

## Оптические свойства экситонов в квантовых нитях полупроводник (InP)–диэлектрик

© В.С. Днепровский, Е.А. Жуков, Н.Ю. Маркова, Е.А. Муляров\*, К.А. Черноуцан, О.А. Шалыгина

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

\* Институт общей физики Российской академии наук,  
117942 Москва, Россия

E-mail: dnepr@scond.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 19 июля 1999 г.)

Особенности спектров поглощения, люминесценции, эффективности люминесценции при возбуждении образцов излучением лазера различной поляризации, нелинейная зависимость интенсивности люминесценции от уровня возбуждения объяснены экситонными переходами в квантовых нитях полупроводник (InP)–диэлектрик (хризотил асбест). Получено количественное согласие измеренных значений энергии экситонных переходов в квантовых нитях с рассчитанными. При расчетах учитывалось как размерное квантование в квазиодномерной структуре, так и ”диэлектрическое усиление” экситонов (значительное увеличение энергии связи экситона и силы осциллятора экситонного перехода, связанное с увеличением притяжения между электроном и дыркой из-за большого различия диэлектрических проницаемостей полупроводника и диэлектрической матрицы).

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 99-02-18327, 97-02-17600, программой ”Физика твердотельных наноструктур” (гранты № 97-1083, 97-1072).

Изучение полупроводниковых квантовых нитей (КН) привлекает внимание исследователей не только из-за особенностей электронных и экситонных свойств, но и из-за возможности их использования в электронике и оптоэлектронике [1,2]. В КН электроны и экситоны могут двигаться свободно в одном направлении, а в двух других они локализованы. Эти обстоятельства приводят, например, к тому, что в КН возрастает энергия связи и сила осциллятора экситонного перехода. Ограничение движения уменьшает расстояние между электроном и дыркой, что вызывает увеличение их кулоновского притяжения. Для типичных полупроводниковых КН размерное квантование приводит к увеличению энергии связи экситона в несколько раз (до 20–30 meV [3,4]) по сравнению с соответствующим объемным полупроводником. Энергию связи экситонов можно значительно увеличить (на порядок и более), если заменить барьерный полупроводниковый материал КН на изолятор с малой диэлектрической проницаемостью [5–8]. В такой системе диэлектрическое усиление экситонов связано с концентрацией кулоновской энергии взаимодействия в диэлектрике из-за значительной разницы диэлектрических констант. Силовые линии электрического поля, соединяющие электрон и дырку, частично (для тонких нитей в основном) проходят через диэлектрик. Подбирая материал полупроводниковой нити и окружающего ее барьера с разными диэлектрическими константами, можно в широких пределах менять энергию связи и силу осциллятора экситонов в КН — осуществлять ”инженерию кулоновского взаимодействия” [7].

В настоящей работе измерены спектры поглощения и люминесценции, зависимость интенсивности и ширины линии люминесценции от уровня возбуждения, изме-

нение интенсивности люминесценции при возбуждении поляризованным излучением лазера КН полупроводник-диэлектрик (InP, кристаллизованный внутри прозрачных диэлектрических нанотрубок хризотил асбеста). Рассчитанные с учетом размерного квантования и диэлектрического усиления значения энергии экситонных переходов в КН полупроводник(InP)–диэлектрик согласуются с измеренными. Анализируются физические процессы, приводящие к нелинейной зависимости интенсивности люминесценции от уровня возбуждения: нелинейное поглощение экситонов (заполнение фазового пространства экситонов) и усиление безызлучательной рекомбинации (Оже-процесс). Изменение эффективности люминесценции КН полупроводник-диэлектрик объяснена особенностями поглощения возбуждающего излучения, поляризованного вдоль и перпендикулярно оси КН, кристаллизованных в диэлектрической матрице.

