включающей быструю компоненту нарастания PL со скоростью Оже-релаксации γ_A в некоторой доли квантовых точек α и медленную компоненту нарастания со скоростью фононно-индуцированной релаксации γ_{ph} в остальных квантовых точках. Подгоночные кривые сворачивались с функцией Гаусса с полушириной 5 рs, моделирующей аппаратную функцию установки. Скорость γ_A выбиралась равной 1 ps⁻¹, т.е. считалось, что Оже-процесс происходит практически мгновенно в рассматриваемом масштабе времен.



Рис. 31: Зависимость времени нарастания PL в области LA резонанса со Стоксовым сдвигом $\Delta E = 22.5$ meV (квадратики), а также электрического тока (кружочки) от приложенного напряжения для образца с квантовыми точками InP. Вставка: Кинетика PL при нулевом напряжении (зашумленная кривая). Сплошной линией показана подгонка медленной компоненты нарастания PL с помощью функции 6.1 с параметром $\alpha = 0$. Хорошо видна быстрая компонента нарастания PL.

Зависимость доли α от приложенного напряжения $U_{\rm bias}$ показана для случая квантовых точек InP на рис. 31. Видно, что доля быстрой компоненты PL увеличивается с увеличением положительного напряжения. Следовательно с ростом напряжения растет доля заряженных точек, а также количество избыточных носителей в каждой квантовой точке. Как показано в работе [89], в обсуждаемых квантовых точках содержится в среднем один избыточный электрон при $U_{\rm bias} \approx -0.2$ V.



Рис. 32: Зависимость электрического тока (кружочки) и скорости нарастания PL в области LA резонанса со Стоксовым сдвигом $\Delta E = 18$ meV (квадратики) от напряжения для образца с квантовыми точками InGaAs.

Аналогичных эффект наблюдается и для квантовых точек InGaAs, как показано на рис. 32. Поскольку временное разрешение установки в этом случае было недостаточно для разделения быстрой и медленной компонент PL, из эксперимента определялась некоторая эффективная скорость нарастания PL путем подгонки кинетики PL функцией (4.4) с параметром $\alpha = 0$. Видно, что при положительных напряжениях скорость нарастания PL резко увеличивается, что говорит о зарядке квантовых точек. Знак избыточных носителей для этих квантовых точек неизвестен.

4 Оже-процессы, индуцированные электрическим током

Последним Оже-процессом, который рассматривается в данной работе, является релаксация *e*-*h*-пар, индуцированная электрическим током, как это схематически показано на рис. 27(d). Этот процесс может быть проиллюстрирован экспериментальными данными, показанными на рисунках 31 и 32 для случая достаточно большого отрицательного напряжения. Хорошо видно, что при увеличении отрицательного напряжения происходит резкое увеличение электрического тока через образец, что сопровождается сокращением эффективного времени нарастания PL. Кинетика PL квантовых точек InP в этом случае хорошо подгоняется функцией (4.4) со скачкообразным нарастанием PL. Представляется естественным приписать наблюдаемое ускорение релаксации носителей в квантовой точке их взаимодействию с носителями тока, хотя нельзя исключить, что некоторую роль может оказывать зарядка квантовых точек вследствие туннелирования дырок из них при большом отрицательном напряжении [16].

Количественное описание Оже-процесса, обусловленного электрическим током, в настоящее время является нерешенной проблемой, требующей моделирования движения носителей через слой квантовых точек. Частично эта проблема теоретически рассматривалась в работе [27] как проблема взаимодействия локализованных в квантовой точке носителей с электроннодырочной плазмой в окружающем материале. В этой работе показано, что скорость релаксации носителей может достигать величин в единицы пикосекунд. Приведенные выше экспериментальные данные указывают на то, что сечение взаимодействия движущихся носителей с носителями, локализованными в квантовой точке, достаточно велико. Об этом также свидетельствуют данные работы [53].

Глава 7

Температурная зависимость динамики горячих носителей в квантовых точках

В этой главе мы детально рассмотрим проблему релаксации носителей в квантовых точках при температурах, заметно выше гелиевых. Данная проблема представляет практический интерес с точки зрения оценки перспектив применения структур с квантовыми точками, поскольку подавляющее большинство существующих полупроводниковых приборов рассчитаны на работу при температурах, близких к комнатным. С другой стороны, рассматриваемая проблема не является тривиальной с точки зрения фундаментальных исследований. Дело в том, что рост температуры может привести (и действительно приводит) к активации нескольких процессов, сильно усложняющих общую картину явления. Термическое возбуждение носителей аналогично неселективному возбуждению, когда носители могут переходить в различные возбужденные состояния. В результате, к неоднородному уширению ансамбля квантовых точек добавляется распределение носителей по различным уровням, что делает интерпретацию температурных зависимостей в общем случае неоднозначной. Тем не менее, как будет показано ниже, использование кинетических данных, позволяет успешно бороться с этой неоднозначностью.

В данной главе приводятся результаты детального экспериментального

86

исследования и теоретического анализа температурных изменений кинетики PL квантовых точек InP. Теоретический анализ выполнен в магистерской работе А. В. Малеева и опубликован в статье [91]. Здесь мы по возможности сохранили дискуссионный стиль этой студенческой работы, что возможно будет поучительным для молодых читателей.

Анализ экспериментальных данных позволил установить, что сокращения времени нарастания импульса PL с ростом температуры является "наведенным" эффектом и вовсе не связано с ускорением релаксации, как это было принято считать до сих пор. Ниже нами рассматривается модель, которая позволяет непротиворечиво объяснить ускорение нарастания PL. Ключевым моментом модели является предположение о термическом выбросе (испарении) фоторожденной дырки из квантовой точки в барьер. Этот процесс приводит к появлению заряженных квантовых точек, PL которых характеризуется скачкообразным фронтом нарастания импульса, что и приводит к видимому сокращению фронта нарастания PL ансамбля заряженных и незаряженных квантовых точек. Модельный расчет этого процесса позволяет количественно описать все экспериментально наблюдаемые температурные изменения кинетики PL, а именно: сокращение времени нарастания PL, сокращение времени затухания PL и появление долгоживущей компоненты PL. Необходимо добавить, что выводы, сделанные на основе исследования квантовых точек InP, скорее всего, применимы и к другим типам полупроводниковых квантовых точек (InAs, InGaAs).

1 Кинетика PL

В соответствие с соображениями, приведенными ниже, для исследования кинетики PL были выбраны "особые" точки, имеющие строго определенный Стоксов сдвиг относительно возбуждающей линии. На рисунке 33(а) показана зависимость интенсивности PL квантовых точек InP от величины Стоксового сдвига, ΔE_{Stokes} . Стрелками отмечены спектральные точки, в которых проводилось измерение кинетики PL. Такой выбор точек обусловлен особенностями фононного спектра (DOS) кристалла InP, показанного на рисунке 33(b).

Фононная плотность объемного кристалла InP при комнатной температуре вычислена в работах [64,92]. В квантовых точках InP, этот фононный спектр немного модифицируется вследствие сжимающего механического напряжения, действующего на квантовые точки со стороны барьеров InGaP из-за различия постоянных кристаллической решетки [16]. Чтобы учесть эту модификацию, а также эффект температурного расширения кристаллической решетки (расчеты [64,92] выполнены для комнатной температуры кристалла), мы слегка растянули фононный спектр, вычисленный в работе [92], умножив шкалу энергий на 1.07, а также сдвинули акустические максимумы на 1 meV.



Рис. 33: (а) Спектр PL квантовых точек InP как функция Стоксового сдвига от возбуждающей линии. *E*_{exc} = 1765 meV. Стрелками показаны спектральные точки, в которых измерялась кинетика PL. На вставке показан спектр образца при нерезонансном возбуждении. (b) Спектр фононной плотности состояний кристалла InP (расчет, работа [92]).

Стоксов сдвиг $\Delta E_{Stokes} = 11 \text{ meV}$ (спектральная точка TA) соответствует испусканию в процессе релаксации одного поперечного акустического фонона (TA-фонона). Как показано в главе 5, такие высокочастотные акустические фононы достаточно эффективно взаимодействуют с электронно-дырочными парами. При рождении электронно-дырочной пары на 35 meV выше излучательного состояния (спектральная точка 2AC), ее релаксация должна происходить с испусканием не менее двух акустических фононов, поскольку энергия 35 meV соответствуют энергетической щели между акустическими и оптическими фононами в кристалле InP. Следует ожидать, что в этом случае релаксация должна быть более медленной. Как будет показано ниже, сравнение результатов кинетических измерений для этих спектральных точек дает существенную информацию о природе температурных изменений кинетики PL квантовых точек InP.



Рис. 34: (а) Кинетика PL при различных температурах для спектральной точки TA (зашумленные кривые). Для наглядности кривые сдвинуты по вертикали. Плавными кривыми (короткие штрихи) показана подгонка кинетики PL формулой (7.2). Следует обратить внимание на практически полное совпадение подгоночной и экспериментальной кривых. Для температуры T = 50 К отдельно показан вклад короткоживущей компоненты PL (кривая с длинными штрихами). Штриховыми прямыми показан уровень нуля интенсивности для каждого импульса PL.

Характерные тенденции в изменении кинетики PL при увеличении температуры продемонстрированы на рисунке 34. Видно, что импульс PL имеет относительно короткий передний и более длинный задний фронты. С ростом температуры длительность переднего фронта сокращается, а в затухании PL появляется медленная компонента, амплитуда которой растет с ростом температуры. Кроме того, при температурах, больших 60 К, становится заметным падение интегральной интенсивности PL.



Рис. 35: Начальный участок кинетики PL при различных температурах для спектральной точки 2AC. Для наглядности кривые сдвинуты по вертикали. Штриховой линией показан временной сдвиг максимума импульса PL с увеличением температуры. Справа показана трехуровневая схема, используемая при феноменологическом описании кинетики PL.

На рисунке 35 в увеличенном масштабе показано изменение формы переднего фронта импульса при увеличении температуры. Именно это изменение анализировалось нами в первую очередь. Для предварительного анализа температурных изменений кинетики мы использовали простую трехуровневую модель. Условная схема соответствующих уровней и переходов между ними показана на рисунке 35 справа. При этом имеется ввиду, что *е-h*-пару можно рассматривать как единую квантово-механическую систему, скорость релаксации которой может быть охарактеризована одним параметром, как это было описано в главе 3, стр. 51. Решение стандартных уравнений баланса (аналогичных уравнениям (3.1) с нулевыми скоростями туннелирования) для заселенностей основного, 0, и возбужденного, 1, состояний *e*-*h*-пары после их рождения коротким лазерным импульсом позволяет получить временную зависимость интенсивности PL в виде:

$$I_{PL}(t) = I_0 \left(e^{-\gamma_{PL}t} - e^{-\gamma_{r}t} \right),$$
(7.1)

где $\gamma_r = \gamma_{rel} + \gamma_{PL}$. Величина γ_{PL} характеризует скорости излучательных переходов с уровней 0 и 1 (косвенные данные, приведенные в работах [24, 63], показывают, что в квантовых точках эти скорости практически одинаковы). Величина γ_{rel} определяет скорость энергетической релаксации электроннодырочной с уровня 1 на уровень 0. Отметим, что обратная величина, $\tau_1 = \gamma_r^{-1}$, характеризует время нарастания, а величина $\tau_0 = \gamma_{PL}^{-1}$ – время затухания импульса PL. Они определяются временем жизни электронно-дырочной пары на уровнях 1 и 0, соответственно.

