

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

И. В. Игнатъев, И. Э. Козин

**Динамика носителей
в полупроводниковых
квантовых точках**

Санкт-Петербург
2005

ББК В379.2
И26

Рецензент: д-р физ.-мат. наук, проф. *Б. В. Новиков*
(С.-Петербургский Гос. университет)

*Печатается по постановлению
Ученого Совета Физического учебно-научного центра
С.-Петербургского Государственного университета*

И26 Игнатъев И.В., Козин И.Э.
Динамика носителей в полупроводниковых квантовых точках.
— СПб., 2005 — 126 с.

Пособие посвящено динамике носителей, прежде всего релаксации горячих носителей по системе дискретных уровней на их нижайшие состояния, в одном из наиболее интересных и новых объектов физики твердого тела — квантовых точках. Подробно рассматриваются различные механизмы релаксации, включая фононно-индуцированные и Оже-процессы. Изложение материала основано на экспериментальных исследованиях, выполненных авторами в течение нескольких последних лет. Хотя обсуждение динамики носителей ведется на профессиональном уровне, видно стремление авторов упростить изложение и сделать его доступным для студентов и аспирантов. Пособие может быть рекомендовано научным сотрудникам и аспирантам, а также студентам магистратуры соответствующих специальностей.

ББК В739.2

© И. В. Игнатъев, И. Э. Козин
© С.-Петербургский Гос. университет.
Физический факультет, 2005

Оглавление

Предисловие	5
1 Квантовые точки	9
1 Элементарное введение	9
2 Энергетическая структура квантовых точек	18
3 Механизмы релаксации горячих носителей	19
4 Экспериментальные исследования	23
5 Теоретические исследования	27
6 Что обсуждается далее	29
2 Объекты и методы исследования	30
1 Структуры с квантовыми точками	30
2 Экспериментальная техника.	34
3 Спектры фотолюминесценции.	39
3 Физический механизм . . .	48
1 Фононно-индуцированная релаксация носителей	50
2 Модель селективного тушения фотолюминесценции	53
4 Кинетика фотолюминесценции	59
5 Акустические фононные резонансы	65
1 Кинетические данные	67
2 Природа эффективного взаимодействия с акустическими фононами	69

6	Оже релаксация	74
1	Оже-процессы при мощном возбуждении	76
2	Оже-процессы в заряженных квантовых точках	79
3	Оже процессы в электрическом поле	82
4	Оже-процессы, индуцированные электрическим током	85
7	Температурная зависимость динамики	86
1	Кинетика PL	87
2	Феноменологические модели термостимулированной релаксации	93
3	Модель “испарения” дырок	95
4	Долгоживущая компонента PL	103
5	Роль “испарения” электронов	106
6	Обсуждение результатов и выводы	108
7	Математическое обоснование	112
8	Заключение	116
	Литература	120

Предисловие

Квантовые точки являются сравнительно новым и весьма интересным объектом исследования в физике твердого тела. Трехмерное ограничение движения носителей заряда (электронов и дырок) приводит к полностью дискретному спектру их состояний. В результате этого ограничения движения (конфайнмента) многие физические свойства квантовых точек значительно отличаются от свойств объемных кристаллов, а также объектов с ограничением движения носителей в одном или двух направлениях (квантовые ямы и квантовые нити). Популярным является сравнение квантовых точек с атомами, а заряженных квантовых точек с ионами. При этом имеются ввиду такие общие свойства этих систем как трехмерная локализация носителей и дискретность спектра энергетических состояний. Часто говорят, что физика квантовых точек напоминает физику атома, и в этом смысле квантовая точка является “рукотворным атомом” (artificial atom).

В мировой литературе имеется огромное количество публикаций о различных свойствах квантовых точек, издано несколько монографий. Отечественные ученые стоят у истоков этих исследований [П1–П3]. Однако, к сожалению, публикации на русском языке разбросаны по немногим отечественным журналам в виде оригинальных статей, а обзоры и монографии, насколько известно авторам, отсутствуют. В качестве примера русско-язычных публикаций по квантовым точкам упомянем недавние работы [П4–П14]. Ссылки на более ранние публикации можно найти в этих статьях. Ученые нашей страны активно работают по всем направлениям, связанным с исследованиями и применениями квантовых точек. В частности, научная школа ФТИ им. А. Ф. Иоффе активно развивает технологию их выращивания для применения в качестве активных сред лазеров [П4–П6]. В этом институте, а также в Санкт-Петербургском Государственном университете, активно ведутся спектроскопические исследования свойств квантовых точек [П7–П10]. В связи с большим интересом к спиновой динамике носителей в гетероструктурах,

наши ученые работают и в этом актуальном направлении [П11–П15]. Большая часть исследований наших ученых проводится в тесном сотрудничестве с зарубежными коллегами и поэтому публикуется за рубежом. Обзоры исследований, посвященных выращиванию и применению квантовых точек в лазерных структурах, можно найти в книгах [П16, П17]. Недавние обзоры исследований по спиновой динамике (эту область исследований принято теперь называть “Спинтроникой”) можно найти в работах [П18–П20]. Следить за последними исследованиями можно также по материалам различных международных конференций (см., например, [П21, П22]), на которых доклады по квантовым точкам зачастую занимают центральное место.

Данная работа есть переработанный вариант обзора, опубликованного в книге “Semiconductor quantum dots” под редакцией Y. Masumoto и T. Takagahara в издательстве Springer в 2002 году [П23]. Обзор посвящен исследованиям динамики носителей и, прежде всего, релаксации носителей в квантовых точках из верхних энергетических состояний (горячих носителей) в нижайшее (основное) состояние по системе дискретных энергетических уровней. Подробно рассматриваются различные механизмы релаксации, включая фононно-индуцированные и рассеяние носителя на носителе (так называемые Оже-процессы). Изложение материала основано на экспериментальных данных, полученных авторами в течение нескольких последних лет. Авторы стремились по возможности упростить изложение, не теряя строгости, и сделать его доступным для студентов старших курсов и аспирантов. Для этой цели, в частности, во введении добавлен раздел 1, в котором даются основные представления о физике квантовых точек, методах их выращивания и исследования.

В заключение, авторы выражают признательность профессору Yasuaki Masumoto из университета г. Цукуба (Япония), в лаборатории которого были выполнены обсуждаемые в данной работе эксперименты. Авторы признательны сотрудникам этой лаборатории Dr. Hong-Wen Ren и Dr. J.-S. Lee, вырастившим высококачественные структуры с квантовыми точками. Авторы выражают особую благодарность Валентину Геннадиевичу Давыдову, вместе с которым были выполнены многие из обсуждаемых здесь экспериментов. Авторы также благодарят Dr. Selvakumar V. Nair и Илью Яковлевича Герловина за плодотворное обсуждение многих теоретических вопросов и помощь в подготовке англо-язычной и русской версий данной работы. Наконец, авторы рады отметить плодотворное участие в научной работе молодого коллеги, Артема Викторовича Малеева, который, будучи студентом магистратуры физического факультета СПбГУ, выполнил теоретическое исследование, положенное в основу главы 7 данного обзора.

- [П1] А. И. Екимов, А.А.Онущенко: Письма в ЖЭТФ **34**, 363 (1981)
- [П2] A. I. Ekirov, Al. L. Efros, A. A. Onushchenko: Sol. St. Commun. **56**, 921 (1985)
- [П3] А. И. Екимов, И. А. Кудрявцев, М. Г. Иванов, Ал. Л. Эфрос: ФТТ **31**, 192 (1989)
- [П4] Е. Ю. Лундина, Ю. М. Шерняков, М. В. Максимов, И. Н. Каяндер, А. Ф. Цацульников, Н. Н. Леденцов, А. Е. Жуков, Н. А. Малеев, С. С. Михрин, В. М. Устинов, Ж. И. Алферов, D. Bimberg: ЖТФ **73**, 140 (2003)
- [П5] В. Г. Дубровский, Н. В. Крыжановская, В. М. Устинов, А. А. Тонких, В. А. Егоров, Н. К. Поляков, Ю. Б. Самсоненко, Г. Э. Цырлин: Письма в ЖТФ **30**, вып. 7, 30 (2004)
- [П6] И. И. Новиков, Н. Ю. Гордеев, М. В. Максимов, Ю. М. Шерняков, Е. С. Семенова, А. П. Васильев, А. Е. Жуков, В. М. Устинов, Г. Г. Зегря: ФТП **39**, 507 (2005)
- [П7] А. А. Тонких, Г. Э. Цырлин, В. Г. Талалаев, Б. В. Новиков, В. А. Егоров, Н. К. Поляков, Ю. Б. Самсоненко, В. М. Устинов, N. D. Zakharov, P. Werner: ФТП **37**, 1456 (2003)
- [П8] В. С. Днепровский, Е. А. Жуков, О. А. Шалыгина, В. П. Евтихьев, В. П. Кочережко: ЖЭТФ **125**, 156 (2004)
- [П9] В. Г. Талалаев, J. W. Tomm, N. D. Zakharov, P. Werner, Б. В. Новиков, Г. Э. Цырлин, Ю. Б. Самсоненко, А. А. Тонких, В. А. Егоров, Н. К. Поляков, В. М. Устинов: ФТП **38**, 723 (2004)
- [П10] И. Х. Акопян, В. А. Гайсин, Д. К. Логинов, Б. В. Новиков, А. Цаган-Манжиев, М. И. Васильев, В. В. Голубков: ФТТ **47**, 1323 (2005)
- [П11] Е. Л. Ивченко и Киселев: Письма ЖЭТФ **67**, 41 (1998)
- [П12] Р. И. Джигоев, Б. П. Захарченя, В. Л. Коренев, П. Е. Пак, М. Н. Ткачук, Д. А. Винокуров, И. С. Тарасов: Письма ЖЭТФ **68**, 711 (1998)
- [П13] В. Л. Коренев: Письма ЖЭТФ **70**, 124 (1999)

- [П14] Р. И. Джиоев, Б. П. Захарченя, В. Л. Корнев, М. В. Лазарев: ФТТ **41**, 2193 (1999)
- [П15] *Оптическая ориентация*. Под ред. Б.П.Захарчени и Ф. Майера (Ленинград, "Наука", 1989)
- [П16] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov: *Quantum dot heterostructures* (Wiley, 1999)
- [П17] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, D. Bimberg: *Epitaxy of Nanostructures* (Springer-Verlag GmbH, 2003)
- [П18] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth. Series: *Nanoscience and Technology* (Springer-Verlag, Berlin, 2002)
- [П19] М. И. Дьяконов: *Spintronics?*, В сборнике: *Future Trends in Microelectronics. The Nano, the Giga, and the Ultra*. Eds. S. Luryi, J. Xu, and A. Zaslavsky, Wiley (2004), pp. 157-167. [Доступен также архив (LANL e-print archive) cond-mat/0401369 (2004) на сайте: <http://xxx.lanl.gov/list/cond-mat/0401?300>].
- [П20] I. V. Ignatiev: *Spin dynamics in quantum dots* Тезисы международной зимней школы по физике полупроводников; доступны на сайте ФТИ им. А. Ф. Иоффе: http://www.ioffe.ru/winter_school/ignatiev.pdf
- [П21] Материалы ежегодного международного симпозиума *Nanostructures: Physics and Technology*, проводимого ФТИ им. А. Ф. Иоффе в г. Санкт-Петербург (издаются ФТИ).
- [П22] Материалы международной конференции по физике полупроводников, проводимой раз в два года в различных странах. Материалы последней конференции опубликованы в виде: *Proceedings of the 27th International Conference on the Physics on Semiconductors* (Flagstaff, Arizona (USA), 26-30 July 2004). Eds.: José Menéndez and Chris G. Van de Walle, AIP Conference Proceedings 772, Subseries: "Materials Physics and Applications", Springer-Verlag (2005).
- [П23] Ivan V. Ignatiev and Igor E. Kozin: "Dynamics of Carrier relaxation in Self-Assembled Quantum Dots", in *Semiconductor Quantum Dots*, Eds. Yasuaki Masumoto and Toshihide Takagahara. Springer series "NanoScience and Technology", Springer-Verlag 2002, pp. 245-293

Глава 1

Квантовые точки

1 Элементарное введение.