### 1. Схема и результаты эксперимента

В эксперименте использовались образцы, большие размеры и плотность КН которых позволили измерить спектры поглощения без применения оптического микроскопа ближнего поля. Фосфид индия был кристаллизован внутри прозрачных нанотрубок диэлектрического материала (хризотил-асбест) методом газофазного металлорганического синтеза. Хризотил-асбест (природный материал) состоит из пучков плотно упакованных параллельных нанотрубок, длиной до нескольких миллиметров [9]. Дисперсия внутренних диаметров трубок в пределах одного пучка была не более 10%. В использованных нами образцах измеренный с помощью электронного

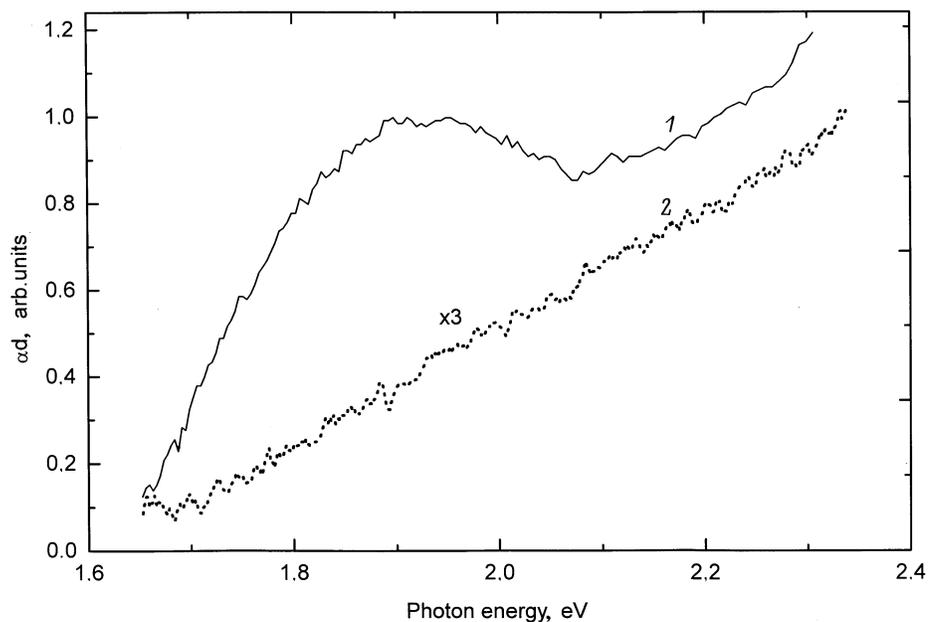


Рис. 1. Спектры поглощения образца InP в хризотил-асбесте (1) и хризотил-асбестовой матрицы (2).

микроскопа<sup>1</sup> внутренний диаметр нанотрубок составлял 4–5 nm, внешний — около 30 nm.

Спектры люминесценции КН InP в хризотил-асбестовой матрице и исходной матрице регистрировались с помощью многоканального оптического анализатора OVA–284 (спектральное разрешение около 0.01 eV). Возбуждение образцов осуществлялось поляризованным излучением второй гармоники ( $\hbar\omega = 2.3$  eV) лазера на аллюминате иттрия, легированного ионами неодима и работающего в режиме модуляции добротности (длительность импульса генерации 14 ns, максимальная плотность мощности возбуждающего излучения 5 MW/cm<sup>2</sup> при фокусировке в пятно диаметром 0.5 mm). При измерении спектров пропускания использовалась лампа накаливания и микроскоп, позволивший провести измерение с площадки диаметром около 2  $\mu$ m и уменьшить неоднородное уширение спектров пропускания, связанное с дисперсией размеров КН. Все измерения проведены при комнатной температуре образцов.

На рис. 1 представлены спектры поглощения образца InP в хризотил-асбесте и хризотил-асбестовой матрицы. Полосу поглощения (холм) с максимумом в окрестности 1.9 eV на фоне монотонно изменяющегося поглощения мы связываем с поглощением наноструктурами InP.