Анализ показывает, что при низких температурах экспериментальные данные хорошо подгоняются кривыми, построенными с помощью формулы (7.1). Подгоночными параметрами являются γ_{rel} , γ_{PL} и амплитудный множитель I_0 . При температурах, больших 40 К, затухание PL становится не экспоненциальным — в нем появляется медленная компонента. Для определения длительности этой компоненты, мы модифицировали формулу (7.1), введя дополнительную экспоненту:

$$I_{PL}(t) = I_0 \left[(1-p)e^{-\gamma_{PL}t} + pe^{-\gamma_s t} - e^{-\gamma_r t} \right],$$
(7.2)

где множитель p характеризует долю медленной компоненты в кинетике PL, а γ_s описывает скорость ее затухания. Как видно из рисунка 34, формула (7.2) хорошо описывает кинетику PL во всем использованном диапазоне температур.

Следует отметить, что для увеличения надежности разделения быстрой и медленной компонент PL, нами проводилось длительное накопление сигнала PL, позволяющее проследить его временную зависимость в большом динамическом диапазоне. Кроме того, нами проводился тщательный анализ всей совокупности экспериментальных данных в предположении, что скорость затухания медленной компоненты PL не зависит от условий возбуждения (это предположение обосновано в разделе 4 этой главы). Благоприятным для разделения быстрой и медленной компонент PL оказалось также то обстоятельство, что скорости их затухания различаются в несколько раз во всем исследованном температурном интервале.

Поскольку основная задача теоретического анализа заключается в изучении процессов релаксации *e-h*-пар из верхних возбужденных состояний, интерес представляет прежде всего кинетика нарастания PL. Температурные зависимости времени нарастания PL, $\tau_{rise} \equiv \tau_1$ для спектральных точек TA и 2AC приведены на рисунке 36(a,b). Видно, что увеличение температуры до 100 К сопровождается значительным сокращением времени нарастания PL в обеих спектральных точках. В следующем разделе, это сокращение будет количественно проанализировано в рамках феноменологических моделей, согласно которым форма переднего фронта импульса PL определяется процессами релаксации из возбужденных состояний *e-h*-пары.



Рис. 36. (а) Температурная зависимость времени нарастания импульсов PL для спектральной точки TA (символы). Штриховая линия – подгонка по формуле (7.3) в рамках модели работы [10] с параметрами $E_{ph} = 3.2$ meV, $\tau_{rel}(0) = 35$ ps. Пунктирная линия – подгонка по формуле (7.5) в рамках феноменологической модели с параметрами $A = (50 \text{ K})^{-3}$, $\tau_{rel}(0) = 34$ ps. Сплошная линия – расчет в рамках модели испарения дырок (см. раздел 3). Параметры модели приведены в таблице I.

(b) То же для спектральной точки 2AC. Параметры подгонки для модели работы [10]: $E_{ph} = 1.9$ meV, $\tau_{rel}(0) =$ 68 ps; для феноменологической модели: $A = (41 \text{ K})^{-3}$, $\tau_{rel}(0) = 58$ ps.

(с) Температурная зависимость времени затухания быстрой компоненты PL для спектральных точек TA (кружки) и 2AC (треугольники). Сплошная линия – расчет в рамках модели испарения дырок. Начальный участок зависимости аппроксимирован формулой (7.15) с параметрами $E_{h01} = 4$ meV, $\gamma_{PL1} = (400 \text{ ps})^{-1}$.

2 Феноменологические модели термостимулированной релаксации

Повышение температуры, т.е. увеличение энергии тепловых колебаний, должно, в принципе, сопровождаться ускорением релаксации возбужденных состояний *e*-*h*-пары за счет стимулированного испускания фононов. Такой процесс привлекался авторами работы [10] для объяснения приблизительно трехкратного сокращения времени нарастания PL квантовых точек InGaAs при увеличение температуры от 5 до 60 К. При наличии стимулированного испускания фононов зависимость времени релаксации от температуры описывается простым выражением:

$$\tau_{rel}(T) = \frac{\tau_{rel}(0)}{n_b + 1},\tag{7.3}$$

Температурная заселенность фононных состояний n_b с энергией, равной расщеплению между возбужденным и нижайшим подуровнями, т.е. с энергией $E_{ph} = E_{01}$, определяется распределением Бозе-Эйнштейна:

$$n_b = \left(e^{E_{ph}/KT} - 1\right)^{-1},\tag{7.4}$$

где k - постоянная Больцмана.

Авторы работы [10] установили, что формулы (7.3, 7.4) хорошо описывают экспериментальную зависимость при значении $E_{ph} \approx 3$ meV. Эта величина, однако, в двадцать с лишним раз уступает величине Стоксова сдвига, т.е. разности энергий между поглощенным и испущенным оптическими квантами (70 meV и более). Для объяснения такого значительного расхождения они были вынуждены предположить, что релаксация происходит с испусканием нескольких LO-фононов и одного LA-фонона с энергией 3 meV. Селективность по энергии LA-фононов обосновывалась ссылкой на приведенные в работе [21] результаты теоретических расчетов, согласно которым именно такие фононы должны эффективно взаимодействовать с носителями в квантовой точке, поскольку их длина волны соответствует размерам квантовых точек.

В наших экспериментах разность между энергиями поглощаемого и излучаемого квантов всегда была меньшей, чем энергия LO-фононов, т.е. LOфононы не могли участвовать в релаксации носителей. Подгонка полученных нами зависимостей времени нарастания PL от температуры [см. рис. 36(a,b)] с помощью выражений (7.3, 7.4), в которых энергия фононов E_{ph} рассматривалась как подгоночный параметр, не дала положительного результата. Вопервых, как видно из рисунка 36(a,b), расчетные кривые очень плохо согласуются с экспериментальными. Во-вторых, значения подгоночного параметра E_{ph} оказываются значительно меньшими, чем величины Стоксова сдвига и тем самым непонятно, за счет какого процесса электронно-дырочная пара очень быстро теряет оставшуюся энергию.

Пытаясь как-то модифицировать формулы (7.3, 7.4) для достижения согласия с экспериментом, мы обнаружили, что наилучший результат получается при подгонке экспериментальных кривых функцией вида:

$$\tau_{rel}(T) = \frac{\tau_{rel}(0)}{AT^3 + 1}.$$
(7.5)

Как видно из рисунка 36(a,b), экспериментальные кривые хорошо описываются этим выражением.

Зависимость вида (7.5) могла бы возникнуть, если бы релаксация носителей ускорялась не фононами с определенной энергией, а в *равной* мере всеми тепловыми фононами. Имея в виду, что в рассматриваемом температурном интервале основной вклад в тепловую энергию вносят низкочастотные акустические фононы, для описания спектральной плотности фононов $g(\omega)$ можно воспользоваться простой Дебаевской моделью [93], согласно которой:

$$g(\omega) = \frac{3V\omega^2}{2\pi^2 v_0^3},$$
(7.6)

где V — объем элементарной ячейки, ω — циклическая частота акустических колебаний, v_0 — скорость звука в веществе.

Количество тепловых фононов при температуре Т определяется формулой:

$$N = \frac{3V}{2\pi^2 v_0^3} \cdot \left(\frac{kT}{\hbar}\right)^3 \cdot \int_0^{\frac{T_D}{T}} \frac{x^2 dx}{e^x - 1}.$$
 (7.7)

При температурах, малых по сравнению с температурой Дебая T_D , верхний предел в формуле (7.7) можно заменить на бесконечность. В этом случае из выражения (7.7) следует:

$$N = AT^3, \tag{7.8}$$

где коэффициент *A* не зависит от времени и температуры. Подстановка выражения (7.8) в формулу (7.3) и приводит к приведенному выше выражению (7.5). Несмотря на хорошее согласие с экспериментом, использованная математическая модель не проясняет картину исследуемого процесса, поскольку предположение о возможности стимулирования перехода на определенной частоте фононами всего теплового спектра физически не обосновано.

Авторы работы [24] также попытались воспользоваться моделью работы [10] для интерпретации результатов своих экспериментов. При этом, для достижения согласия с экспериментом, им пришлось модифицировать формулу (7.3), заменив единицу в знаменателе малой величиной B = 0.0039. Авторы не приводят в своей статье физического обоснования такой замены. Интересно, однако, отметить, что, если из формулы (7.3) вообще убрать единицу, то она превращается в стандартную формулу (формулу Аррениуса), описывающую вероятность термического переброса частицы через барьер.

3 Модель "испарения" дырок

Хорошее описание наших экспериментов моделью, учитывающей все тепловые фононы, а также успешное описание данных работы [24] формулой, близкой к формуле Аррениуса, позволяет предположить, что наблюдаемое в экспериментах сокращение длительности переднего фронта PL квантовых точек обусловлено не стимулированным испусканием фононов, а их поглощением. Другими словами, увеличение температуры приводит к активации процесса, характеризуемого определенным потенциальным барьером.

Вероятнее всего, таким активируемым процессом является выброс фоторожденной дырки из квантовой точки. Как уже обсуждалось в главе 3, потенциальная яма для дырок в квантовых точках InP достаточно мелкая, $E_h \approx 15 \text{ meV}$, и при повышении температуры тепловые фононы могут выбросить фоторожденную дырку из квантовой точки в барьер. При не очень высоких температурах ($T < E_h/k$), скорость выброса должна описываться простым феноменологическим выражением, обычно используемым для термически активированного процесса:

$$\gamma_h(T) = \gamma_h^0 e^{-E_h/kT},\tag{7.9}$$

где E_h — энергия потенциального барьера, а γ_h^0 — скорость процесса при высокой температуре.

В принципе возможен также более сложный процесс. Как обсуждалось во введении, а также в работах [83,84], энергетический спектр *e*-*h*-пары в квантовой точке перекрывается со спектром состояний, в которых один из носителей (скажем электрон) рождается на основном уровне в квантовой точке, в то время как другой носитель (скажем дырка) рождается на одном из уровней

Динамика носителей ...

непрерывного спектра состояний барьеров или смачивающего слоя. Вследствие такого перекрытия спектров дырка может уйти из квантовой точки даже при низкой температуре, если избыточная энергия фоторожденной (горячей) электронно-дырочной пары превышает потенциальную энергию дырки в квантовой точке. Эффективность этого процесса в принципе может расти с температурой, однако нам не известны теоретические исследования подобного рода. В то же время есть все основания полагать, что этот процесс в данном случае менее эффективен, чем описанный выше. Об этом свидетельствует тот факт, что увеличение избыточной энергии *e-h*-пары приводит к *замедлению*, а не к ускорению процесса ухода дырки из квантовой точки. Это следует из сравнения величин τ_{rel} для спектральных точек TA и 2AC, представленных на рис. 36.