Понятие “квантовая точка” (quantum dot, QD)¹ является новым для физики твердого тела, еще не вошедшим в стандартные учебники, и поэтому требует специального обсуждения. Отметим сразу, что это понятие содержит очевидное противоречие, поскольку если мы говорим о точке (в математическом смысле), то причем здесь кванты. Противоречие разрешается физически, поскольку под квантовыми точками понимают очень маленькие объекты, в нашем случае полупроводниковые нанокристаллы с характерными размерами в несколько десятков нанометров, помещенные во внешнюю среду. Замечательной особенностью квантовых точек является то обстоятельство, что их физические свойства определяются не только материалом, из которого они созданы, но и их размерами и формой, а также, естественно, материалом окружающей среды (матрицы). При столь сильном уменьшении размеров кристаллов происходит радикальная перестройка энергетического спектра носителей — их движение квантуется (отсюда название “квантовые” точки), причем энергия этого размерного квантования легко доступна для экспериментального наблюдения. Как оказалось, изменяя размеры квантовых точек, можно изменять их свойства в очень широких пределах. Фактически физика твердого тела получила очень богатый класс новых объектов исследования.

¹В связи с молодостью физики квантовых точек, русско-язычная терминология здесь еще не устоялась, поэтому мы будем приводить по мере необходимости англо-язычные термины и их сокращения, широко используемые в зарубежных публикациях.

Исторически, одними из первых были открыты и исследованы квантовые точки, выросшие в стеклянной матрице. Однако вскоре было выяснено, что их свойства определяются не только материалами точек и матрицы, но и состоянием границы между ними (гетерограницы или интерфейса), которое очень трудно контролировать. Это так называемая проблема интерфейса. Второй проблемой квантовых точек, выращенных в диэлектрических матрицах, является крайняя ограниченность их практического применения. И хотя такие точки остаются предметом интенсивных фундаментальных исследований, наибольший интерес сегодня привлекают квантовые точки, выращенные в наноструктурах.

Наноструктурами называют *кристаллические* структуры, состоящие из различных полупроводниковых кристаллов с близкими постоянными кристаллической решетки. Из названия ясно, что размеры кристаллов, составляющих наноструктуру, должны лежать в нанометровом диапазоне. Если кристалл имеет малый размер только в одном направлении, то говорят о квазидвумерном слое или квантовой яме, если этот слой с обеих сторон закрыт более широкозонным материалом. Кристаллы с малыми размерами по двум направлениям называются квазиодномерными или квантовыми нитями (а также квантовыми проволоками), а кристаллы, малые по всем трем направлениям — квазиульмерными или квантовыми точками (нанокристаллами). Физика полупроводниковых наноструктур достаточно молодая область физики твердого тела, стремительно развивающаяся благодаря параллельному развитию нескольких направлений, а именно технологии выращивания наноструктур, технологии их микроскопического, точнее наноскопического исследования (характеризации), экспериментальной техники исследования их электрических и оптических свойств, и собственно физических исследований наноструктур.

Создание наноструктур оказалось возможным благодаря эпитаксиальным технологиям выращивания кристаллов. Вершиной развития этих технологий является несомненно молекулярная пучковая эпитаксия (molecular beam epitaxy, МВЕ). Хорошее описание технологии МВЕ приведено в книге [1]. В этой технологии, на кристалл (подложку), находящийся в высоком вакууме, направляются молекулярные пучки материала (шихты), испаренного из специальный тиглей (ячеек Кнудсена). На поверхности подложки происходит реакция синтеза кристаллической структуры и, тем самым, рост эпитаксиального слоя. Подложка обычно нагревается до достаточно высокой температуры, чтобы обеспечить необходимую подвижность атомов на поверхности для формирования кристаллической решетки, а не аморфного материала. Рост эпитаксиального слоя проводится с невысокой скоростью (доли нано-

метра в секунду) и может быть практически мгновенно остановлен с помощью перекрытия молекулярных пучков специальными заслонками. Обычно МВЕ-установка содержит несколько молекулярных источников с различными химическими элементами, так что, остановив рост кристаллического слоя с одним химическим составом, можно начать выращивание слоя с другим химическим составом. В этом и заключается принцип выращивания квазидвумерных наноструктур.

Специальная техника, основанная на дифракции быстрых электронов, позволяет контролировать процесс выращивания слоя с точностью до одного атомного слоя (monolayer, ML). Это позволяет выращивать сколь угодно тонкие, вплоть до одного монослоя, кристаллические слои. Максимальная толщина кристаллического слоя, выращенного на кристалле с другим химическим составом, зависит от величины рассогласования постоянных решетки этих кристаллов. Если это рассогласование составляет сотые доли процента, то, как показывает опыт, максимальная толщина ничем не ограничена. Хорошими примерами таких пар кристаллов являются GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,3}As и GaAs/In_{0,5}Ga_{0,5}P. В случае большого рассогласования решеток, существует критическая толщина наращиваемого кристаллического слоя, после достижения которой происходит “срыв” эпитаксиального роста. В частности, для пары GaAs/InAs критическая толщина слоя InAs меньше двух монослоев (рассогласование решеток 7%).

Из приведенного выше краткого описания идеи выращивания квазидвумерных наноструктур совсем не очевидно, как же эта технология позволяет выращивать квантовые точки. Ключом является упомянутый выше “срыв” эпитаксиального роста. Физической причиной срыва роста является недопустимое увеличение энергии упругой деформации наращиваемого кристалла, решетка которого растягивается или сжимается (в зависимости от знака рассогласования решеток) в попытке воспроизвести кристаллическую структуру предыдущего слоя. В результате релаксации упругой деформации, происходит образование множественных дефектов в выращиваемом слое и фактически разрушение кристаллической структуры.

Однако существует специальный режим выращивания, называемый режимом Странски-Крастанова (Stranski-Krastanow mode), при котором релаксация упругой деформации сопровождается образованием квантовых точек. В этом режиме, после выращивания слоя с толщиной, немного превосходящей критическую, рост наноструктуры прерывается и выдерживается пауза в несколько десятков секунд. В течение этой паузы, в результате поверхностной диффузии адсорбированных атомов (адатомов) происходит спонтанное образование нанокристаллов с кристаллической структурой, соответствующей

щей их естественному (ненапряженному) состоянию. С термодинамической точки зрения, этот процесс аналогичен процессу образования капель на стекле. После завершения процесса формирования квантовых точек, эпитаксиальный рост наноструктуры возобновляют и наращивают слой того же материала, на котором были выращены квантовые точки. Выращенные таким способом квантовые точки называются самоорганизованными квантовыми точками (self-assembled quantum dots). Следует отметить, что, хотя описанный метод является наиболее популярным в настоящее время, технологи продолжают упорно искать все новые более совершенные методы выращивания квантовых точек в наноструктурах. Хороший обзор таких методов дан J.-S. Lee [2].

Из сказанного ясно, что для самоорганизованных квантовых точек решаются обе проблемы, характерные для нанокристаллов в диэлектрических матрицах. Эпитаксиальная технология ориентирована на выращивание полупроводниковых квантовых точек в полупроводниковой наноструктуре, и поэтому нет принципиальных препятствий для интегрирования этих точек в современную микроэлектронику. Самоорганизованные квантовые точки выращиваются в едином технологическом цикле в высоком вакууме, поэтому интерфейс между точками и окружающим материалом содержит минимальное количество дефектов и, как показывают исследования, во многих случаях может рассматриваться как идеальный.

Тем не менее, этим квантовым точкам, также как и точкам, полученным другими способами, присущ важный недостаток, а именно статистический разброс размеров и формы точек в ансамбле. Многочисленные технологические ухищрения, изобретенные за последнее время, позволяют минимизировать этот разброс вплоть до 10%, однако в принципиальном плане эта проблема не решена до сих пор. Она приводит к определенным трудностям при практическом применении наноструктур с квантовыми точками. С точки зрения фундаментальных исследований, экспериментаторы получают в свое распоряжение неоднородный ансамбль объектов с различными физическими свойствами, и поэтому зачастую требуется немалое экспериментальное искусство для того, чтобы разобраться в происходящих процессах.

Бурное развитие микроскопических методов исследования, таких как сканирующая электронная микроскопия (Scanning Electron Microscopy, SEM), просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения (High Resolution Transmission Electron Microscopy, HRTEM), сканирующая туннельная микроскопия (Scanning Tunneling Microscopy, STM), атомная силовая микроскопия (Atomic Force Microscopy, AFM) и другие, позволяет в настоящее время подробно исследовать как статистику размерных параметров квантовых точек в ансамбле, так и размеры и кристаллическую структуру

отдельных точек с разрешением вплоть до атомного. Эти методы активно используются технологами для оптимизации условий выращивания квантовых точек. С другой стороны, они дают важную исходную информацию экспериментаторам о свойствах исследуемого ансамбля точек.

Исследования показали, что в наиболее совершенных наноструктурах квантовые точки вырастают в виде пирамид, зачастую в виде усеченных пирамид. В случае квантовых точек InAs, выращенных на GaAs (часто используется обозначение InAs/GaAs), базовый размер пирамид составляет 15 – 30 нм, а высота 5 – 15 нм в зависимости от условий роста. Пример изображения квантовой точки InAs/GaAs, полученного Lacombe *et al.* [3], приведен на рисунке 1. Квантовые точки InP/In_{0.5}Ga_{0.5}P, которые подробно обсуждаются далее, растут несколько больших размеров из-за меньшего рассогласования постоянных решетки (около 4%). Расстояние между квантовыми точками как правило составляет 100 нм и более, поэтому эти точки можно рассматривать как изолированные квантово-механические объекты и изучать по отдельности. Было установлено также, что не весь напыленный слой собирается в квантовые точки, а часть его в виде тонкого слоя (с толщиной порядка 1 ML) остается между точками. Этот слой зачастую называют смачивающим слоем (wetting layer, WL).

