$ .

Работа выполнена при поддержке РФФИ и программы ОФН РАН.

1. Л. Е. Воробьев, Е. Л. Ивченко, Д. А. Фирсов, *Оптические свойства наноструктур*, СПб.: Наука, 2001.
2. А. А. Максимов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев и др., *Письма в ЖЭТФ* **83**, 173 (2006).
3. J. Feldmann, J. Nunnenkamp, G. Peter et al., *Phys. Rev. B* **42**, 5809 (1990).
4. F. C. Zhang, H. Luo, N. Dai et al., *Phys. Rev. B* **47**, 3806 (1993).
5. J. Haetty, E. H. Lee, H. Luo et al., *Solid State Commun.* **108**, 205 (1998).

6. С. В. Зайцев, В. Д. Кулаковский, А. А. Максимов и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 351 (1997).
7. S. V. Zaitsev, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii et al., Phys. Rev. B **76**, 035312 (2007).
8. A. A. Maksimov, S. V. Zaitsev, I. I. Tartakovskii et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 1231 (1999).
9. A. A. Maksimov, S. V. Zaitsev, I. I. Tartakovskii et al., Phys. Stat. Sol. (b) **221**, 523 (2000).
10. А. А. Максимов, С. В. Зайцев, Е. В. Филатов и др., Письма в ЖЭТФ **88**, 578 (2008).
11. E. V. Filatov, S. V. Zaitsev, I. I. Tartakovskii et al., Phys. Stat. Sol. (c) **7**, 1533 (2010).
12. В. В. Соловьев, И. В. Кукушкин, Ю. Смет и др., Письма в ЖЭТФ **84**, 256 (2006).
13. S. V. Zaitsev, A. A. Maksimov, P. S. Dorozhkin et al., Phys. Rev. B **66**, 245310 (2002).
14. A. A. Maksimov, S. B. Zaitsev, P. S. Dorozhkin et al., Phys. Stat. Sol. (b) **229**, 35 (2002).
15. F. C. Zhang, N. Dai, H. Luo et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 3220 (1992).
16. D. R. Yakovlev, J. Puls, G. V. Mikhailov et al., Phys. Stat. Sol. (a) **178**, 501 (2000).
17. A. Waag, F. Fisher, H.-J. Lugauer et al., J. Appl. Phys. **80**, 792 (1996).
18. V. Wagner, M. Becker, M. Weber et al., Thin Solid Films **364**, 119 (2000).
19. В. Л. Бонч-Бруевич, С. Г. Калашников, *Физика полупроводников*, М.: Наука, 1977.