После испарения дырки в квантовой точке остается один электрон, т.е. квантовая точка становится заряженной. За время между лазерными импульсами (порядка 12 ns) этот электрон релаксирует на нижайший электронный уровень, т.е становится "холодным". Отметим, что вероятность его ухода из квантовых точек вследствие "испарения" или туннелирования, как показывают оценки в соответствие с данными, приведенными в главе 3, много меньше чем для дырки. Поэтому, если дырка не вернется в квантовую точку, то электрон может дождаться рождения e-h-пары одним из следующих лазерных импульсов.

Рождение электронно-дырочной пары в заряженной квантовой точке сопровождается образованием трехзарядной частицы – триона. В трионе фоторожденная дырка может рекомбинировать с холодным электроном, что приведет к появлению длинноволновой PL сразу после лазерного импульса. Экспериментально это будет регистрироваться как мгновенное нарастание PL в Стоксовой области спектра. Эффект мгновенного нарастания PL заряженных квантовых точек хорошо известен [16, 58] (см. главу 6). На рисунке 37 схематично показана последовательность процессов, приводящих к зарядке квантовых точек и возбуждению трионной PL.

В общем случае регистрируется PL как нейтральных, так и заряженных квантовых точек. Передний фронт импульса PL при этом должен иметь неэлементарную форму, и время нарастания PL должно определяться соотношением вкладов экситонной и трионной PL. Повышение температуры должно привести к интенсификации процесса образования заряженных квантовых точек и, тем самым, к сокращению времени нарастания PL.

При используемых в эксперименте плотностях возбуждения, число заряженных квантовых точек, создаваемых одним лазерным импульсом, мало. Тем не менее, если время жизни электрона в квантовой точке существен-



Рис. 37: Процессы, приводящие к зарядке квантовых точек.

но превышает период следования лазерных импульсов, то число заряженных квантовых точек будет накапливаться во времени, и может в итоге стать сравнимым с числом нейтральных квантовых точек. Соотношение долей заряженных и незаряженных точек, n_e и $(1 - n_e)$, соответственно, определяется конкуренцией нескольких процессов, таких как испарение дырки и ее рекомбинация с электроном, возбуждение *e*-*h*-пар, уход электрона из квантовой точки и др. Подробный анализ этих процессов, приведенный в конце данной главы (см. раздел 7), дает в итоге выражение:

$$\frac{n_e}{1-n_e} = a \frac{\gamma_h(T)}{\gamma_{PL}},\tag{7.10}$$

где коэффициент *a*, определяемый частотой следования лазерных импульсов, их мощностью и временем жизни электрона в квантовой точке, описывает эффект накопления заряженных точек.

Для описания кинетики PL рассмотрим уравнения баланса для экситонов и трионов. В случае экситонов, в уравнения баланса для населенностей возбужденного и основного состояний, n_1^{ex} и n_0^{ex} , кроме стандартных членов, описывающих поглощение фотона, релаксацию между возбужденными состояниями и излучательную рекомбинацию, присутствуют еще члены, ответственные за испарение дырок:

$$\frac{dn_{1}^{ex}}{dt} = P_{0}(1-n_{e})\delta(t) - (\gamma_{h1}(T) + \gamma_{rel} + \gamma_{PL})n_{1}^{ex},
\frac{dn_{0}^{ex}}{dt} = \gamma_{rel}n_{1}^{ex} - (\gamma_{h0}(T) + \gamma_{PL})n_{0}^{ex}.$$
(7.11)

Здесь P_0 — вероятность поглощения фотона квантовой точкой. Функция $\delta(t)$ учитывает малую длительность возбуждающего импульса по сравнению с характеристическими временами процессов релаксации в квантовой точке. В первом из уравнений (7.11) учтено также, что экситоны могут рождаться только в нейтральных точках, составляющих $(1 - n_e)$ долю от всех точек. Величины $\gamma_{h0}(T)$ и $\gamma_{h1}(T)$ обозначают скорости испарения дырок из основного и возбужденного состояний экситона. Как будет ясно из анализа, проводимого ниже (см. раздел 8), эти скорости заметно различаются в случае рождения достаточно горячей электронно-дырочной пары.

В случае трионов уравнение баланса выглядит аналогичным образом:

$$\frac{dn_{l}^{tr}}{dt} = P_0 n_e \delta(t) - \left(\gamma_{ht}(T) + \gamma_{rel} + 2\gamma_{PL}\right) n_1^{tr},$$

$$\frac{dn_0^{tr}}{dt} = \gamma_{rel} n_1^{tr} - \left(\gamma_{ht}(T) + 2\gamma_{PL}\right) n_0^{tr}.$$
(7.12)

Здесь n_1^{tr} — населенность возбужденного состояния триона, представляющего собой "холодный" электрон и фоторожденную электронно-дырочную пару в возбужденном состоянии; n_0^{tr} — населенность основного состояния триона, в котором оба электрона и дырка занимают нижайшие состояния. В отличие от уравнений (7.11), в уравнениях (7.12) мы пренебрегли различием скоростей испарения дырок из основного и возбужденных состояний. Дело в том, что кулоновское взаимодействие со вторым электроном значительно (на 10-20 meV [85]) увеличивает глубину потенциальной ямы для дырок, и разница в энергиях основного и возбужденного дырочных состояний становится не очень существенной. Множитель 2 перед γ_{PL} в уравнениях (7.12) учитывает возможность рекомбинации дырки с любым из электронов в трионе¹.

¹Спиновые степени свободы электронов и дырок накладывают определенные правила отбора на каналы рекомбинации как для экситонов, так и для трионов. В случае экситонов, электрон и дырка рекомбинируют, если их спины антипараллельны (светлые состояния экситона) и не могут рекомбинировать в случае, когда спины параллельны (темные состояния экситона). В случае холодных трионов, когда электроны находятся на основном уровне, и их спины спарены, дырка рекомбинирует с одним из электронов при любой ориентации ее спина. При низкой температуре образца спины электронов и дырок в экситоне связаны обменным взаимодействием. Экситонная PL в этом случае определяется динамикой экситонного спина, которая зависит от анизотропии квантовой точки и условий возбуждения и может быть достаточно сложной. При увеличении температуры, однако, обменная связь спинов электрона и дырки разрывается, и экситон приблизительно равновероятно находится в светлом или темном состояниях. В отличие от экситона, трион всегда находится в излучающем состоянии, поскольку при температурах образца, обсуждаемых в данной работе, трион остается холодным. Это и приводит к различию скоростей рекомбинации для экситонов и трионов в два раза. Более подробное обсуждение спиновых эффектов выходит за пределы данной работы.

Системы уравнений (7.11) и (7.12) дают временные зависимости населенностей экситонных и трионных состояний, которые необходимы для вычисления кинетики PL. Полная интенсивность PL образца, обусловленная рекомбинацией электронно-дырочных пар как в экситонах, так и в трионах, в общем случае определяется выражением:

$$I_{PL} = \gamma_{PL} n_0^{ex} + 2\gamma_{PL} \left(n_1^{tr} + n_0^{tr} \right).$$
(7.13)

С учетом решений систем уравнений (7.11, 7.12) интенсивность PL запишется в виде:

$$I_{PL}(t) = \gamma_{PL} P_0 \left[(1 - n_e) \left(e^{-(\gamma_{h0} + \gamma_{PL})t} - e^{-(\gamma_{h1} + \gamma_{PL} + \gamma_{rel})t} \right) + n_e \left(2e^{-(\gamma_{ht} + 2\gamma_{PL})t} - e^{-(\gamma_{ht} + 2\gamma_{PL} + \gamma_{rel})t} \right) \right].$$
(7.14)

Выражение (7.14) является итоговым выражением, которое использовалось нами для моделирования кинетики PL, измеренной экспериментально. При этом доля заряженных точек n_e находилась из выражения (7.10), а скорость выброса дырки из состояний $i = 0, 1, t, \gamma_{hi}(T)$, – по формуле (7.9).

Первое слагаемое в каждой квадратной скобке описывает затухание, а второе – нарастание импульса PL. Температурная зависимость скорости нарастания PL обусловлена ростом скорости выброса дырки $\gamma_{hi}(T)$. Эта величина, во-первых, входит в показатель каждой из нарастающих экспонент, а во-вторых, определяет температурную зависимость соотношения заселенностей n_e и $(1 - n_e)$ в соответствии с выражением (7.10). Согласно формуле (7.14), в кинетике PL должен наблюдаться мгновенный скачок интенсивности в начальный момент времени, $I_{PL}(0) = \gamma_{PL}P_0n_e$, амплитуда которого пропорциональна концентрации заряженных квантовых точек n_e и, тем самым, зависит от $\gamma_{hi}(T)$.

Скорость затухания PL с ростом температуры также должна увеличиваться. Ускорение затухания обусловлено прежде всего "испарением" дырок из нейтральных точек, описываемым функцией $\gamma_{h0}(T)$ в первой экспоненте первой квадратной скобки выражения 7.14. При высоких температурах начинается испарение дырок и из заряженных точек, что приводит к дополнительному увеличению скорости затухания.

Температурная зависимость времени затухания быстрой компоненты PL, $\tau_{PL} = \gamma_{PL}^{-1}$, продемонстрирована на рисунке 36(с). Хорошо видно, что увеличение скорости и, соответственно, сокращение времени затухания PL с ростом температуры действительно наблюдается экспериментально. Следует отметить, что времена затухания, измеренные при возбуждении в разных спектральных точках, практически полностью совпадают во всем исследованном температурном диапазоне. Этот результат имеет простое физическое объяснение, если учесть, что регистрируемая PL обусловлена рекомбинацией холодных электронов и дырок, которые "забыли" историю своего рождения.

Выражения (7.9), (7.10) и (7.14) содержат несколько неизвестных параметров, характеризующих скорости релаксации (γ_{rel}) и рекомбинации (γ_{PL}) носителей, скорость испарения дырок из различных состояний (E_{hi} и γ_{hi}^{0}), а также коэффициент накопления заряженных квантовых точек *a*. Однако анализ двух различных температурно-зависимых эффектов (нарастания и затухания PL), а также поведения долгоживущей компоненты PL (см. следующий раздел), позволяет, используя ряд дополнительных предположений, определить значения каждого из них.

Для ряда параметров можно сделать априорные оценки их величины. Прежде всего, мы считаем, что в исследуемом температурном интервале 0 – 100 К (kT < 10 meV) скорости релаксации носителей не зависят от температуры, и поэтому значения γ_{rel} могут быть определены по результатам низкотемпературных измерений. Мы определили значения $\gamma_{rel} = (38 \text{ ps})^{-1}$ и $\gamma_{rel} = (82 \text{ ps})^{-1}$ для спектральных точек TA и 2AC, соответственно.