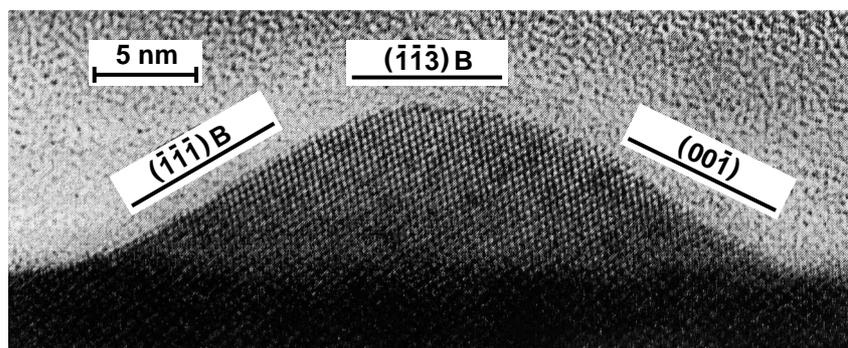


Рис. 1: Изображение поперечного среза наноструктуры с квантовой точкой InAs/GaAs, полученное с помощью HRTEM. Ясно видна кристаллическая структура квантовой точки. Над квантовой точкой даны кристаллографические направления, вдоль которых направлены плоскости граней пирамиды. Масштаб изображения показан полоской, соответствующей 5 нм.

Наиболее интересными свойствами обладают квантовые точки, выращен-

ные между слоями с большей, чем у точек, шириной запрещенной зоны. Такие слои называются барьерными слоями (barrier layers). В этом случае квантовые точки представляют собой потенциальные ямы для носителей заряда, причем глубина потенциальных ям может достигать нескольких сотен миллиэлектронвольт (meV). Вследствие трехмерного ограничения движения носителей, их движение полностью квантуется. Другими словами, электрон и дырка в квантовой точке имеют полностью дискретный спектр состояний, пока их энергия не превосходит глубины соответствующих потенциальных ям.

Энергетическая структура спектра состояний квантовых точек будет подробно обсуждаться в следующем разделе. Здесь мы приведем элементарные оценки энергий уровней в приближении бесконечно высоких потенциальных барьеров для квантовой точки, имеющей форму куба со стороной L . Энергия уровней определяется из известного выражения для кинетической энергии, $E_n = p_n^2 / (2m^*m_0)$, в котором на импульс частицы, $p_n = \hbar k_n$, где $k_n = 2\pi/\lambda_n$, накладывается условие квантования: $(n/2)\lambda_n = L$. С физической точки зрения это условие квантования означает, что в квантовой точке укладывается целое число полуволн волновой функции, соответствующей движению носителя с импульсом p_n . Подставляя в эти выражения значения постоянной Планка, $\hbar = 6.58 \cdot 10^{-13}$ meV s, и массы электрона, $m_0 = 9.11 \cdot 10^{-31}$ kg, получаем: $E_n = 376 / (m^*L^2)$ meV, где m^* – эффективная масса носителя в единицах m_0 , а L измеряется в нанометрах. Взяв для оценки $m^* = 0.1$ и $L = 10$ nm, получаем энергию основного уровня, $E_1 \approx 40$ meV, и расстояние между нижайшими уровнями, $\Delta E_{12} \approx 110$ meV. Расстояние до следующего уровня, согласно приведенным формулам, должно быть еще больше, однако эти формулы перестают работать из-за конечной высоты потенциальных барьеров. Фактически, в квантовой точке может иметься всего несколько дискретных уровней.

Характерным естественным масштабом энергий может служить тепловая энергия при комнатной температуре, $kT = 25$ meV. Из приведенных цифр видно, что расстояние между уровнями квантовой точки в рассмотренном примере значительно превышает тепловую энергию, так что носители должны занимать нижайшее состояние даже при комнатной температуре. Это замечательное свойство квантовых точек используется как их главное преимущество перед наноструктурами с квантовыми ямами при создании полупроводниковых лазеров с высокой температурной стабильностью. Другим замечательным свойством точек, которое пытаются использовать в нанoeлектронике, является их рекордно малая электрическая емкость. В силу принципа Паули, на нижайшем уровне может поместиться всего два электрона с противоположными спинами. Более того, для полного заполнения всех дис-

кретных уровней квантовой точки требуется всего несколько электронов — а это ключ к записи информации (логической единицы) с помощью предельно малого заряда. Еще одной иллюстрацией использования малой емкости квантовых точек может служить одноэлектронный транзистор, в котором загрузка одного электрона в точку приводит к сдвигу ее энергетических уровней и резкому изменению туннельного тока через точку.

Оптические свойства квантовых точек определяются энергетическим спектром состояний, динамикой носителей и силой осциллятора оптических переходов. Дискретность энергетического спектра приводит к появлению в спектре люминесценции квантовой точки атомарно узких линий. Прямое наблюдение узких линий для ансамбля квантовых точек невозможно из-за большого разброса параметров точек, приводящего к сильному неоднородному уширению линий. Однако современная экспериментальная техника позволяет выделить отдельную квантовую точку и исследовать ее излучение. Отметим, что в этих исследованиях экспериментаторы имеют уникальную возможность наблюдать за отдельным квантово-механическим объектом. Это направление исследований получило специальное название — спектроскопия одиночной точки (*single dot spectroscopy*). Крайняя малость квантовых точек не позволяет напрямую наблюдать спектр их поглощения. Вместо этого, с успехом измеряются спектры возбуждения люминесценции, в которых также наблюдаются атомарно узкие линии, несущие ценную информацию о возбужденных состояниях квантовых точек.

Квантовые точки, выращенные на основе соединений АЗВ5 и А2В6, имеют большую силу осциллятора оптических переходов, что приводит к коротким (субнаносекундным) временам рекомбинации электронно-дырочных пар. Это связано с большим объемом когерентности оптического возбуждения, намного превосходящим объем отдельного атома. Большая сила осциллятора в совокупности с малым числом носителей заряда, которые могут занимать один уровень, приводит к большой резонансной оптической нелинейности квантовых точек. Среди других полезных оптических свойств квантовых точек следует отметить температурную стабильность излучения, во многих случаях наблюдаемого вплоть до комнатных температур. Она объясняется полной (трехмерной) локализацией носителей, вследствие которой центры тушения люминесценции, неизбежно присутствующие в материале барьера¹ недоступны для носителей до тех пор, пока не они не выбрасываются теплом в барьер.

¹В квантовых точках тоже могут быть центры тушения, но они “убивают” люминесценцию при любой температуре, поэтому такие точки не наблюдаемы.

Динамика носителей представляет наибольший интерес для исследователей, поскольку знание физических процессов — что происходит и как быстро — определяет возможности практического использования квантовых точек. Здесь следует отметить, что реальная работа с квантовыми точками является не столь уж отдаленной перспективой существующей ныне классической микроэлектроники, которая уже сейчас с характерным масштабом элементов в 130 нм и активно обсуждает переход на масштабы в 90 и 65 нм. Ясно, что на этом пути микроэлектроника быстро столкнется с квантоворазмерными эффектами, порождающими новые физические процессы. Одновременно с этим физика квантоворазмерных структур открывает принципиально новые возможности обработки и хранения информации¹.

Исследования динамики носителей в квантовых точках представляют собой обширную область, которую можно условно разделить на три части: когерентная, некогерентная (релаксационная) и спиновая динамика носителей. Под когерентной динамикой понимается динамика носителей, сфазированная когерентным внешним воздействием, обычно лазерным импульсом. Когерентные процессы, не поддающиеся обычной статистике, приводят к ярким нетривиальным эффектам, таким как оптическая нутация (осцилляции Раби), самоиндуцированная прозрачность, фотонное эхо. Из-за быстрой фазовой релаксации носителей эти эффекты могут, как правило, наблюдаться в течение очень короткого времени. В связи с этим когерентная динамика, несмотря на всю ее заманчивость и перспективность (обсуждаются, например, возможности создания на основе когерентных процессов сверхбыстрых элементов оптической логики), является на сегодня наименее разработанной для квантовых точек.

Некогерентная динамика есть последовательность процессов, происходящих от момента “рождения” носителей в квантовой точке некогерентным возбуждением (электрическим током или нерезонансным оптическим возбуждением) до момента их “смерти” в результате рекомбинации, ухода их квантовой точки или релаксации в стационарное состояние. Именно эти процессы, шаг за шагом, мы будем рассматривать в данной книге. При низкой температуре, при которой проводится основная часть исследований, некогерентная динамика сводится к энергетической релаксации созданных (“горячих”) носителей в нижайшее (“холодное”) состояние.

Спиновая динамика носителей является наиболее молодой областью исследования для квантовых точек. И хотя здесь за последние несколько лет

¹В настоящее время активно обсуждаются идеи создания так называемого квантового компьютера и спиновой памяти. Мы не имеем здесь возможности останавливаться на этих вопросах.

получено большое количество замечательных результатов, в этой области еще рано подводить какие-то итоги. Поэтому мы не будем здесь ее касаться.

В настоящее время стали возможными исследования динамики носителей в реальном времени благодаря стремительному прогрессу экспериментальной техники. Мы не имеем здесь возможности подробно останавливаться на современных возможностях исследования бысропротекающих процессов (некоторые детали техники экспериментов обсуждаются в главе 2). Отметим, однако, что для экспериментального исследования сейчас доступны пикосекундные ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$) и фемтосекундные ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) времена.

Энергетическая релаксация горячих носителей в квантовых точках активно исследуется с начала 90-х годов, когда была ясно осознана не только фундаментальная новизна квантовых точек как новых объектов физики твердого тела, но и их практическая значимость. Скорость релаксации носителей является важным параметром, определяющим возможность создания и эффективность работы лазеров на гетероструктурах с квантовыми точками в качестве активной среды. При этом, требования к скорости релаксации существенно зависят от задачи. Для лазеров, излучающих в видимой и ближней ИК областях (лазеры на межзонных переходах), скорость релаксации носителей на излучательный уровень должна быть достаточно высокой с тем, чтобы обеспечить инверсию населенностей и избежать безызлучательных потерь в высоковозбужденных состояниях [4–7]. В то же время, для лазеров, работающих в средней ИК области, предполагается использовать переходы между дискретными возбужденными уровнями [8, 9]. В этом случае, для создания инверсии населенности, скорость релаксации носителей должна быть достаточно мала. Для контролируемого управления скоростью релаксации необходимо понимание физических механизмов релаксации.