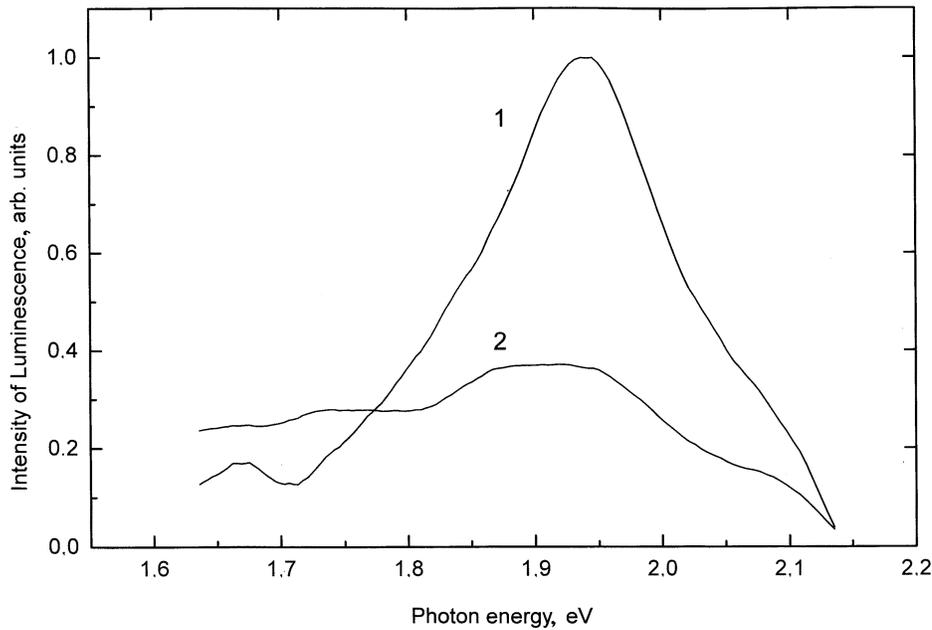
Спектры фотолюминесценции образца InP в хризотил-асбесте имеют две широкие полосы — одну с максимумом 1.94 eV и вторую (слабую по интенсивности) с максимумом в области больших энергий. Измеренные спектры исходной хризотил-асбестовой матрицы позволяют считать, что высокочастотная полоса связана с люминесценцией матрицы. Все представленные в работе спектры

люминесценции получены путем вычитания из спектра люминесценции образца InP в хризотил-асбесте спектра люминесценции матрицы. На рис. 2 приведены спектры ФЛ наноструктур InP, кристаллизованных в хризотил-асбесте, при возбуждении образца излучением лазера, поляризованным вдоль оси нанотрубок (кривая 1) и перпендикулярно оси (кривая 2). Интенсивность люминесценции в первом случае значительно больше — степень поляризации  $(I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$ , где  $I_{\parallel, \perp}$  — интенсивность люминесценции при параллельной (перпендикулярной) оси КН поляризации возбуждающего излучения лазера, достигает 0.46. На рис. 3 представлены спектры фотолюминесценции наноструктур InP в хризотил-асбесте при возбуждении образца излучением лазера различной мощности. Полуширина линий люминесценции (около 0.2 eV) практически не зависит от уровня возбуждения. Зависимость интенсивности люминесценции от уровня возбуждения (вставка к рис. 3) нелинейная — при высоком уровне возбуждения наблюдается насыщение люминесценции.