Время затухания PL, как показали эксперименты [см. рисунок 36 (с)], несколько увеличивается (примерно на 20% от 145 до 180 ps) с ростом температуры в интервале T = 5...30 К. Причиной этого может выступать один или даже несколько процессов. Одним из них, является термическое заселение возбужденных дырочных состояний. Рекомбинация возбужденной дырки в состоянии |i> с электроном, находящимся в основном состоянии |0>, должна быть менее эффективной в силу меньшего интеграла перекрытия <i|0>. Другим процессом, замедляющим рекомбинацию, может быть термический переворот спина дырки, переводящий *e-h*-пару в неизлучающее (темное) состояние. Ввиду явно малой эффективности подобных процессов мы не стали их детально анализировать и использовали для описания температурной зависимости скорости рекомбинации упрощенную формулу вида:

$$\gamma_{PL}(T) = \gamma_{PL0} \left(1 - e^{-E_{h01}/kT} \right) + \gamma_{PL1} e^{-E_{h01}/kT}, \tag{7.15}$$

Формула описывает изменение средней вероятности рекомбинации при заселении одного возбужденного состояния с энергией E_{h01} относительно основного уровня. Здесь γ_{PL0} — экспериментально определяемая скорость рекомбинации при низкой температуре, а энергия E_{h01} и скорость излучательной рекомбинации для возбужденного дырочного уровня, γ_{PL1} , являются параметрами подгонки.

Процесс "испарения" дырок описывается двумя параметрами: предэкспоненциальным множителем γ_h^0 , определяемым энергией электрон-фононного взаимодействия, и высотой потенциального барьера E_h [см. формулу (7.9)]. Считая, что величина электрон-фононного взаимодействия приблизительно одинакова для основного и возбужденного состояний дырок, мы использовали множитель γ_h^0 как единый подгоночный параметр.

Высоты барьеров для разных дырочных состояний, естественно, различаются, однако между ними есть достаточно жесткая связь. Для основного состояния дырки высота барьера просто равна глубине потенциальной ямы. Для возбужденного состояния она уменьшается на энергию "горячей" дырки. Мы предполагаем, что избыточная энергия горячей электронно-дырочной пары, определяемая разностью ее энергий в возбужденном и основном состояниях и равная ΔE_{Stokes} , делится между электроном и дыркой обратно пропорционально их эффективным массам:

$$E_{h1} - E_{h0} = \Delta E_{Stokes} m_e^* / (m_e^* + m_h^*), \qquad (7.16)$$

где $m_e^* = 0.08m_e$, $m_h^* = 0.65m_e - эффективные массы электрона и дырки, соответственно, в единицах электронной массы <math>m_e$ [75]. Для заряженных точек высота барьера увеличивается на энергию кулоновского взаимодействия со вторым электроном (приблизительно 10 meV). Таким образом, при задании высот потенциальных барьеров для разных дырочных состояний остается только один свободный параметр – глубина потенциальной ямы E_{h0} .

Для параметра *a*, описывающего эффект накопления заряженных точек, не удается привести априорной оценки величины, поскольку этот эффект определяется, как отмечалось выше, конкуренцией нескольких процессов и, в частности, зависит от плотности мощности возбуждения. Следует ожидать поэтому, что значение *a* будет различным для различных серий измерений, поскольку плотность мощности возбуждения является одним из наиболее трудно контролируемых экспериментальных параметров.

В рамках рассматриваемой модели мы провели расчет температурных изменений времен нарастания и затухания на начальном участке импульса PL (т.е. без учета медленной компоненты), используя одинаковые величины E_{h0} и γ_h^0 для всех экспериментов. С этой целью для каждой спектральной точки рассчитывалась по формуле (7.14) форма импульса PL для температур, менявшихся в интервале от 5 до 100 К с шагом 5 К. Результаты вычислений свертывались с аппаратной функцией установки (гауссова кривая, полушириной 6 рs). После этого модельный импульс PL подгонялся выражением (7.1) и таким образом определялись значения τ_r и τ_{PI} , характеризующие средние времена нарастания и затухания импульса PL. Параметры E_{h0} , γ_n^0 и *а* варьировались для достижения наилучшего согласия с экспериментом. При этом параметр *а* выбирался отдельно для каждой спектральной точки.

В итоге нам удалось, используя один набор параметров, удовлетворительно описать форму импульса PL во всем исследованном температурном интервале и получить температурные зависимости τ_{rise} и τ_{PL} . Конечные результаты расчетов показаны сплошными кривыми на рисунке 36. Видно, что предложенная модель позволяет количественно описать наблюдаемые температурные изменения кинетики PL в рамках вполне разумных физических предположений. Значения параметров модели, полученные в результате подгонки, собраны в таблице I на стр. 108. Отметим, что значение параметра γ_h^0 , характеризующего скорость испарения дырки, в 5 – 10 раз больше скорости релаксации горячих носителей τ_{rel}^{-1} . Такое отношение скоростей выглядит вполне обоснованным, поскольку плотность дырочных состояний в барьере существенно выше плотности состояний, локализованных в квантовой точке.

В пользу справедливости предложенной модели свидетельствуют и результаты детального анализа формы начального участка импульса PL, измеренного с высоким временным разрешением при температуре T = 50 K (см. вставку на рисунке 38). На рисунке видно, что в начальный момент времени действительно наблюдается предсказываемый теорией скачок интенсивности PL. Чтобы сделать его более наглядным, на рисунке пунктиром показана кривая, аппроксимирующая медленную компоненту нарастания PL. При измерениях с конечным временным разрешением, скачок несколько сглаживается, что хорошо описывается сверткой теоретически построенного импульса с аппаратной функцией.

На рисунке 38(а) показано также разложение экспериментально измеренного импульса PL на компоненты, обусловленные экситонной и трионной PL, а также долгоживущей компонентой PL, обсуждаемой ниже (см. следующий раздел). Хорошо видно, что все три компоненты имеют сопоставимые пиковые интенсивности при T = 50 K и различные времена нарастания и затухания, что приводит к неэлементарной форме импульса PL. На рисунке 38(b) показаны рассчитанные теоретически температурные зависимости интегральной интенсивности экситонной и трионной PL. Как видно из графиков, при температурах выше 60 K трионная PL становиться интенсивнее экситонной PL.



Рис. 38: (а) Кинетика PL при T = 50 К для точки 2AC (зашумленная кривая). Сплошная линия – расчет в рамках модели "испарения" дырок как сумма трех компонент PL, показанных ниже. На вставке показан начальный участок импульса PL (зашумленная кривая) и расчет в рамках модели "испарения" дырок. Длинными штрихами показано мгновенное нарастание импульса, предсказываемое моделью. Сплошная кривая получена сверткой с функцией Гаусса с полушириной 6 рs, моделирующей аппаратную функцию экспериментальной установки. Мелким штрихом показан временной ход импульса в отсутствии трионного вклада.(b) Вычисленная зависимость интегральной интенсивности экситонной и трионной PL.

4 Долгоживущая компонента PL

Процесс испарения дырок влияет не только на кинетику нарастания, но и на кинетику затухания PL. Выброшенная в барьер дырка может через некоторое время вернуться в квантовую точку и рекомбинировать с оставшимся в квантовой точке электроном. Вероятность захвата дырки квантовой точкой существенно меньше вероятности ее теплового выброса, поскольку плотность

дырочных состояний в барьере сильно превышает плотность состояний в квантовой точке. В результате время жизни дырки в барьере может оказаться достаточно большим и ее захват квантовой точкой приведет к появлению медленной компоненты к кинетике PL.

Для проверки справедливости такого объяснения мы проанализировали температурную зависимости интегральной интенсивности медленной компоненты, I_{slow} , и сопоставили ее с результатами модельного расчета. Поскольку существенная доля медленной компоненты оказалась за пределами временного интервала регистрации, то для определения величины I_{slow} из экспериментальных данных нам пришлось экстраполировать форму импульса PL на большие времена. Имея в виду, что за медленную компоненту ответственны дырки, выброшенные из квантовых точек, мы предположили, что время нарастания медленной компоненты определяется временем жизни первичных дырок в квантовых точках, γ_{PL}^{-1} , и представили форму импульса PL в виде:

$$I_{PL}(t) = I_{fast}(t) + I_{slow}(t) = I_0 \left[\left(e^{-\gamma_{PL}t} - e^{-\gamma_{Pt}} \right) + p \left(e^{-\gamma_{s}t} - e^{-\gamma_{PL}t} \right) \right],$$
(7.17)

где коэффициент p, меньший единицы, задает долю медленной компоненты PL. Отметим, что формула (7.17) сводится к формуле (7.2) перестановкой членов. При сравнении с экспериментом, величины I_0 , p, γ_{PL} , γ_r и γ_s использовались как параметры подгонки. Пример такой подгонки продемонстрирован на рисунке 34. Определенные для каждой температуры значения подгоночных параметров использовались для вычисления отношения интегральной интенсивности медленной компоненты PL, I_{slow} , к полной интенсивности PL, I_{tanal} , по формуле:

$$\frac{I_{slow}}{I_{total}} = \frac{p(\tau_s - \tau_{PL})}{(\tau_{PL} - \tau_r) + p(\tau_s - \tau_{PL})}.$$
(7.18)

Выражение (7.18) получено путем интегрирования формулы (7.17) по времени и замены скоростей процессов, γ_i , на обратные им величины, $\tau_i = \gamma_i^{-1}$.

Результаты такой обработки экспериментальных данных для двух спектральных точек показаны символами на рисунке 39(b,c). Данные приведены только для T > 20 K, поскольку при более низких температурах интенсивность медленной компоненты мала, и не удается, пользуясь описанной процедурой, определить ее с приемлемой точностью.

Мы сравнили эти данные с результатами модельного расчета кинетики PL, основанного на решении уравнений баланса для заселенности дырочных состояний в квантовых точках и барьерном слое. Расчет, детали которого



Рис. 39. (а) Скорость затухания долгоживущей компоненты PL (кружки) и ее подгонка функцией (7.20); $\gamma_e^0 = 3 \text{ ps}^{-1}$. (b) Температурная зависимость I_{slow}, нор-мированной на I_{total}, для спек-тральной точки ТА (символы). Пунктирная кривая - расчет по формуле (7.19) без учета испарения электронов (b = 1); сплошная кривая - расчет по формулам (7.19) и (7.21); $k_b = 180$. (с) То же для спектральной точки 2АС; $k_b = 210$. (d) Температурная зависимость I_{total} для спектральной точки 2AC (кружки) и ее аппроксимация выражением (7.20) (сплошная линия); $\gamma_e^0 = 9 \text{ ps}^{-1}$. На вставке схематично показаны обсуждаемые процессы. Использованные в расчетах значения параметров приведены в таблице I.