С физической точки зрения релаксация носителей в квантовых точках должна радикально отличаться от релаксации в структурах с более высокой размерностью (квантовых нитях и квантовых ямах) или в объемных материалах. Дискретная энергетическая структура уровней электронов и дырок в квантовых точках накладывает целый ряд ограничений на процессы релаксации. По этой причине каждый релаксационный процесс, изученный в структурах более высокой размерности, должен быть заново и тщательно исследован в случае квантовых точек. Эффективность того или иного релаксационного процесса зависит как от особенностей структуры с квантовыми точками, так и от экспериментальных условий. Среди основных факторов, влияющих на релаксацию, можно указать спектр энергетических состояний квантовых точек, электронно-дырочное взаимодействие (экситонный эффект), спектр фононных состояний, электрон-фононное взаимодействие,

наличие избыточных носителей в квантовых точках, а также экспериментальные условия, в частности температура образца, мощность оптического возбуждения и энергия фотонов (в случае оптической накачки) или величина электрического тока через гетероструктуру (в случае электрической накачки), и т.д.

2 Энергетическая структура квантовых точек

Спектр уровней энергии квантовой точки обычно представляется в виде набора дискретных уровней отдельно для электронов и дырок, как показано на рис. 2(а). Такая модель хорошо оправдана в случае, если рассматриваются процессы, в которых участвует только один из носителей. Например, захват свободного носителя из барьерного слоя в квантовую точку и его последующая релаксация на нижайший уровень. Однако этот подход становится малоприменимым в случае, когда рассматривается релаксация электронно-дырочной пары.

Причина этого заключается в том, что кулоновское взаимодействие электрона и дырки позволяет им быстро и эффективно обмениваться энергией. Энергия этого взаимодействия имеет порядок величины 10 meV (для квантовых точек A_3B_5), что соответствует субпикосекундным скоростям обмена энергией. В масштабе времен энергетической релаксации носителей, достигающих сотни пикосекунд, этот процесс можно рассматривать как мгновенный. По этой причине можно ожидать, что электрон и дырка в квантовой точке релаксируют как единая квантово-механическая система – коррелированная электрон-дырочная пара ($e-h$ -пара). В литературе иногда такую пару называют экситоном по аналогии с объемным материалом.

Система энергетических уровней $e-h$ -пары является комбинацией уровней электрона и дырки, как показано на рис. 2(б). Расстояние между соседними уровнями $e-h$ -пары обычно определяется энергетическим спектром дырки и может быть весьма малым для достаточно больших квантовых точек. Помимо дискретного спектра, структура уровней $e-h$ -пары имеет две зоны сплошного спектра, соответствующих надбарьерному движению электрона или дырки. Нижний край этих зон приподнят над основным состоянием $e-h$ -пары на величину энергий связи электрона и дырки, обозначенных на рис. 2(б) величинами E_e и E_h , соответственно. Они могут быть малы для достаточно маленьких квантовых точек вследствие эффекта размерного квантования. Тем самым будет мал интервал энергий, в котором имеются только дискретные состояния $e-h$ -пары. Полный спектр $e-h$ -пары является суперпозицией

дискретного и непрерывного спектров, как показано на рис. 2(с). Как видно из рисунка, спектр состояний квантовой точки является весьма сложным и может быть достаточно плотным из-за тесного расположения дискретных уровней в больших квантовых точках или близости зон сплошного спектра в маленьких квантовых точках.

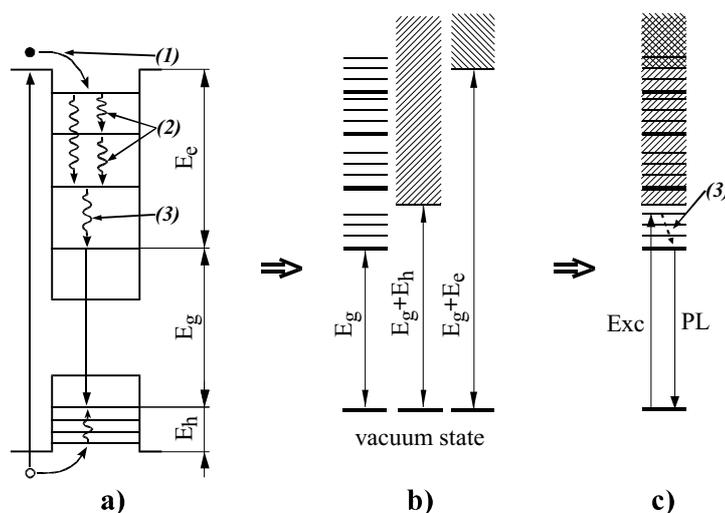


Рис. 2: Энергетическая диаграмма для электрона и дырки (а) и для $e-h$ -пары (с) в квантовой точке. Диаграмма (b) показывает, как формируется спектр $e-h$ -пары. На диаграмме (а) показаны различные этапы релаксации одиночного носителя: (1) - захват носителя из барьерного или смачивающего слоя в квантовую точку; (2) - релаксация по промежуточным состояниям; (3) - финальная релаксация на основное состояние носителя. Диаграмма (с) показывает этап (3) релаксации $e-h$ -пары, рожденной в квантовой точке при квазирезонансном возбуждении.

3 Механизмы релаксации горячих носителей

Механизм релаксации носителей сильно зависит от энергии их возбуждения и их количества в квантовой точке. В случае одиночного носителя, релаксация может быть разделена на несколько этапов, как показано на рис. 2(а).

Первым этапом является захват носителя из барьера в случае, если носитель создан при поглощении света в барьере или появился в барьере вследствие протекания электрического тока через гетероструктуру. В этом случае носитель должен перейти из состояния сплошного спектра на один из уровней дискретного спектра квантовой точки. Обычно для этого носителю необходимо преодолеть некоторый потенциальный барьер и поэтому захват происходит за конечное время в несколько десятков пикосекунд (см., например, работы [10, 11] и ссылки в них).

Второй этап является каскадной релаксацией по уровням дискретного спектра в квантовой точке. Возможны различные каналы релаксации через различные промежуточные состояния, включая смешанные электрон-фононные состояния, прежде чем носитель достигнет нижайшего уровня. Этот сложный процесс в настоящее время еще слабо изучен [12].

Как отдельный (третий) этап может быть рассмотрена финальная релаксация горячего носителя на нижайший уровень. Выделение финального этапа релаксации целесообразно, поскольку это, как будет подробно обсуждаться далее, обычно наиболее медленный этап релаксации, который в основном и определяет скорость всего процесса релаксации. С другой стороны, в настоящее время хорошо развита экспериментальная техника, позволяющая эффективно исследовать именно этот этап релаксации [13–16].

Этапы (2) и (3) могут быть также рассмотрены для случая релаксации e - h -пары, как показано на рис. 2(с). В случае рождения свободных носителей в барьере, они могут захватываться в квантовую точку по отдельности и релаксировать как одиночные носители, или захватываться в виде e - h -пары. Вследствие статистической природы этого процесса обычно трудно определить экспериментально, какой из двух релаксационных процессов – релаксация одиночного носителя или e - h -пары – имеет место. По этой причине наиболее чистые условия для изучения релаксации e - h -пары реализуются в случае, когда e - h -пара рождается внутри квантовой точки квазирезонансным оптическим возбуждением, т.е. светом с энергией фотонов меньше, чем запрещенная зона барьера или смачивающего слоя. В этом случае e - h -пара сразу локализована в точке, и первый этап релаксации может быть исключен. Именно такая ситуация будет рассматриваться нами наиболее детально.

В общем случае необходимо рассматривать несколько механизмов релаксации. Они показаны схематически на рис. 3(а-с) на примере релаксации одиночного носителя. Первый механизм есть излучательная релаксация горячего носителя [см. рис. 3(а)], когда носитель излучает фотон в средней ИК области. Именно этот процесс в совокупности с дискретным энергетическим спектром квантовой точки и являются одними из тех фундаментальных

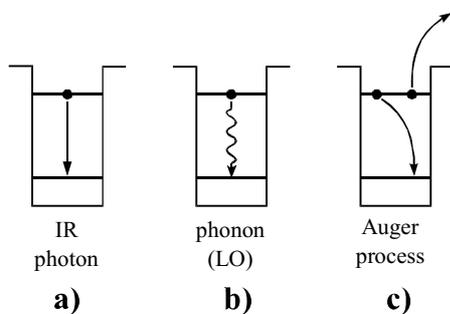


Рис. 3. Диаграммы (а-с) иллюстрируют различные возможные механизмы релаксации носителей: (а) – релаксация с испусканием инфракрасного фотона; (б) – релаксация с испусканием фонона; (с) – релаксация одного носителя с одновременным возбуждением другого носителя (Оже-процесс).

свойств, которые позволяют рассматривать квантовую точку как искусственный атом. Излучательная релаксация с испусканием фотона в средней ИК области экспериментально наблюдалась в нескольких работах [8, 17, 18]. Скорость этого процесса пропорциональна кубу оптической частоты ω_{IR} и поэтому на несколько порядков ниже скорости излучательной рекомбинации горячей $e-h$ -пары (приблизительно в $(\omega_{eh}/\omega_{IR})^3$ раз, где ω_{eh} - частота рекомбинационного излучения). Таким образом в большинстве случаев этим процессом можно пренебречь.

Вторым процессом является фоновно-индуцированная релаксация носителей [рис. 3(б)], в которой горячий носитель релаксирует на основное состояние с испусканием одного или нескольких фононов. Этот процесс следует рассматривать как собственный релаксационный процесс, т.е. присущий идеализированной квантовой точке. Он может происходить в отсутствие любых других квазичастиц (носителей, фононов) при низкой температуре и слабом возбуждении и определяет нижний предел скорости релаксации носителей.

Как известно, эффективность взаимодействия носителей с фононами сильно зависит от типа фононов. Продольные оптические (LO) фононы в полярном полупроводнике способны создавать электрическое поле, поэтому такие фононы эффективно взаимодействуют с электронами и дырками. Следовательно скорость релаксации носителей с испусканием LO фононов должна быть высокой. Напротив, взаимодействие носителей с акустическими фононами намного слабее вследствие малой величины деформационного потенциала взаимодействия, и следовательно релаксация носителей с испусканием акустических фононов должна быть сравнительно медленной. Такой эффект хорошо известен в объемных материалах, где релаксация с излучением акустических фононов приблизительно в сто раз медленней, чем релаксация с испусканием LO фононов [19, 20].

Дискретность энергетического спектра состояний в квантовых точках накладывает существенные ограничения на фононно-индуцированную релаксацию носителей. Зона энергетических состояний ЛО фононов обычно является достаточно узкой вследствие их малой дисперсии. По этой причине быстрая релаксация носителей с испусканием ЛО фононов возможна только в тех квантовых точках, в которых расстояния между уровнями равны энергии одного или нескольких ЛО фононов. Носители в других квантовых точках вынуждены релаксировать с испусканием акустических фононов, т.е. с помощью гораздо более медленного процесса.