приведены в разделе 7, дает для отношения интенсивности медленной компоненты к полной интенсивности PL выражение:

$$\frac{I_{slow}}{I_{total}} = b \frac{\gamma_{h1}}{\gamma_{PL} + \gamma_{h1}}.$$
(7.19)

Коэффициент *b* в этом выражении учитывает потерю дырок в барьере, описываемую в следующем разделе. Температурная зависимость скорости испарения дырок из возбужденного состояния квантовой точки, γ_{h1} , описывается выражением, аналогичном выражению (7.9).

Из рисунка 39(b,c) (пунктирные кривые) видно, что выражение (7.19) правильно описывает температурную зависимость медленной компоненты PL

вплоть до температуры 60 К. Следует отметить, что медленная компонента составляет значительную долю PL при повышенных температурах – до 80 % при T = 70 К.

На рисунке 39(d) показана температурная зависимость интегральной интенсивности PL, *I*_{total}. Видно, что вплоть до температур порядка 60 К полная интенсивность PL практически не меняется, т.е. все температурные изменения в этом интервале сводятся к перераспределению интенсивностей быстрой и медленной компонент. В рамках рассматриваемой модели это означает, что почти все выброшенные в барьер дырки постепенно возвращаются в квантовые точки и рекомбинируют с оставшимся там электроном. Дальнейшее повышение температуры приводит к падению полной интенсивности PL. Природа этого эффекта будет обсуждена в следующем разделе.

5 Роль "испарения" электронов

При температурах T > 60 К, относительно высоких для изучаемых квантовых точек, происходит заметное падение интегральной интенсивности, $I_{total}(T)$, как это видно на рисунке 39(d). Падение интегральной интенсивности указывает на возникновение дополнительного процесса, приводящего к безызлучательным потерям энергии возбуждения. Поскольку одновременно с этим наблюдается заметное сокращение длительности медленной компоненты, связанной с выбросом дырок в барьерный слой [см. рисунок 39(a)], естественно предположить, что безызлучательные потери происходят именно в барьере. Наиболее вероятным механизмом потерь является термический выброс (испарение) фоторожденного электрона из квантовой точки и его последующая рекомбинация с дыркой в барьере. Рекомбинация может быть либо безызлучательной, либо с испусканием света в спектральном диапазоне за пределами регистрации, как схематично показано на вставке рисунка 39(a).

Феноменологически такой процесс может быть представлен как появление канала безызлучательной релаксации *e*-*h*-пар. Скорость релаксации в этом канале пропорциональна вероятности рекомбинации дырок с электроном в барьере. Последняя определяется концентрацией электронов в барьере, которая растет с температурой по закону $n_e = n_e^0 \exp(-E_e/kT)$. Здесь E_e – энергия активации процесса выброса электрона в барьер. Появление дополнительного канала релаксации приведет к увеличению скорости затухания медленной компоненты PL:

$$\gamma_s(T) = \gamma_s^0 + \gamma_e^0 e^{-E_e/kT}, \qquad (7.20)$$

где γ_s^0 – скорость затухания, обусловленная излучательной рекомбинацией в квантовых точках (т.е. величина, задающая длительность медленной компоненты при относительно низких температурах), а γ_e^0 –феноменологическая константа, определяемая отношением плотностей электронных состояний в барьере и квантовой точке, а также вероятностью рекомбинации дырки с электроном в барьере.

На рисунке 39(а) сплошной линией представлена расчетная кривая, построенная по формуле (7.20) при значениях параметров γ_s^0 и E_e , приведенных в таблице I, и $\gamma_e^0 = 3 \text{ ps}^{-1}$. Видно, что эта кривая хорошо согласуется с результатами обработки экспериментальных данных. Полученное значение энергии активации хорошо согласуется со значением, приведенным в главе 3. Эта величина существенно меньше глубины потенциальной ямы для электронов в квантовых точках InP, составляющей для исследуемого образца 250 – 300 meV [16]. Относительно малая энергия активации процесса выброса связана, по-видимому, с тем, что выбрасываемый электрон попадает не в зону проводимости барьерного слоя, а на локальные дефекты, расположенные в окрестности квантовых точек InP [16,53]¹.

Следствием безызлучательной релаксации является уменьшение интегральной интенсивности PL, которая определяется отношением скорости излучательной рекомбинации *e*-*h*-пар к суммарной скорости уменьшения их населенности. При температурах, больших 60 К, когда основной вклад в интенсивность дает медленная компонента PL, скорость излучательной рекомбинации фактически равна γ_s , и температурная зависимость полной интенсивности имеет вид:

$$I_{total}(T) = I_{total}(0) \frac{\gamma_s^0}{\gamma_s^0 + \gamma_e^0 e^{-E_e/kT}}.$$
(7.21)

При аппроксимации экспериментальных данных с помощью этой формулы, мы использовали те же значения γ_s^0 и E_e , что и для описания скорости затухания медленной компоненты выражением (7.20), а γ_e^0 использовался как подгоночный параметр. Как видно из рисунка 39(d), температурная зависимость I_{total} хорошо описывается формулой (7.21).

Рекомбинация дырок с электронами в барьере уменьшает интенсивность медленной компоненты PL, но не влияет на интенсивность быстрой компоненты, обусловленной рекомбинацией дырок до выброса их в барьер. В результате, доля медленной компоненты при высоких температурах должна

¹Другой возможной причиной может служить туннелирование электрона из возбужденных состояний в соседние квантовые точки, излучение которых находится в спектральном диапазоне за пределами регистрации.

несколько уменьшаться, что действительно наблюдается на опыте [см. рисунок 39(b,c)]. Этот эффект может быть описан путем учета температурной зависимости коэффициента *b* в формуле (7.19), определяющего долю дырок, возвращающихся в квантовые точки из барьера с помощью феноменологического выражения:

$$b = \frac{b_0}{1 + k_b e^{-E_e/kT}}$$

Как видно из рисунка 39(b,c) (сплошные кривые), учет этой температурной зависимости, причем с той же энергией активации $E_e = 55$ meV, что и в предыдущих подгонках, позволяет правильно описать поведение медленной компоненты PL и при температурах больших 60 K.

Тепловой выброс электронов в барьер нам пришлось учесть и при моделировании нарастания и затухания быстрой компоненты PL при высоких температурах (см. рисунок 38), поскольку такой процесс уменьшает концентрацию заряженных квантовых точек. При быстрой рекомбинации электронов в барьере этот процесс приведет к увеличению полной скорости ухода электронов из квантовых точек:

$$\gamma'_{e} = \gamma_{e}(0) + \gamma_{e}^{0} e^{-E_{e}/kT}, \qquad (7.22)$$

где первое слагаемое описывает скорость ухода электронов при низкой температуре. Выражение (7.22) позволяет написать выражение для температурной зависимости коэффициента *а* в формуле (7.10):

$$a = \frac{a_0}{1 + k_a e^{-E_e/kT}}.$$
(7.23)

Использование выражения (7.23) позволило добиться хорошего согласия теоретически рассчитанной формы быстрой компоненты PL при разных температурах с результатами эксперимента (см. рисунок 38). Значения параметра a_0 для различных спектральных точек приведены в таблице I; параметр $k_a = 300$.

6 Обсуждение результатов и выводы

Выполненный анализ кинетики PL показал, что при относительно небольшом повышении температуры в структуре с квантовыми точками InP активируется несколько процессов, существенно усложняющих динамику фоторожденных носителей. Обсуждаемые выше процессы схематично показаны на рисунках 37 и 39. Основные параметры процессов приведены в таблице I.

Таблица 7.1: Параметры основных обсуждаемых процессов. Для удобств
сопоставления процессов испарения электронов и дырок с остальными про
цессами, приведены их характерные времена, $ au_i = (\gamma_i)^{-1}$, а не скорости, ис
пользованные в тексте.

Процесс	Параметр	Значение
Электронно-дырочная	$ au_{PL}$	145 ps
рекомбинация		
Релаксация горячих	$ au_{rel}$	38 ps (TA)
носителей		82 ps (2AC)
Испарение дырок	$ au_h^0$	5.8 – 7.2 ps
	E_{h0}	15 meV
	E_{h1}	13.5 meV (TA)
		11 meV (2AC)
	E_{ht}	25 meV
Испарение	$ au_e^0$	0.11 – 0.33 ps
электронов	E_e	55 meV
Диффузия дырок	$ au_s^0$	500 ps
в барьере		
Накопление заряженных	a_0	0.4 (TA)
квантовых точек	-	0.35 (2AC

Основным процессом, проявляющимся уже при температурах T > 30 К, является термический выброс (испарение) дырки из квантовой точки в барьерные слои. Это обусловлено малой высотой потенциального барьера для дырок в исследуемой структуре, имеющего величину порядка 15 meV. Выброс дырок в барьер приводит к нескольким эффектам, экспериментально наблюдаемым в кинетике PL.

Если выброшенная в барьер дырка не вернется в квантовую точку, то такая квантовая точка становится отрицательно заряженной. Кинетика PL заряженных квантовых точек, возбуждаемой последующими лазерными импульсами, характеризуется резким, ступенько-образным передним фронтом за счет рекомбинации фоторожденной дырки с холодным электроном. Развитая в данной работе модель показывает, что резкое сокращение времени нарастания PL, наблюдаемое при относительно небольшом повышении температуры квантовых точек, может быть объяснено прежде всего увеличением вклада в PL свечения заряженных квантовых точек, доля которых растет с

температурой. Некоторый вклад в сокращение переднего фронта PL может вносить конкуренция процессов релаксации горячих носителей на излучательный уровень и выброса горячей дырки в барьер, но этот эффект становится заметным только при температурах порядка 100 К. Важно подчеркнуть, что в любом случае сокращение переднего фронта PL не связано с ускорением релаксации носителей, как это обычно предполагается [10,24]. Более того, все наблюдаемые в данной работе закономерности удается количественно описать в предположении, что скорость релаксации горячих носителей остается постоянной в рассматриваемом температурном интервале. Это выглядит вполне естественным, если учесть, что характерная энергия фононов при рассматриваемых температурах примерно в несколько раз меньше энергии, на которую должна релаксировать e-h пара.

Следует также подчеркнуть, что сокращение времени нарастания PL с ростом температуры по описанному выше механизму возможно даже в случае, когда $E_h >> kT$, т.е. когда каждый элементарный акт выброса дырки в барьер малоэффективен. Для этого достаточно, чтобы время жизни оставшегося в квантовой точке электрона существенно превышало период следования возбуждающих импульсов. В этом случае доля заряженных точек будет увеличиваться от импульса к импульсу; параметр накопления *a* в формуле (7.10) может оказаться достаточно большим, чтобы скомпенсировать малую скорость испарения дырок γ_h .

Другим следствием выброса дырок в барьер является сокращение времени затухания быстрой компоненты PL, которое также количественно описывается в рамках развитой модели. Третьим эффектом, возникающим при повышенных температурах, является долгоживущая компонента PL, обусловленная возвращением дырок в родительские квантовых точки. Этот эффект также хорошо описывается в рамках единой модели. Наконец, качественным подтверждением справедливости модели служит наличие на переднем фронте импульса PL двух отчетливо разделяемых участков: быстрого (свечение заряженных точек) и относительно медленного (свечение нейтральных точек). Все эти эффекты, на наш взгляд, убедительно свидетельствуют об испарении дырок как основной причине сильной модификации кинетики PL с ростом температуры.

Проведенный анализ позволил также выявить несколько эффектов, обусловленных испарением электронов (раздел 5). В исследованных структурах эти эффекты наблюдаются при более высоких температурах (T > 60 K), чем эффекты, связанные с испарением дырок, что обусловлено существенно более высоким потенциальным барьером для этого процесса ($E_e = 55$ meV).

Нам представляется, что рассмотренные в данной работе процессы не

являются специфичными для исследованной структуры, а имеют достаточно общий характер. В частности, не исключено, что ускорение нарастания PL при подъеме температуры, наблюдавшееся в работах [10, 24, 94], также обусловлено изменением соотношения между заряженными и нейтральными квантовыми точками. Следует однако иметь в виду, что в случае InAs квантовых точек, исследованных в этих работах, глубины потенциальных ям для электронов и дырок отличаются в меньшей степени, поэтому выяснение вопроса, какой процесс активируется с ростом температуры первым испарение электронов или дырок — требует отдельного исследования.

Результаты выполненного исследования показывают, что для надежной идентификации процессов, формирующих нарастание PL квантовых точек, необходимо тщательное изучение температурной зависимости не только переднего, но и заднего фронтов импульса PL. В большинстве публикаций, посвященных релаксации носителей, однако не приводится подробного анализа температурной зависимости кинетики PL, в частности разделения PL на быструю и медленную компоненты, хотя в некоторых работах [24, 35, 39]) отмечается увеличение времени затухания PL с ростом температуры, а в работе [94] — наоборот уменьшение этого времени. Возможно, что одной из причин расхождения конечных результатов этих работ (помимо различий в исследуемых образцах) является недостаточно тщательное исследование кинетики затухания PL.

Следует отметить, что из-за различий в кинетике нейтральных и заряженных квантовых точек форма импульса PL может существенно зависеть от количества заряженных квантовых точек в образце. Число процессов, приводящих к изменению заряда квантовых точек достаточно велико. В частности, при возбуждении PL с большим Стоксовым сдвигом [94], нагрев образца может привести к изменению подвижности фоторожденных носителей в барьерном слое или изменить величину встроенного электрического поля. Наличие неконтролируемого фонового легирования барьерных слоев может приводить к частичной зарядке квантовых точек даже при низкой температуре [86]. В результате, количество заряженных точек может зависеть как от уровня легирования, так и от условий возбуждения и температуры образца. Это разнообразие упомянутых эффектов возможно является той причиной, по которой имеющиеся в литературе данные о характерных временах нарастания PL в однотипных, по существу, структурах колеблются в пределах от десятков пикосекунд [37, 94–96] до единиц наносекунд [24].

7 Математическое обоснование

Рассмотрим подробнее динамику фоторожденных дырок при испарении их из нейтральных квантовых точек. Будем рассматривать одно состояние дырок в квантовой точке, населенность которого обозначим n_x, и одно состояние дырок в барьерном слое с населенностью n_h . Динамика населенности этих состояний определяется уравнениями:

$$\frac{dn_x}{dt} = (1 - n_e)P_0\delta(t) - (\gamma_h + \gamma_{\rm PL})n_x + \gamma_b n_b$$
$$\frac{dn_b}{dt} = \gamma_h n_x - (\gamma_a + \gamma_b + \gamma_e)n_b.$$
(7.24)

В первом их этих уравнений рассматривается процесс рождения дырки в незаряженной квантовой точке (первое слагаемое), уход дырки из квантовой точки вследствие ее рекомбинации с электроном или испарения (второе слагаемое) и приход дырки из барьера. Во втором уравнении рассматривается приход дырки в барьер из квантовой точки (первое слагаемое) и ее уход из барьера (второе слагаемое) за счет ухода в другую точку со скоростью γ_a , или возвращения обратно в "родительскую" точку со скоростью γ_b , или рекомбинации дырки с электроном, "испарившимся" из квантовой точки, со скоростью үе. В дальнейшем мы будем предполагать, что вероятность ухода дырки в другую квантовую точку (этот процесс приводит к появлению заряженных точек) существенно меньше, чем вероятность возврата дырки в "родительскую" точку, т.е. $\gamma_a << \gamma_b$.

Решение уравнений (7.24) для населенности дырочного состояния в квантовой точке имеет вид:

$$n_x = (1 - n_e)P_0 e^{-x_1 t} + (1 - n_e)P_0 \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\gamma_1 - \gamma_s}{\sqrt{D}}\right) \left(e^{-x_2 t} - e^{-x_1 t}\right)$$
(7.25a)

где

$$x_1 = \frac{1}{2} \left[(\gamma_1 + \gamma_s) + \sqrt{D} \right],$$

$$x_2 = \frac{1}{2} \left[(\gamma_1 + \gamma_s) - \sqrt{D} \right].$$
(7.25b)

И введены обозначения: $D = (\gamma_1 - \gamma_s)^2 + 4\gamma_h\gamma_b$, $\gamma_1 = \gamma_{PL} + \gamma_h$, $\gamma_s = \gamma_a + \gamma_b + \gamma_e$. Интенсивность PL незаряженных квантовых точек определяется выражением $I_{PL} = \gamma_{PL} n_x$. Первое слагаемое в выражении (7.25а) определяет затухание быстрой компоненты PL, а второе слагаемое определяет как нарастание, так и затухание медленной компоненты PL. Отметим, что скорости затухания этих компонент, x_1 и x_2 , отличаются от использованных выше скоростей затухания (см. разделы 6 и 7). Это различие обусловлено взаимосвязью уравнений для населенностей n_x и n_b , определяемой скоростями γ_h и γ_b [см. уравнения (7.24)]. Однако при не очень высоких температурах, при которых γ_b существенно меньше γ_h и γ_{PL} , это различие невелико и исчезает в линейном по γ_b приближении для величины \sqrt{D} , которое мы и будем использовать в дальнейшем. В этом приближении получаются выражения, использованные выше:

$$x_1 \approx \gamma_{\rm PL} + \gamma_h, \qquad x_2 \approx \gamma_b^{eff} + \gamma_e,$$
 (7.26a)

где

$$\gamma_b^{eff} = \gamma_b \frac{\gamma_{\rm PL}}{\gamma_{\rm PL} + \gamma_h}.$$
 (7.26b)

Отметим, что величина γ_b^{eff} может сложным образом зависеть от температуры. При низкой температуре она может уменьшаться за счет локализации дырок в мелких потенциальных ямах в барьере, что описывается температурной зависимостью параметра γ_b . При относительно высокой температуре она может уменьшаться за счет эффективного выброса дырок из квантовых точек обратно в барьер, что описывается дробью в выражении (7.26b). Как указывалось в разделе 5, экспериментальные данные удовлетворительно описываются в предположении, что $\gamma_b^{eff} = \gamma_s^0 = \text{const}$, что возможно обусловлено взаимной компенсацией упомянутых выше процессов в рассматриваемом температурном интервале.

Интегральная интенсивность медленной компоненты PL для незаряженных квантовых точек вычисляется путем интегрирования второго слагаемого в выражении (7.25а) по времени и, в линейном по γ_h приближении, равна:

$$I_{slow}^{x} = (1 - n_e) P_0 \left(\frac{\gamma_h}{\gamma_{\rm PL} + \gamma_h}\right) \left(\frac{\gamma_b^{eff}}{\gamma_b^{eff} + \gamma_e}\right)$$
(7.27)

Для заряженных квантовых точек в принципе можно написать динамические уравнения, аналогичные уравнениям (7.24), с заменой $(1 - n_e) \rightarrow n_e$, $\gamma_h \rightarrow \gamma_{ht}$, и $\gamma_{PL} \rightarrow 2\gamma_{PL}$, и получить аналогичные решения. Скорость испарения дырок из заряженных точек при температурах T < 60 К, однако, существенно меньше, чем из нейтральных ($\gamma_{ht} << \gamma_h$), из-за дополнительной кулоновской связи дырки со вторым электроном. Поэтому интегральная интенсивность медленной компоненты для заряженных точек, I_{slow}^{tr} , должна быть, согласно

формуле, аналогичной (7.27), мала. При повышенных температурах, испарение одного из электронов приводит к скачкообразному уменьшению потенциальной ямы для дырок, и их испарение становится столь же эффективным, как и для нейтральных квантовых точек. Поэтому при этих температурах медленная компонента PL заряженных квантовых точек должна описываться выражением, аналогичным (7.27), с заменой $(1 - n_e) \rightarrow n_e$. Соответственно, выражение для полной интенсивности медленной компоненты PL, $I_{slow} = I_{slow}^{x} + I_{slow}^{tr}$, получается из (7.27) выбрасыванием множителя $(1 - n_e)$, что сводит эту формулу к использованной ранее формуле 7.19. Отметим, что испарение электрона из нейтральной точки также приводит к уменьшению потенциальной ямы для дырки, в результате чего дырка еще эффективнее испаряется из точки. Однако это не приводит к увеличению интенсивности медленной компоненты, поскольку возврат дырки в квантовую точку не сопровождается PL из-за отсутствия электрона.

Как уже говорилось в разделе 5, термический выброс электрона в барьер и его рекомбинация с дыркой приводят к тушению PL. Корректное описание этого процесса усложнено скачкообразным изменением скорости испарения дырки, отмеченным выше. Поэтому мы ограничимся феноменологическим описанием процесса тушения PL, приведенным выше.

Решение уравнений (7.24) дает также динамику населенности дырочных состояний в барьере:

$$n_b = (1 - n_e) P_0 \frac{\gamma_h}{\sqrt{D}} \left(e^{-x_2 t} - e^{-x_1 t} \right)$$
(7.28)

Уход дырки из барьерного слоя в какую-то другую квантовую точку или на дефект, описываемый скоростью γ_a , приводит к долговременной зарядке квантовой точки, из которой была выброшена дырка. Увеличение вероятности зарядки квантовой точки за период следования лазерных импульсов, Δn_{ep} , вычисляется интегрированием по времени выражения (7.28) и умножением результата на γ_a :

$$\Delta n_{ep} = \gamma_a \int n_b dt \approx (1 - n_e) \left[\left(P_0 \frac{\gamma_a}{\gamma_b} \right) \frac{\gamma_b^{eff}}{\gamma_b^{eff} + \gamma_e} \right] \frac{\gamma_h}{\gamma_{\rm PL}}$$
(7.29)

При выводе выражения (7.29) использованы те же приближения, что и при выводе выражений (7.26а).

За время между импульсами происходит разрядка квантовых точек со скоростью γ_e . Если предположить, что изменение доли заряженных точек после каждого импульса мало по сравнению со средним значением, т.е.