Теоретический анализ предсказывает, что релаксация с испусканием акустических фононов в квантовых точках должна быть еще медленнее, чем в объемном материале. Согласно вычислениям время этой релаксации должно быть порядка нескольких наносекунд, что больше типичного времени излучательной рекомбинации, лежащего в субнаносекундном диапазоне [21]. Возможно, что среди акустических фононов только продольные акустические (LA) фононы с длиной волны порядка диаметра квантовой точки и энергией, равной зазору между уровнями энергии носителей, могут обеспечивать эффективную однофононную релаксацию, поскольку в процессе релаксации с их участием могут быть выполнены правила отбора по энергии и импульсу. Хотя многофононная релаксация не лимитирована столь строгими правилами отбора, этот процесс, как ожидается, также будет крайне медленным, поскольку вероятность даже двухфононного процесса в первом приближении равна квадрату вероятности однофононного процесса [22].

Таким образом все возможные каналы фононно-индуцированной релаксации имеют в квантовых точках существенные ограничения. Предполагаемую в силу этого малую скорость релаксации горячих носителей принято называть в литературе “эффектом узкого фононного горла” [23]. Следует отметить, что этот эффект должен приводить к снижению интенсивности рекомбинационного излучения из основного состояния $e-h$ -пары, поскольку электрон и дырка быстрее рекомбинируют, находясь на возбужденных состояниях, чем релаксируют на основное состояние. Именно это возможное снижение интенсивности излучения и, как следствие, потенциальное ухудшение генерационных характеристик лазеров на квантовых точках вызвали столь большое внимание к предсказанному эффекту фононного горла.

В литературе существуют противоречивые определения эффекта узкого фононного горла. Часто, особенно в экспериментальных исследованиях, этим эффектом называют *любую* временную задержку релаксации носителей с испусканием фононов [24–26]. Отметим, что естественным временным масштабом при этом служит время излучательной рекомбинации $e-h$ -пары. Поэтому

мы будем говорить о существовании эффекта узкого фононного горла (phonon bottleneck) только в том случае, если скорость фононно-индуцированной релаксации горячих носителей меньше скорости их излучательной рекомбинации.

Последний процесс, показанный на рис. 3(с), есть релаксация, вызванная рассеянием одного носителя на другом, локализованном в квантовой точке или в окружающем материале. В этом процессе один из носителей теряет свою энергию, а другой приобретает ее. Обычно этот процесс называют релаксацией типа Оже-процесса (сокращенно Оже-релаксацией) [27, 28]. Известно, что релаксация вследствие Оже-процесса является быстрой, поскольку носители, как заряженные частицы, взаимодействуют друг с другом сильнее, чем с фононами. Очевидно, однако, что этот механизм релаксации может быть эффективен лишь в случае, когда несколько носителей содержатся в квантовой точке или ее окрестности.

Аналогичные механизмы могут быть рассмотрены в случае релаксации $e-h$ -пары. Горячая $e-h$ -пара может перейти в нижайшее излучательное состояние посредством испускания фотона или фонона (одного или нескольких) или рассеяния на носителе. Можно ожидать, что вероятность последних двух процессов для $e-h$ -пары выше, чем для одиночного носителя, поскольку закон сохранения энергии в случае $e-h$ -пары выполняется легче вследствие более высокой плотности состояний.

4 Экспериментальные исследования

Экспериментальное исследование релаксации носителей может быть выполнено различными методами. Наиболее прямым методом является изучение кинетики фотолюминесценции (photoluminescence, PL) после короткого лазерного импульса. Кинетика PL включает в себя нарастание и распад, обусловленный излучательной рекомбинацией $e-h$ -пары. Передний фронт импульса PL отражает эволюцию заселения излучательного состояния вследствие релаксации носителей из возбужденных состояний. Поэтому изучение кинетики нарастания PL в принципе позволяет изучать процесс релаксации носителей. Исследования такого рода требуют высокочувствительного экспериментального оборудования, имеющего при этом высокое спектральное и временное разрешение. В качестве быстрого фотоприемника в таких экспериментах часто используется стрик-камера. Пример экспериментальной установки такого типа описан в следующей главе (см. стр 37). Временное

разрешение подобных установок составляет несколько пикосекунд. В последующих главах будут подробно рассмотрены возможности исследования динамики носителей с помощью этого метода.

Более высокое временное разрешение, ограниченное только длительностью лазерного импульса, может быть достигнуто с помощью техники апконверсии (up-conversion) PL. В этом методе, импульсы PL квантовых точек и задержанные во времени лазерные импульсы направляются на нелинейный кристалл, в котором происходит сложение оптических частот PL и лазерного излучения. Полученное таким образом коротковолновое излучение анализируется спектрометром и детектируется чувствительным фотоприемником (как правило фотоумножителем), работающем в режиме накопления сигнала от многих импульсов. Высокое временное разрешение достигается безинерционностью сложения частот в нелинейном кристалле и тем обстоятельством, что сложение частот происходит только при перекрывании во времени импульса PL и лазерного импульса. Следует, однако, отметить, что метод ап-конверсии имеет существенно меньшую чувствительность и поэтому требует более высокой плотности возбуждающего излучения. Мощное возбуждение зачастую перераспределяет соотношение различных релаксационных механизмов в пользу Оже-процесса, что существенно ограничивает возможности исследования механизмов релаксации.

Еще одна экспериментальная техника основана на измерении дифференциального пропускания образца [29] (называемая также техникой наведенного поглощения [30]), является одним из вариантов pump-probe метода. В этом методе, накачивающие (pump) импульсы изменяют поглощение квантовой точки, а задержанные во времени пробные (probe) импульсы используются для детектирования эволюции поглощения. Эта техника также требует относительно сильной накачки образца (как любая нелинейная техника) и зачастую не позволяет изучать собственные релаксационные механизмы. Помимо этого, такая техника фактически не может быть использована для исследования непрозрачных образцов.

В работах [14–16] описан оригинальный экспериментальный метод, основанный на управлении безызлучательными потерями с помощью электрического поля. Электрическое поле позволяет изменять скорость туннелирования носителей из квантовых точек, делая ее последовательно сравнимой со скоростью релаксации с испусканием акустических фононов, испусканием ЛО фононов, или рассеянием носителя на носителе. Туннелирование носителей приводит к тушению и изменению спектра PL, измеренного в стационарных условиях. В результате этот спектр отражает спектральную зависимость скорости релаксации носителей в ансамбле квантовых точек. В каком-то смыс-

ле безызлучательный процесс работает как эффективный оптический затвор переменной длительности для PL квантовых точек. Описанный метод позволяет изучать спектральную зависимость скорости релаксации носителей с высоким спектральным и временным разрешением при низкой плотности мощности оптического возбуждения. Детальное обсуждение возможностей этого метода содержится в главах 2 и 3.

Релаксация носителей в самоорганизованных квантовых точках исследовалась прямыми измерениями кинетики PL во многих работах [10, 13, 24–26, 29, 31–38]. Почти во всех измерениях было обнаружено относительно быстрое нарастание PL из нижайших энергетических состояний квантовой точки (обычно быстрее 100 ns), которое рассматривается как доказательство быстрого захвата носителей из барьера или смачивающего слоя с их последующей релаксацией в квантовой точке¹. Этот общий результат экспериментов противоречит теоретически предсказанному эффекту фононного узкого горла для релаксации носителей в квантовых точках. Именно по этой причине было предпринято много усилий для экспериментального исследования физических механизмов релаксации.

Кинетика PL квантовых точек InGaAs была исследована в работе [10] при межзонном возбуждении барьерных слоев. Было установлено, что времена релаксации носителей при низкой температуре и низкой плотности мощности возбуждения не превосходят несколько десятков пикосекунд. Увеличение плотности мощности накачки выше некоторого порогового значения $P_0 \approx 4 \text{ W/cm}^2$ вызывало закономерное сокращение времени нарастания импульса PL. Это было интерпретировано как проявление Оже-процессов, которые ускоряют как захват носителей так и их последующую релаксацию внутри квантовой точки. Важный результат был получен при изучении температурной зависимости релаксации носителей при слабом возбуждении. Обнаруженное значительное ускорение релаксации с увеличением температуры вплоть до 70 K хорошо описывается, как было показано, термоактивированными процессами стимулированного испускания фононов. Энергия эффективных фононов, полученная из анализа температурной зависимости скорости релаксации, оказалась порядка 3 meV. Это позволило авторам объяснить температурную зависимость релаксации с помощью многофононных процессов, в которые вовлечены специфические продольные акустические (LA) фоно-

¹Имеется несколько работ (см., например, [31, 39, 40]), в которых сообщалось о достаточно длинном времени нарастания PL в несколько сот пикосекунд. По нашему мнению, прежде чем делать выводы о малой скорости релаксации носителей, должна быть тщательно изучена причина медленного нарастания PL в каждом отдельном случае. В частности должны быть рассмотрены такие возможности, как локализация носителей на дефектах, перезарядка квантовых точек, и т.д.

ны с длиной волны порядка диаметра основания квантовой точки. Следует подчеркнуть, что, хотя полученные экспериментальные результаты были объяснены привлечением Оже и многофононных процессов, никаких прямых доказательств предложенных механизмов релаксации приведено не было.

Более прямое исследование механизмов релаксации было представлено в работе Vollmer *и др.* [13] для случая квантовых точек InP. Авторы исследовали время-разрешенные спектры PL при возбуждении чуть выше полосы люминесценции точек (такое возбуждение будем называть далее квазирезонансным). Было обнаружено, что в течение первых нескольких десятков пикосекунд в спектрах PL наблюдаются особенности (резонансы), сдвинутые от энергии возбуждения на энергию одного или нескольких LO фононов. Это является прямым наблюдением быстрой релаксации носителей с испусканием LO фононов в тех квантовых точках, в которых расстояние между уровнями равно энергии LO фононов. Ограниченное временное и спектральное разрешение однако не позволило авторам определить экспериментально механизм релаксации в остальных квантовых точках. Они предположили, что этим механизмом является релаксация с испусканием акустических фононов, однако не привели никаких соображений о типе фононов и природе электрон-фононного взаимодействия.

К настоящему времени найдены многочисленные проявления релаксации носителей с испусканием фононов в спектрах PL при квазирезонансном возбуждении и в спектрах возбуждения люминесценции (PLE) различных образцов с квантовыми точками [33, 41–46]. В спектрах этих образцов LO фононные резонансы хорошо наблюдаются в стационарных условиях возбуждения. Heitz *и др.* [42] объяснили это наблюдение, предположив, что в исследованных структурах существуют безызлучательные потери возбужденных носителей. Если возбужденный носитель “убегает” из точки достаточно быстро, то этот процесс может конкурировать с релаксацией носителя на нижайший уровень. В этом случае только быстрая релаксация с испусканием LO фононов “спасает” PL квантовых точек. Детальное исследование, выполненное в работе [33], позволило авторам определить несколько типов LO фононов, участвующих в релаксационных процессах в квантовых точках InAs. Никаких доказательств участия фононов других типов в релаксационных процессах найдено не было.