 $\Delta n_e << n_e$, то процесс разрядки квантовых точек происходит экспоненциально, и за время между импульсами n_e уменьшается на величину $\Delta n_{em} \approx n_e \gamma_e / f$, где f – частота следования лазерных импульсов. В квазистационарном режиме возбуждения образца устанавливается равновесное значение доли заряженных точек, которое находится из условия $\Delta n_{ep} = \Delta n_{em}$. Это условие вместе с выражением (7.29) дает выражения (7.10) и (7.23).

Глава 8

Заключение

Нами подробно рассмотрены различные механизмы релаксации горячих носителей, методы экспериментального исследования релаксации, и экспериментальные условия, при которых реализуются те или иные механизмы релаксации носителей в квантовых точках. В своем обсуждении мы ограничились последней, наиболее медленной ступенью релаксации *e*-*h*-пары с некоторого возбужденного уровня на ее нижайшее энергетическое состояние. Для этого подробно проанализированы экспериментальные результаты, полученные для квантовых точек InP и InGaAs при возбуждении *e*-*h*-пары непосредственно внутри квантовой точки с помощью квазирезонансного оптического возбуждения. Изложение всех идей мы постарались проиллюстрировать наглядными экспериментальными примерами. Кратко подытожим все сказанное выше.

Два экспериментальных метода могут быть эффективно использованы для исследования релаксации носителей в квантовых точках. Первый из них основан на активизации процесса безызлучательных потерь возбуждения и управлении этим процессом с помощью внешнего электрического поля. В этом случае, туннелирование носителей из возбужденных состояний конкурирует с их релаксацией на нижайшие состояния, что обеспечивает своеобразные временные ворота для PL. В результате этого, спектральная зависимость скорости релаксации может быть измерена в стационарных условиях. Второй метод заключается в прямом измерении кинетики нарастания PL с высоким временным разрешением при импульсном возбуждении. В отсутствии безызлучательных потерь, время нарастания PL в нейтральных квантовых точках определяется только скоростью опустошения возбужденного

116

состояния за счет релаксации *e*-*h*-пары на нижайший уровень, а также рекомбинации носителей в возбужденном состоянии.

Анализ экспериментальных данных по наблюдению кинетики PL в гетероструктурах с самоорганизованными квантовыми точками InP и InGaAs позволяет заключить, что в этих структурах релаксация фотовозбужденных носителей в основное излучающее состояние происходит значительно быстрее, чем это предполагалось в ряде теоретических работ. Измеренные значения времени релаксации не превышают 100 рs для любых энергетических расстояний ΔE между возбужденным и нижайшим состояниями *e-h*-пары. Это на несколько порядков меньше, чем предсказано теоретически.

Проведенное исследование позволяет составить определенную иерархию релаксационных процессов в квантовых точках по степени их эффективности. При низкой температуре и отсутствии интенсивных внешних воздействий реализуются наиболее медленные процессы релаксации со спонтанным испусканием фононов, но даже эти процессы оказываются вполне эффективными. При больших значениях энергетических потерь ΔE основную роль играет релаксация с испусканием LO фононов, времена которой составляют единицы или доли пикосекунд. В области малых ΔЕ в единицы meV, фоторожденные е-h-пары эффективно релаксируют с испусканием низкочастотных LA фононов, длина волны которых порядка диаметра основания квантовых точек. Время этой релаксации также порядка единиц или долей пикосекунд. При промежуточных значениях ΔE в релаксации участвуют высокочастотные акустические фононы. Времена этой релаксации составляют десятки пикосекунд. Времена релаксации с излучением двух акустических фононов приблизительно вдвое больше. Быстрая фононная релаксация, наблюдаемая даже в случае малых значений ΔE , означает, что в исследуемых квантовых точках, несмотря на наличие дискретного энергетического спектра, не реализуется теоретически предсказанный эффект "узкого фононного горла".

Расхождение результатов экспериментов с предсказаниями теории обусловлено, в основном тем, что строгое теоретическое описание релаксации носителей в квантовых точках с испусканием акустических фононов к настоящему моменту не разработано. Существенный вклад в ускорение релаксации вносит, по-видимому, не учитываемое в теории $\Gamma - X - L$ смешивание, которое оказывается достаточно большим для электронных и дырочных состояний в квантовых точках. К этому смешиванию могут приводить сильная локализация носителей в малом объеме квантовой точки (эффект конфайнмента), а также внутренние напряжения за счет рассогласования кристаллических решеток квантовой точки и ее окружения. $\Gamma - X - L$ смешивание увеличивает

Динамика носителей ...

эффективность взаимодействия *e*-*h*-пар с высокочастотными акустическими фононами, имеющими большой волновой вектор. Другой причиной ускорения релаксации может быть общее увеличение электрон-фононного взаимодействия в квантовых точках.

При изучении фононно-стимулированной релаксации, *e*-*h*-пару можно рассматривать как единую коррелированную систему. Об этом свидетельствуют узкие фононные резонансы, наблюдаемые в эксперименте. Причина этого заключается в большой скорости обмена энергией между электроном и дыркой, достаточно сильно взаимодействующих друг с другом как заряженные частицы. Система уровней энергии *e*-*h*-пары состоит из совокупности энергетических уровней электронов и дырок и поэтому является более плотной, чем система уровней энергии каждого из носителей. В частности, дискретный энергетический спектр *e*-*h*-пары начинает перекрываться с ее сплошным спектром на расстоянии $\Delta E \approx 15$ meV и $\Delta E \approx 50$ meV от нижайшего уровня для квантовых точек InP и InGaAs, соответственно. Плотный энергетический спектр *e*-*h*-пары накладывает гораздо меньше ограничений на каналы фононно-индуцированной релаксации, чем в случае релаксации отдельных носителей, что является еще одной причиной отсутствия эффекта "узкого фононного горла".

Внешние воздействия, такие как интенсивное оптическое облучение или приложение электрического смещения, сопровождаемое протеканием тока через образец, приводят к ускорению релаксации *e-h*-пары за счет многочастичных Оже-процессов. В таких процессах, реализующихся при наличии в квантовой точке нескольких носителей или более чем одной *e-h*-пары, фоторожденная пара теряет избыточную энергию, передавая ее другим носителям. Релаксация с помощью Оже-процесса является быстрой, поскольку носители, как заряженные частицы, взаимодействуют друг с другом много сильнее, чем с фононами. Времена релаксации составляют единицы или доли пикосекунд. Следует подчеркнуть, что наличие избыточных зарядов в квантовой точке или барьерном слое, протекание электрического тока через гетероструктуру, сильное возбуждение квантовых точек — все это обычные условия работы приборов на основе квантовых точек. Поэтому релаксация носителей в этих приборах в значительной мере должна определяться Оже-процессами.

Повышение температуры меняет кинетику PL квантовых точек, сокращая, в частности, время ее разгорания. В то же время, как показывает анализ экспериментальных данных, в интервале температур 0 – 100 К это сокращение не связано с термостимулированным ускорением релаксации горячих носителей, хотя именно этот процесс используется многими авторами для объяснения температурных изменений кинетики PL квантовых точек. В действительности, резкое сокращение времени нарастания импульса PL обусловлено термостимулированным выбросом ("испарением") дырок из квантовых точек, в результате которого часть точек становится отрицательно заряженной. В таких точках появление PL в Стоксовой области может происходить сразу после возбуждения за счет рекомбинации фоторожденной дырки с рожденным ранее электроном. Испарение дырок приводит кроме того к сокращению времени затухания PL, а возвращение выброшенных дырок в квантовую точку является причиной появления долгоживущей компоненты в кинетике PL. При температуре 70 К эта компонента вносит подавляющий вклад (до 80%) в сигнал PL квантовых точек InP и фактически определяет поведение PL в диапазоне температур 50 – 100 К.

Литература

- Молекулярно-лучевая эпитаксия и гетероструктуры, Под ред. Л. Ченга и К. Плога (М., "Мир", 1989) [Molecular Beam Epitaxy and Heterostructures, Eds. Leroy L. Chang and Klaus Ploog (Dordrecht, Martinus Nijhoff Publishers, 1985]
- [2] J.-S. Lee: "Growth of Self-Organized Quantum Dots". In: Semiconductor Quantum Dots. Physics, Spectroscopy and Applications, Eds. Yasuaki Masumoto and Toshihide Takagahara. Springer series "NanoScience and Technology", (Berlin, Heidelberg, Springer-Verlag, 2002)
- [3] D. Lacombe, A. Ponchet, S. Frechengues, V. Drouot, N. Bertru, B. Lambert, and A. Le Corre: Appl. Phys. Lett. 74, 1680 (1999)
- [4] Y. Arakawa, H. Sakaki: Appl. Phys. Lett. 40, 939 (1982)
- [5] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledenstov: *Quantum dot heterostructures* (Wiley, 1999)
- [6] M. Sugawara: *Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots* Series "Semiconductors and Semimetals" **60** (Academic press, 1999)
- [7] Semiconductor Quantum Dots. Physics, Spectroscopy and Applications, Eds. Yasuaki Masumoto and Toshihide Takagahara. Springer series "NanoScience and Technology", (Berlin, Heidelberg, Springer-Verlag, 2002)
- [8] A. Weber, K. Goede, M. Grundmann, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov: Phys. status solidi (b) 224, 833 (2001)
- [9] D. Botez: Proceedings of 13th International Symposium "Nanostructures: Physics and Technology", Ioffe Institute, St.Petersburg (2005), p. 429.