В заключении обсуждения этих экспериментов следует подчеркнуть, что только LO фононная релаксация была идентифицирована в прямых экспериментах как собственный релаксационный механизм при низкой плотности мощности возбуждения. Некоторые косвенные свидетельства релаксации с испусканием низкочастотных LA фононов были найдены при изучении тем-

пературной зависимости времени нарастания PL [10, 36]. Роль фононов с энергиями, лежащими в диапазоне от 3 meV (LA фононы с длиной волны порядка диаметра основания квантовой точки) до энергий LO фононов (30 meV в квантовых точках InAs и 45 meV в квантовых точках InP), не была изучена.

5 Теоретические исследования

Описанная ситуация в экспериментальном изучении релаксации стимулировала многочисленные теоретические исследования собственных механизмов релаксации [21, 22, 47–52]. Inoshita и Sakaki [22] еще в 1992 году обсуждали двухфононные процессы, включающие LO \pm LA комбинации, что позволяет расширить энергетическое окно для быстрой релаксации до нескольких meV в окрестности энергии LO фононов. Другая теоретическая идея основана на предположительно сильном электрон-LO-фононном взаимодействии, приводящем к расщеплению Раби смешанных электрон-фононных состояний [49, 51]. В этом случае ангармонический распад LO фононов должен приводить к большому уширению энергетических уровней электронов и дырок и быстрой релаксации носителей в широком энергетическом окне, составляющем порядка 20 meV в случае квантовых точек InAs [51]. Однако, как показано в работе [16], это предсказание не подтверждается экспериментом.

Помимо собственных механизмов релаксации, теоретически рассматривался также механизм, связанный с наличием различных дефектов [47, 48, 50]. Этот механизм предполагает некоторую специальную энергетическую структуру и специальное расположение дефектов, что обеспечивает эффективное тунелирование горячего носителя на дефект, его последующую быструю релаксацию на дефекте и, наконец, тунелирование обратно в квантовую точку. Следует сказать, что дефекты действительно должны существовать внутри или в окрестности квантовой точки вследствие рассогласования решеток материала квантовой точки и кристалла-матрицы. Некоторые косвенные доказательства наличия дефектов действительно были найдены при изучении безызлучательных потерь [13, 33, 41–43] и анти-стоксовой PL в квантовых точках [53]. В настоящее время однако не существует прямых экспериментальных доказательств релаксации носителей с использованием дефектов в окрестности КТ.

Следует упомянуть также еще об одном механизме, предложенном Toda и др. [52]. В этой работе наблюдался сплошной фоновый сигнал в спектре PLE одиночных квантовых точек InGaAs. Было предположено, что квантовые точки имеют квазидвумерный спектр сплошных состояний. Авторы

считают, что горячие носители могут легко релаксировать по континууму этих состояний с резонансным испусканием локализованных фононов. Авторы однако не обсуждают природу сплошного спектра состояний в квантовых точках. Из проведенного выше обсуждения ясно, что наиболее вероятно они наблюдали континуум энергетических состояний e - h -пары, показанный на рис. 2(b). Нижняя граница континуума определяется энергией нижайшего энергетического уровня электрона в квантовых точках и энергией наиболее высоковозбужденных состояний дырок, соответствующей их делокализации в смачивающем слое. Глубина потенциальной ямы для дырок около 50 meV, как можно заключить из данных работы [52]. Это как раз та энергия, с которой начинается сплошной спектр PLE. Следует подчеркнуть, что оптические переходы из высоковозбужденных дырочных состояний на основное электронное состояние должны быть частично разрешены вследствие низкой симметрии квантовой точки.

Оже-процессы релаксации носителей также изучались достаточно интенсивно. Эти процессы важны с практической точки зрения, в частности в случае лазерных применений структур с квантовыми точками, поскольку в этом случае рождается множество носителей как внутри, так и в окрестности квантовых точек. Как правило, изучение Оже-процессов заключается в измерении зависимости времени релаксации носителей от мощности накачки [10, 11, 36–38]. Во всех этих работах наблюдалось значительное сокращение времени релаксации вплоть до субпикосекундных времен при достаточно интенсивной накачке.

В литературе теоретически рассматривались несколько Оже-процессов, включая электрон-электронное, дырочно-дырочное и электрон-дырочное рассеяния [27, 28, 54–56]. В частности, электрон-дырочное рассеяние детально анализировалось в работах [28, 55]. Однако, как было уже отмечено, перенос энергии от электрона к дырке и обратно сам по себе не сопровождается изменением энергии e - h -пары. Поэтому этот процесс не может рассматриваться как энергетическая релаксация e - h -пары без привлечения дополнительного процесса, такого как испускание фонона или рассеяние пары на некотором избыточном носителе.

Еще одним Оже-процессом, предложенным Wockelmann и Eleger [27], является взаимодействие носителей с электрон-дырочной плазмой в окрестности квантовой точки, созданной интенсивной оптической накачкой. Предполагается, что этот процесс является важным при захвате носителя из барьерного слоя в квантовую точку [10, 11]. Следует снова подчеркнуть, что эксперименты, выполненные к настоящему времени, не дают никаких прямых доказательств существования этого Оже-процесса.

6 Что обсуждается далее

В последующих главах мы подробно рассмотрим релаксацию носителей в самоорганизованных квантовых точках InP и InGaAs. Гетероструктуры с этими типами точек интенсивно изучаются вследствие их свойств, привлекательных для приборных применений [5,6]. Мы обсудим в деталях экспериментальные данные, полученные двумя методами. Первый из них основан на регистрации время-разрешенной PL, а второй на управлении безызлучательными потерями PL, как уже кратко описывалось в разделе 4. Эти методы могут быть с успехом применены для исследования последнего шага релаксации [см. рис. 2(а-с)]. Они позволяют определить экспериментальные условия, при которых становится эффективным тот или иной релаксационный процесс.

На основании анализа экспериментальных данных будет показано, что релаксация $e-h$ -пары с испусканием LO фононов в рассматриваемых структурах характеризуется очень коротким временем в единицы или доли пикосекунд. Будут также приведены убедительные экспериментальные доказательства того, что релаксация с испусканием акустических фононов не так сильно подавлена, как это было предсказано теоретически. В частности, взаимодействие с высокочастотными акустическими приводит к относительно быстрой релаксации, которая лишь на порядок медленнее, чем релаксация с испусканием LO фононов. Нами обсуждается возможный физический механизм, лежащий в основе достаточно сильного взаимодействия $e-h$ -пары с высокочастотными акустическими фононами. Вся совокупность экспериментальных данных убедительно показывает, что не существует никакого эффекта узкого фононного горла в квантовых точках.

Нами обсуждается также несколько конкретных Оже-процессов релаксации носителей и экспериментальные условия, при которых эти процессы происходят. В частности рассматривается релаксация носителей при наличии избыточного заряда в квантовой точке, а также в случае протекания тока через слой квантовых точек. Демонстрируются ясные экспериментальные доказательства большинства обсуждаемых процессов.

Глава 2

Объекты и методы исследования

1 Структуры с квантовыми точками

В данной работе мы будем подробно рассматривать процессы релаксации горячих носителей на примере структур с самоорганизованными квантовыми точками InP и InGaAs, обсуждаемых в работах [14–16, 57, 58]. Сравнение результатов, полученных на этих структурах, позволяет яснее понять степень общности обсуждаемых релаксационных процессов, а также те отличия, которые возникают из-за особенностей гетероструктур.

Особенностью квантовых точек InP является малая глубина потенциальной ямы для дырок [16, 59, 60]. По этой причине спектр состояний e - h -пары является плотным — расстояния между дискретными уровнями составляет единицы meV, а край сплошного спектра расположен выше излучательного уровня всего на 15 meV. Квантовые точки InGaAs имеют более разреженный спектр дискретных состояний e - h -пары, а сплошной спектр состояний начинается выше излучательного уровня на 50 meV или больше.

Обсуждаемые здесь гетероструктуры с квантовыми точками InP были выращены методом молекулярной пучковой эпитаксии с газовыми источниками мышьяка и фосфора. Зонная структура одного из образцов приведена на рис. 4. Детали технологии выращивания гетероструктур описаны в работе [61]. Вкратце они сводятся к следующему. На n -легированной подложке GaAs выращивался буферный слой толщиной 300 nm при 600°C. Для подавления дислокаций в середине буферного слоя помещена сверхрешетка,

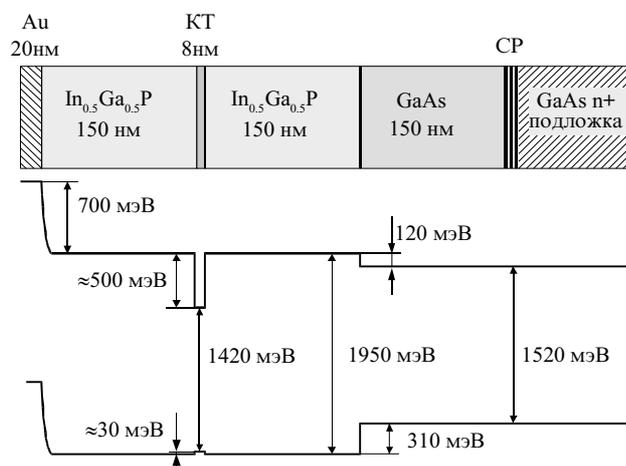


Рис. 4: Зонная диаграмма образца, содержащего квантовые точки InP.

состоящая из 3-х слоев AlAs толщиной 2 нм, разделенных слоями GaAs толщиной 10 нм. На поверхности буферного слоя выращен тонкий (2 нм) слой AlAs для предотвращения взаимодиффузии атомов между слоями GaAs и InGaP. Слой квантовых точек InP с номинальной толщиной 4 монослоя (ML) был выращен между барьерными слоями In_{0.5}Ga_{0.5}P толщиной по 100 нм. Скорость роста составляла 0.5 ML/s для слоев InGaP и 0.25 ML/s для квантовых точек InP. Время прерывания роста до и после выращивания точек равнялось 2 и 20 секунд соответственно.

Образцы с квантовыми точками In_{0.35}Ga_{0.65}As выращивались методом металло-органической газофазной эпитаксии на p-легированной подложке GaAs с ориентацией (711)В [62]. Слой квантовых точек с номинальной толщиной 4.5 ML выращен между слоями GaAs с толщинами 250 нм и 100 нм, включающими тонкие (2 нм) слои AlAs для предотвращения диффузии фоторожденных носителей. Отметим, что все образцы были выращены на хорошо проводящих подложках GaAs с концентрацией носителей (электронов) не ниже 10^{18} см^{-3} . Это позволяло использовать заднюю поверхность образцов в качестве одного из электродов.

Для характеристики геометрических параметров и статистики квантовых точек в ансамбле нами использовались микроскопические методы AFM и HRTEM, уже упоминавшиеся во введении (см. стр. 33). Атомная силовая

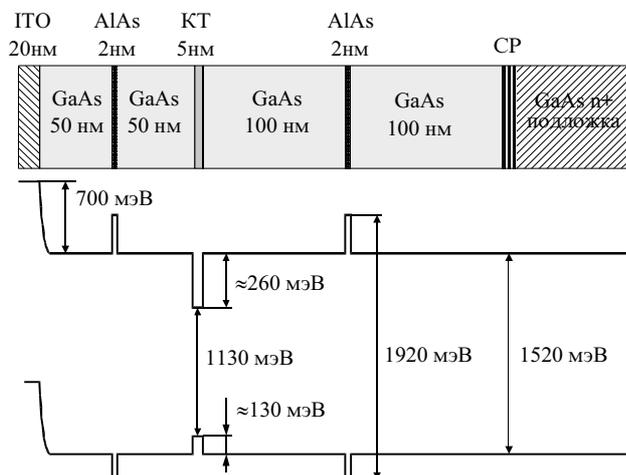


Рис. 5: Зонная диаграмма образца, содержащего квантовые точки InGaAs.

спектроскопии позволяет определять примерные размеры квантовых точек и их двумерную плотность (плотность точек в плоскости слоя). Для этого используются так называемые образцы-свидетели, которые выращиваются при тех же технологических условиях, что и рабочие образцы, но без верхнего буферного слоя. Пример двумерного изображения, полученного таким образом для структуры с квантовыми точками InP, приведен на рисунке 6.

Отсутствие верхнего буферного слоя может приводить к некоторому различию в размерных параметрах квантовых точек на образце-свидетеле по сравнению с рабочим образцом. Поэтому для определения размеров точек непосредственно в рабочем образце используется просвечивающая электронная микроскопия, имеющая к тому же более высокое пространственное разрешение (вплоть до атомного). Такие измерения проводятся вдоль поперечного сечения (скола) гетероструктуры. Пример получаемого изображения приведен на рисунке 7. Следует отметить, что получение ТЕМ-изображения является гораздо более трудоемкой, и поэтому более дорогой операцией (необходима подготовка специального образца). Обычно оба указанных метода используются вместе, АФМ — для определения статистических характеристик ансамбля квантовых точек (среднего размера точек, двумерной плотности точек, и т.д.), ТЕМ — для прецизионного исследования формы точек, их

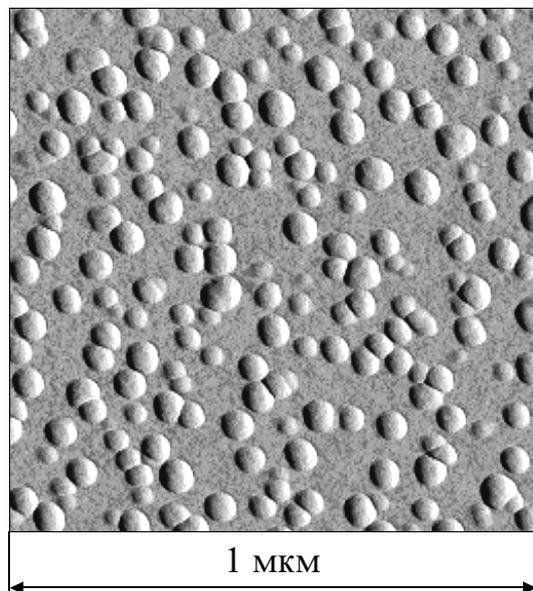


Рис. 6. Двумерное изображение ансамбля квантовых точек InP, полученное с помощью атомной силовой микроскопии

интерфейса с барьерными слоями, упругих напряжений, и т.д.

Для обсуждаемых в данной работе структур с квантовыми точками InP двумерная плотность точек, измеренная с помощью атомной силовой микроскопии, составляла около 10^{10} см^{-2} . Средний диаметр квантовых точек по основанию составил 35–40 нм, а высота приблизительно 5 нм. Для одного из образцов эти значения были проверены с помощью просвечивающей электронной микроскопии. Для структур с квантовыми точками $\text{In}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ двумерная плотность точек была приблизительно вдвое меньше, чем в структурах с точками InP. Средний диаметр точек по основанию составлял ≈ 70 нм, а высота ≈ 10 нм. Приведенные данные о двумерной плотности соответствуют среднему расстоянию между квантовыми точками порядка 100–150 нм, которое в несколько раз превышает диаметр квантовых точек. Поэтому можно считать, что релаксационные процессы происходят в изолированных квантовых точках, т.е. перенос возбуждения между квантовыми точками мал.

Рассматриваемые квантовые точки являются достаточно “большими” в обоих типах структур. Вследствие этого, как это уже отмечалось выше, энергетические уровни $e-h$ -пар расположены достаточно плотно. Кроме то-

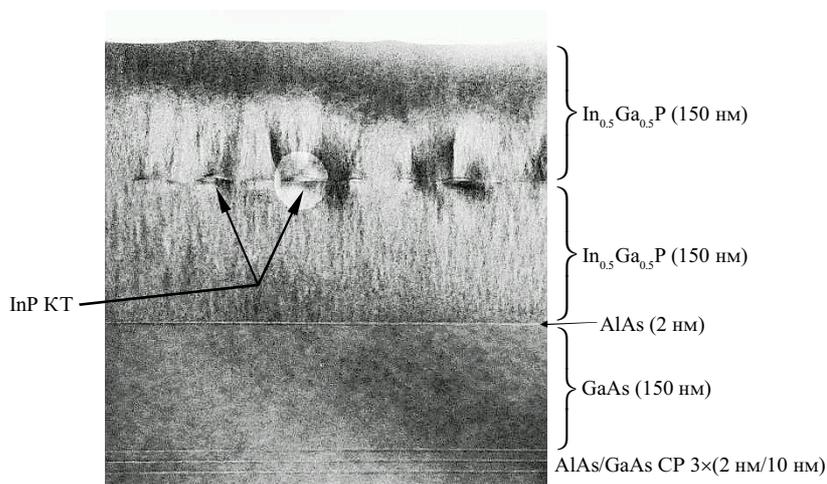


Рис. 7: Изображение поперечного сечения гетероструктуры с одним слоем квантовых точек InP, полученное с помощью просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения (HRTEM). Кружком выделена одна из квантовых точек.

го, в случае квантовых точек InP малое расстояние между уровнями обусловлено также малой глубиной потенциальной ямы для дырок. Плотный энергетический спектр позволяет изучать релаксационные процессы с участием различных типов фононов, как высокоэнергетичных LO фононов, так и низкоэнергетичных акустических фононов. В “маленьких” квантовых точках InGaAs низкоэнергетичные фононы в принципе могли быть исключены из релаксационного процесса из-за большой энергетической щели между излучательным и первым возбужденным состояниями e - h -пары.

2 Экспериментальная техника.

Один слой самоорганизованных квантовых точек представляет собой очень тонкий слой материала с эффективной толщиной в единицы нанометров. Поэтому он оказывает очень малое влияние на большинство физических свойств образца, в том числе и на такие оптические характеристики, как коэффициент преломления и показатель поглощения. В результате многие стандартные оптические методы (исследование спектров отражения, пропускания и

поглощения) становятся малоэффективными при изучении самоорганизованных квантовых точек. Единственной группой оптических методов, которые остаются эффективными в этом случае, являются методы, основанные на регистрации сигнала люминесценции квантовых точек. Ниже будут описаны два метода, с успехом использованные при изучении релаксации носителей в квантовых точках.

Первый метод основан на изучении спектров PL при квазирезонансном оптическом возбуждении в присутствии внешнего электрического поля. Такой подход имеет два существенных преимущества. Во-первых, квазирезонансное возбуждение рождает $e-h$ -пару на одном из ближайших к излучательному возбужденных состояний, так что релаксация пары на излучательное состояние может происходить “в один шаг” [этап (3) на рис. 2(с)]. Это позволяет изучать непосредственно последний (самый медленный) этап релаксации. Во-вторых, электрическое поле вызывает туннелирование носителей из квантовых точек в барьерный слой и, как следствие, уменьшение квантового выхода (тушение) люминесценции. Туннелирование носителей из возбужденных состояний конкурирует с их релаксацией, что приводит к зависимости тушения PL от скорости релаксации носителей. В результате этого спектр PL неоднородно уширенного ансамбля квантовых точек отражает, при определенных условиях, спектр скоростей релаксации, т.е. зависимость скорости релаксации от величины энергетического зазора между возбужденным и излучательным уровнями $e-h$ -пары (см. следующие разделы). Важно, что скоростью туннелирования можно управлять, изменяя величину приложенного электрического поля, и тем самым можно изменять соотношение между конкурирующими процессами. Это дает эффективный метод исследования спектра скоростей релаксации в стационарных условиях.

Для исследования спектров PL во внешнем электрическом поле на переднюю поверхность образцов наносились полупрозрачные электроды из золота или оксида индия и олова (indium tin oxide, ITO), создающие на поверхности барьер Шоттки. На заднюю поверхность образцов наносился омический контакт из золота с небольшим содержанием германия. При изучении фононно-индуцированной релаксации использовалось квазирезонансное возбуждение PL с помощью непрерывного лазера с достаточно малой плотностью мощности накачки, как правило менее 100 W/cm^2 , чтобы избежать рождения более чем одной $e-h$ -пары на точку. Отметим, что возбуждение может рассматриваться как слабое, если интенсивность PL линейно зависит от мощности накачки и при этом форма полосы PL не изменяется.

При проведении экспериментов в качестве источника оптического возбуждения использовался перестраиваемый титан-сапфировый лазер. Лазер-

ная линия не имела побочных полос (спутников). Ее спектральная ширина не превышала 0.01 meV. Спектральный анализ люминесценции проводился с использованием двойного монохроматора U1000 (фокусное расстояние 1 м, числовая апертура 1:8, линейная дисперсия 0.36 nm/mm), имеющего очень низкий уровень рассеянного света (порядка 10^{-14} на расстоянии 3 nm от лазерной линии). Спектральное разрешение всей установки было порядка 0.15 meV. Для детектирования сигнала использовались охлаждаемые фотоумножители с фотокатодами GaAs или InGaAs и система счета фотонов.

Второй метод исследования релаксации заключается в исследовании кинетики PL квантовых точек при квазирезонансном возбуждении короткими лазерными импульсами. Кинетика нарастания импульса PL (передний фронт импульса) определяется только скоростью релаксации возбужденной $e-h$ -пары на излучательный уровень, если другие процессы опустошения возбужденного уровня (например, безызлучательные потери или излучательная рекомбинация носителей до их релаксации) являются медленными. Исследование кинетики PL в различных спектральных точках позволяет также определить спектральную зависимость скорости релаксации. В отличие от предыдущего метода, при достаточно высоком временном разрешении этот метод позволяет получить абсолютные значения скорости релаксации. Однако из-за использования импульсного возбуждения в этом методе труднее достичь высокого спектрального разрешения при сохранении низкого уровня плотности мощности возбуждения.