120

- [10] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel, Y. Arakawa: Phys. Rev. B 54, 11532 (1996)
- [11] S. Raymond, K. Hinzer, S. Fafard, J. L. Merz: Phys. Rev. B 61, R16331 (2000)
- [12] O. Verzelen, G. Bastard, and R. Ferreira, Phys. Rev. B 66, 081308(R) (2002)
- [13] M. Vollmer, E. J. Mayer, W. W. Rühle, A. Kurtenbach, K. Eberl: Phys. Rev. B 54, 17292 (1996)
- [14] I. E. Kozin, I. V. Ignatiev, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: J. Lumin. 87–89, 441 (2000)
- [15] I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, S. V. Nair, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. Rev. B 61, 15633 (2000)
- [16] I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, V. G. Davydov, S. V. Nair, J.-S. Lee, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. Rev. B 63, 075316 (2001)
- [17] S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, A. Lemaître, J. M. Gérard: Phys. Rev. B 60, 15589 (1999)
- [18] D. Wassermann, S. A. Lyon: Phys. status solidi (b) 224, 585 (2001)
- [19] S. A. Permogorov: Phys. status solidi (b) 68, 9, (1975)
- [20] V. F. Gandmacher, Y. B. Levinson: Carrier Scattering in Metals and Semiconductors (North-Holland, Amsterdam, 1987)
- [21] U. Bockelmann and G. Bastard: Phys. Rev. B 42, 8947 (1990)
- [22] T. Inoshita, H. Sakaki: Phys. Rev. B 46, 7260 (1992)
- [23] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès, C. Weisbuch: Phys. Rev. B 44, 10945 (1991)
- [24] R. Heitz, H. Born, F. Guffarth, O. Stier, A. Schliwa, A. Hoffman, and D. Bimberg: Phys. Rev. B 64, 241305(R) (2001)
- [25] J. Urayama, T. B. Norris, J. Singh, and P. Bhattacharya: Phys. Rev. Lett. 86, 4930 (2001)
- [26] S. Hu, A. A. Mikhailovsky, J. A. Hollingsworth, and V. I. Klimov: Phys. Rev. B 65, 045319 (2002)

- [27] U. Bockelmann and T. Egeler: Phys. Rev. B 46, 15574 (1992)
- [28] A. L. Efros, V. A. Kharchenko, M. Rosen: Solid State Commun. 93, 281 (1995)
- [29] T. S. Sosnowski, T. B. Norris, H. Jiang, J. Singh, K. Kamath, P. Bhattacharya: Phys. Rev. B 57, R9423 (1998)
- [30] V. I. Klimov, A. A. Mikhailovsky, D. W. McBranch, C. A. Leathedrale, M. G. Bawendi: Phys. Rev. B 61, R13349 (2000)
- [31] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, F. Scholz, H. Schweizer, M. H. Pilkuhn, B. Ohnesorge, A. Forchel: J. Appl. Phys. 80, 4019 (1996)
- [32] S. Grosse, J. H. H. Sandmann, G. von Plessen, J. Feldmann, H. Lipsanen, M. Sopanen, J. Tulkki, J. Ahopelto: Phys. Rev. B 55, 4473 (1997)
- [33] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov: Phys. Rev. B 56, 10435 (1997)
- [34] T. Okuno, H. W. Ren, M. Sugisaki, K. Nishi, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. Rev. B 57, 1386 (1998)
- [35] M. Braskén, M. Lindberg, M. Sopanen, H. Lipsanen, J. Tulkki: Phys. Rev. B 58, R15993 (1998)
- [36] S. Marsinkevičius and R. Leon: Phys. Rev. B 59, 4630 (1999)
- [37] D. Morris, N. Perret, S. Fafard: Appl. Phys. Lett 75, 3593 (1999)
- [38] C. Lobo, N. Perret, D. Morris, J. Zou, D. J. H. Cockayne, M. B. Johnston, M. Gal, R. Leon: Phys. Rev. B 62, 2737 (2000)
- [39] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, D. Haase, P. Ernst, A. Dornen, F. Scholz, H. Schweizer: J. Appl. Phys. 83, 1631 (1998).
- [40] H. Born $u \partial p$.: Phys. status solidi (b) **224**, 487 (2001).
- [41] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J. L. Merz, P. M. Petroff: Phys. Rev. B 52, 5752 (1995)
- [42] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov: Appl. Phys. Lett. 68, 361 (1996)

- [43] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff, G. H. Döhler: Phys. Rev. B 54, 11346 (1996)
- [44] M. Grundmann, R. Heitz, N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich: Superlatt. Microstruct. 19, 81 (1996)
- [45] C. Guasch, C. M. Sotomayor-Torrès, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev: Superlatt. Microstruct. 21, 509 (1997)
- [46] A. V. Baranov, V. Davydov, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: J. Lumin. 87–89, 503 (2000)
- [47] P. C. Sercel: Phys. Rev. B 51, 14532 (1995)
- [48] D. F. Schroeter, D. J. Griffiths, P. C. Sercel: Phys. Rev. B 54, 1486 (1996)
- [49] T. Inoshita, H. Sakaki: Phys. Rev. B 56, R4355 (1997)
- [50] X.-Q. Li, Y. Arakawa: Phys. Rev. B 56, 10423 (1997)
- [51] X. Q. Li, H. Nakayama, Y. Arakawa: Phys. Rev. B 59, 5069 (1999)
- [52] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, Y. Arakawa: Phys. Rev. Lett. 82, 4114 (1999)
- [53] I. Ignatiev, I. Kozin, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. Rev. B 60, R14001 (1999)
- [54] A. V. Uskov, F. Adler, H. Schweizer, M. H. Pilkuhn: J. Appl. Phys., 81, 7895 (1997)
- [55] S. Nair, Y. Masumoto: J. Lumin. 87–89, 408 (2000) Phys. status solidi
 (b) 178, 303 (2000)
- [56] R. Ferreira, G. Bastard: Appl. Phys. Lett, . 74, 2818 (1999); Phys. stat. sol. (a) . 178, 327 (2000)
- [57] V. Davydov, I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, S. V. Nair, J.-S. lee, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. status solidi (b) 224, 293 (2001)
- [58] Y. Masumoto, I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, V. G. Davydov, S. V. Nair, J.-S. lee, H.-W. Ren, S. Sugou: Jpn. J. Appl. Phys., 40, 1947 (2001).
- [59] C. Pryor, M-E. Pistol, L. Samuelson: Phys. Rev. B 56, 10404 (1996)

- [60] M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. M. Manz, K. Eberl, V. V. Moshchalkov: Phys. Rev. B 62, 10324 (2000)
- [61] H.-W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou, K. Nishi, A. Gomyo, Y. Masumoto: Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 38, 2438 (1999)
- [62] J.-S. Lee, K. Nishi, Y. Masumoto: J. Cryst. Growth 221, 586 (2000)
- [63] S. Raymond, X. Guo, J. L. Merz, S. Fafard: Phys. Rev. B 59, 7624 (1999).
- [64] E. Bedel, G. Landa, R. Charles, J. P. Redouleś, J. B. Renussi: J. Phys. C: Solid State Phys. 19, 1471 (1986)
- [65] A. A. Sirenko, M. K. Zundel, T. Ruf, K. Eberl, M. Cardona: Phys. Rev. B 58, 12633 (1998)
- [66] H. Stolz: *Time-Resolved Light Scattering from Excitons*, Springer-Verlag (Berlin Heidelberg 1994)
- [67] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, O. Stier, A. Madhukar, D. Bimberg: Phys. Rev. Lett. 83, 4654 (1999)
- [68] M. Bissiri, G. B. H. von Högersthal, A. S. Bhatti, M. Capizzi, A. Frova, P. Frigeri, S. Franchi: Phys. Rev. B 62, 4642 (2000)
- [69] F. Findeis, A. Zrenner, G. Bohm, G. Abstreiter: Phys. Rev. B 61, R10579 (2000)
- [70] L. Zimin, S. Nair, Y. Masumoto: Phys. Rev. Lett 80, 3105 (1998)
- [71] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, L. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Gullis, G. Hill, J. C. Clark: Phys. Rev. Lett 84, 733 (2000)
- [72] Л. Д. Ландау, Е. М. Лившиц: Квантовая механика, 3-е изд., М. "Наука", 1975, параграф 50 [L. D. Landau, E. M. Lifshitz: Quantum Mechanics, 3rd edition (Pergamon, 1977), sec. 50].
- [73] V. Davydov, I. Ignatiev, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto: Appl. Phys. Lett. 74, 3002 (1999)
- [74] P. C. Sercel, Al. L. Efros, M. Rosen: Phys. Rev. Lett. 83, 2394 (1999)

124

- [75] Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology (Springer-Verlag, 1987), New Series, Group III, Vol. 22a, pp. 120, 141, 351
- [76] M. Sugawara: Phys. Rev. B 51, 10743 (1995)
- [77] V. Davydov, A. V. Fedorov, I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, H.-W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou, Y. Masumoto: Phys. status solidi (b) 224, 425 (2001)
- [78] C. S. Menoni, L. Miao, D. Patel, O. I. Mic'ic', A. J. Nozik: Phys. Rev. Lett. 84, 4168 (2000)
- [79] C. Ulrich, S. Ves, A. R. Goñi, A. Kurtenbach, K. Syassen, K. Eberl: Phys. Rev. B 52, 12212 (1995)
- [80] I. E. Itskevich, M. S. Skolnick, D. J. Mowbray, I. A. Trojan, S. G. Iyapin, L. R. Wilson, M. J. Steer, M. Hopkinson, L. Eaves, P. C. Main: Phys. Rev. B 60, R2185 (1999)
- [81] H. Fu, A. Zunger: Phys. Rev. B 57, R15064 (1998); L. W. Wang, J. Kim,
 A. Zunger: Phys. Rev. B 59, 5678 (1999); L. W. Wang, A. Zunger: Phys.
 Rev. B 59, 15806 (1999)
- [82] R. Ferreira, G. Bastard: Appl. Phys. Lett. 74, 2818 (1999)
- [83] A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard: Phys. Rev. Lett., 89, 216804 (2002)
- [84] R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira, G. Bastard: Phys. Rev. B 68, 235301 (2003)
- [85] S. V. Nair: в книге Semiconductor Quantum Dots, Eds. Yasuaki Masumoto and Toshihide Takagahara. Springer series "NanoScience and Technology", Springer-Verlag 2002, p. 439
- [86] A. Hartmann, Y. Ducommun, E. Kapon, U. Hohenester, E. Molinari: Phys. Rev. Lett., 84, 5648 (2000)
- [87] J. J. Finley, A. Lemaître, K. L. Schumacher, A. D. Ashmore, D. J. Mowbray, I. Itskevich, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, T. F. Krauss: Physica status solidi (b), 224, 373 (2001)
- [88] D. Hessman, J. Persson, M. E. Pistol, C. Pryor, L. Samuelson: Phys. Rev. B 64, 233308 (2001).

- [89] I. E. Kozin, V. G. Davydov, I. V. Ignatiev, A. V. Kavokin, K. V. Kavokin, G. Malpuech, Hong-Wen Ren, M. Sugisaki, S. Sugou, and Y. Masumoto: Phys. Rev. B, 65, 241312(R) (2002).
- [90] M. Prutton: "Introduction to Surface Physics" (Clarendon Press, Oxford 1994) [М. Праттон "Введение в физику поверхности" (Москва, Ижевск 2000)].
- [91] A. V. Maleev, I. V. Ignatiev, I. Ya. Gerlovin, I. E. Kozin, Y. Masumoto: Phys. Rev. B, 71, 195323 (2005).
- [92] P. W. Yu, D. N. Talwar, H. Q. Hou, C. W. Tu: Phys. Rev. B 49, 10735 (1994)
- [93] Ч. Киттель: Введение в физику твердого тела М., "Мир", 1997 [C. Kittel, Introduction to Solid State Physics (Wiley, New York, 1995)].
- [94] S. Marcinkevicius, R. Leon: Phys. Rev. B 59, 4630 (1999).
- [95] S. Lan, K. Akahane, H. Z. Song, Y. Okada, M. Kawabe, T. Nishimura, O. Wada: Phys. Rev. B 61, 16847 (2000).
- [96] S. Marcinkevicius, A. Gaarder, R. Leon: Phys. Rev. B 64, 115307 (2001).