Кинетика люминесценции, обсуждаемая в следующем разделе, исследовалась с помощью пикосекундного титан-сапфирового лазера с длительностью импульсов 2 ps, и частотой их повторения 82 MHz. В большинстве экспериментов использовалась относительно низкая средняя плотность мощности возбуждения порядка 50 W/cm^2 для предотвращения возможности рождения более одной $e-h$ -пары в квантовой точке. Это позволяло избежать релаксации вследствие рассеяния носителя на носителе. Для накопления сигнала в отдельных спектральных точках использовалась установка, включающая двойной монохроматор с вычитанием дисперсии (фокусное расстояние 0.25 м, использованное спектральное разрешение 0.5 nm) и стрик-камера фирмы Hamamatsu, Япония. Временное разрешение всей установки составляло около 6 ps.

Достижение столь высокого временного разрешения в экспериментах по регистрации фотолюминесценции при умеренных плотностях возбуждения¹

¹Существуют экспериментальные методы, такие как pump-probe или ап-конверсия (up-conversion) люминесценции (см. введение, стр. 24), в которых временное разрешение ограничено только длительностью лазерных импульсов. Однако чувствительность этих методов существен-

стало возможным в последние годы благодаря быстрому прогрессу экспериментальной техники. Центральными устройствами здесь являются источники коротких световых импульсов для возбуждения люминесценции и быстрые фотоприемники. В качестве удобных импульсных источников света используются лазеры с синхронизацией мод², позволяющие получать периодически следующие импульсы с длительностями вплоть до десятков фемтосекунд ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{ s}$). Однако столь короткие импульсы неудобны для большинства спектроскопических исследований из-за их большой спектральной ширины (порядка 200 meV для 10-ти фемтосекундного импульса). Поэтому зачастую используются пикосекундные лазерные импульсы.

Среди быстрых фотоприемников несомненным лидером является стрик-камера (synchro-scan streak-camera). Следует отметить, что ее собственное временное разрешение (2 ps) в несколько десятков раз выше, чем у быстрых (лавинных) фотодиодов, и в несколько сот раз превосходит лучшие фотомножители. Стрик-камера не является распространенным прибором в России, поэтому здесь уместно сказать несколько слов о принципе ее действия. Основой стрик-камеры является осциллографическая трубка, в которой электронная пушка заменена на фотокатод. Пучок электронов, эммитированных фотокатодом под воздействием импульса люминесценции, перефокусируется на экран трубки и разворачивается во времени с помощью синусоидального напряжения, что позволяет добиться высокой скорости развертки порядка 10 ps на миллиметр экрана. При этом используется начальный (квазилинейный) участок синусоиды. Частота синусоиды строго синхронизована с частотой следования лазерных импульсов и, соответственно, импульсов фотолюминесценции. Изображение яркой полосы на экране трубки усиливается далее с помощью микроканальной пластины (micro-channel plate), регистрируется видеокамерой и обрабатывается компьютером. Полезным сигналом является зависимость яркости свечения экрана от координаты вдоль направления развертки (оси времени).

Хотя описанный принцип достаточно прост, революционный скачок во временном разрешении и чувствительности достигается доведением всей системы до высокого уровня совершенства. Качественной характеристикой высокой чувствительности стрик-камеры (она обеспечивается микроканальной пластиной) может служить возможность наблюдения вспышек света на экране монитора от отдельных фотонов, попавших на фотокатод. Стабильность всей системы, включая лазер с синхронизацией мод и генератор развертки стрик-

но ниже.

²Принцип синхронизации мод известен достаточно давно, см., например, О. Звелто *Принципы лазеров*, изд. "Мир", М. 1990

камеры, такова, что позволяет регистрировать сигнал с временным разрешением 2 ps при накоплении миллиардов импульсов. Чтобы по достоинству оценить это временное разрешение, следует вспомнить, что за 2 ps свет проходит всего 0.6 мм. В связи с этим отметим, что в современном эксперименте оптический путь от лазера до образца и от образца до стрик-камеры может составлять несколько метров, поэтому такие малые помехи, как механические вибрации элементов оптики, а в ряде случаев и воздушные потоки, могут заметно влиять на точность измерений.

Для измерения зависимости кинетики PL от длины волны помимо лазера и стрик-камеры, используется спектральный прибор. Традиционно в качестве такого прибора используется спектрограф (или монохроматор без выходной щели), выходная фокальная плоскость которого перепроецируется на фотокатод стрик-камеры таким образом, что на разные точки фотокатода попадают фотоны с разной длиной волны. В результате фотокатодом, имеющим вид длинной полоски, ориентированной поперек направления временной развертки электронного луча, регистрируется одновременно некоторый участок спектра люминесценции. На экране монитора получается двумерное изображение, по одной оси которого изменяется длина волны регистрируемого излучения, а по другой – время.

При всех достоинствах такой схемы эксперимента (за один эксперимент регистрируются спектрально-временные характеристики излучения), она имеет два существенных недостатка. Во-первых, снижается временное разрешение установки. Дело в том, что длины оптических путей для лучей, дифрагированных от различных участков дифракционной решетки спектрального прибора, могут различаться на вполне заметную величину вплоть до нескольких сантиметров. Соответственно, импульс излучения, проходя через этот прибор, растягивается (расплывается) во времени. Во-вторых, в прибор попадает мощный импульс лазерного излучения, на много порядков превосходящий сигнал PL и дающий большую фоновую засветку.

К счастью существует эффективный способ борьбы с этими нежелательными эффектами. Он заключается в использовании вместо спектрографа двойного монохроматора с вычитанием дисперсии, представляющий собой два идентичных спектральных прибора, поставленных навстречу друг-другу (их выходные фокальные плоскости совмещены). В этом монохроматоре разность хода лучей в первой его половине полностью компенсируется во второй половине, и расплывания импульса не происходит. Кроме того, такой монохроматор представляет собой почти идеальный прямоугольный полосовой фильтр (поскольку аппаратные функции двух его половинок перемножаются) и позволяет эффективно подавить паразитный сигнал от возбуждающего

лазерного импульса. Именно такая схема использовалась в экспериментах, обсуждаемых в данной книге. Единственным недостатком такой системы является невозможность одновременной регистрации кинетики PL сразу в большом спектральном диапазоне. В каждый момент времени фактически регистрируется сигнал на только одной длине волны, на которую настроен монохроматор. Это сильно увеличивает время, необходимое для проведения измерений.

В заключении отметим, что большая часть обсуждаемых экспериментов проводилась при низкой температуре образца (от 2 до 5 К) с тем, чтобы исключить любые процессы поглощения или стимулированного испускания фононов. Исключение составляют эксперименты, в которых изучалось влияние температуры на скорость релаксации (см. главу 7).

3 Спектры фотолюминесценции во внешнем электрическом поле

Спектры PL структур с квантовыми точками, измеряемые при нерезонансном возбуждении и низкой температуре, обычно обнаруживают интенсивную полосу свечения точек, доминирующую над полосами свечения барьерного и смачивающего слоев. При достаточно низкой плотности мощности возбуждения, полоса PL квантовых точек имеет гладкую куполообразную форму с шириной на полувысоте (FWHM) в несколько десятков meV. Обычно считается, что эта полоса сформирована излучательной рекомбинацией e - h -пар преимущественно из нижайшего состояния. Для проверки этого предположения проводятся измерения спектров возбуждения PL, которые позволяют определить спектральное положение переходов между возбужденными уровнями, если неоднородное уширение переходов не сильно превосходит расстояние между уровнями¹. Интересную возможность дает также так называемая спектроскопия заполнения состояний (“state filling spectroscopy”) [63]. В этом методе используется интенсивная нерезонансная оптическая накачка, позволяющая заселить квантовую точку несколькими e - h -парами. Вследствие запрета Паули (“Pauli blocking”) часть этих пар остается некоторое время на возбужденных уровнях и может рекомбинировать с испусканием фотонов, соответствующих возбужденным переходам. Подобные исследования действи-

¹В случае низкого квантового выхода PL этот метод встречает большие трудности, поскольку в спектре возбуждения PL появляются “ложные” максимумы, отстоящие выше нижайшего перехода на энергию одного или нескольких LO фононов. Этот эффект подробно рассмотрен, например, в работе [33]

тельно показывают, что при низких мощностях возбуждения интенсивность излучения из возбужденных состояний мала. Это является указанием на то, что скорость релаксации горячих носителей значительно превосходит скорость излучательной рекомбинации. Форма полосы PL квантовых точек определяется в основном статистическим разбросом размеров и формы квантовых точек, приводящим к разбросу энергий нижайшего возбужденного состояния $e-h$ -пар и тем самым к неоднородному уширению оптического перехода.

При квазирезонансном возбуждении, когда $e-h$ -пара рождается непосредственно в квантовой точке, интенсивность полосы PL квантовых точек на 2-3 порядка меньше чем в случае нерезонансного возбуждения с той же плотностью мощности. Это связано с малым коэффициентом поглощения одного слоя квантовых точек по сравнению с поглощением в барьерном слое. Форма полосы PL при этом остается гладкой куполообразной для высококачественных структур и обнаруживает различные спектральные особенности (резонансы) для структур с большими безызлучательными потерями. Подробнее этот вопрос будет рассматриваться ниже.

В качестве примера на рис. 8 приведены спектры PL одного из образцов с квантовыми точками InP при нерезонансном и резонансном возбуждении. Как видно из рисунка, наиболее интенсивной является полоса PL квантовых точек. Отметим, что она не содержит никаких особенностей при любых энергиях возбуждения. Спектр возбуждения люминесценции (PLE) также является гладким.

Полоса PL квантовых точек испытывает радикальную перестройку при приложении внешнего электрического поля. Поведение полосы сильно различается для положительного и отрицательного потенциала (электрического смещения, bias), приложенного к поверхности образца.

При небольшом положительном потенциале, приложенном к поверхности образца, интенсивность PL уменьшается с увеличением потенциала. Однако при величине потенциала $U_{bias} > U_{Shottky}$ электрический ток, протекающий через образец, начинает сильно возрастать. Здесь $U_{Shottky}$ - потенциал барьера Шоттки, образованного полупрозрачным электродом на поверхности образца ($U_{Shottky} = 0.5 \text{ V}$ и 0.7 V для ITO и золотого электродов, соответственно). Протекающий через образец электрический ток приводит к быстрой релаксации носителей, которая обсуждается в следующей главе. Кроме того, для структур с квантовыми точками InP наблюдается интересное явление антистоксовой люминесценции [53], обсуждение которого выходит за рамки данной работы.

Когда к поверхности образца прикладывается отрицательное смещение, интегральная интенсивность PL уменьшается. В то же время падение интен-