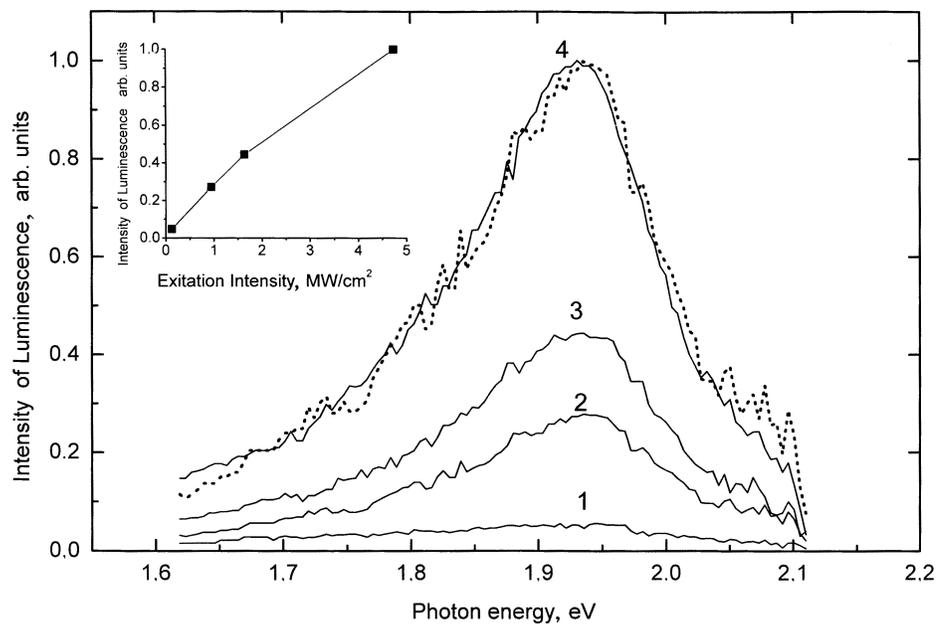
## 2. Обсуждение результатов

В работах [10,11] показано, что в квазиодномерной полупроводниковой структуре доминируют экситонные переходы, т.е. проявляется anomalно большая концентрация силы осциллятора на частотах экситонных переходов. В линейных спектрах поглощения КН InP, кристаллизованных в нанотрубках хризотил-асбеста, наряду с полосой поглощения в окрестности 1.9 eV наблюдается также и поглощение, монотонно увеличивающееся с ростом энергии фотона (рис. 1). Оно может быть связано не только с поглощением и рассеянием матри-

<sup>1</sup> Измерения проведены Н.А. Кисилевым и Д.Н. Захаровым (Институт кристаллографии РАН).



**Рис. 2.** Спектры ФЛ квантовых нитей InP в хризотил-асбесте при возбуждении образца излучением лазера, поляризованным вдоль оси квантовых нитей (1) и перпендикулярно оси (2).

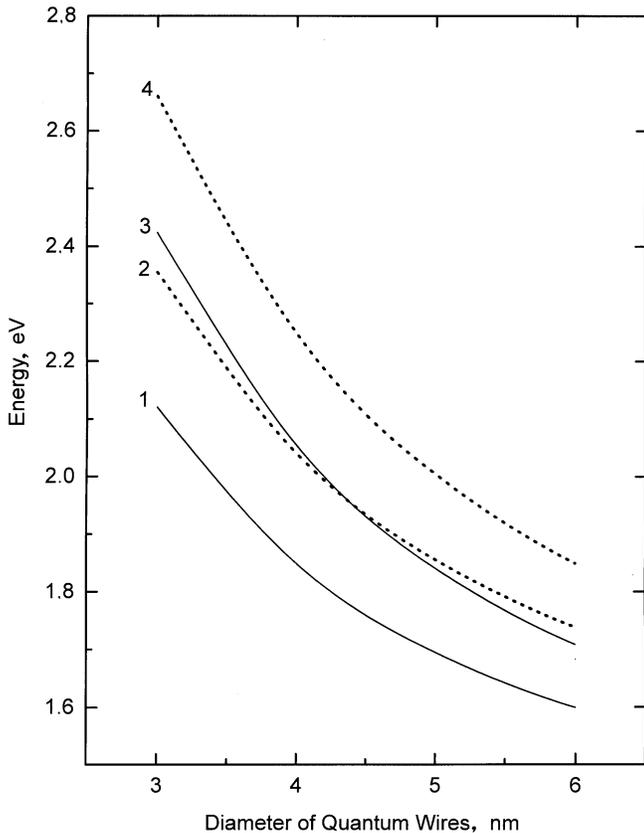


**Рис. 3.** Спектры ФЛ квантовых нитей InP в хризотил-асбесте при возбуждении образца лазерным излучением интенсивностью  $\text{MW}/\text{cm}^2$ : 1 — 0.11; 2 — 0.94; 3 — 1.65; 4 — 4.7. Штриховой линией обозначен спектр (2), нормированный на максимальное значение интенсивности люминесценции. На вставке приведена зависимость интенсивности люминесценции от уровня возбуждения.

цы (хризотил-асбест), но и с межзонным поглощением объемного полупроводника (ширина запрещенной зоны InP 1.35 eV при комнатной температуре). По-видимому, часть полупроводникового материала кристаллизуется между пучками нанотрубок в виде относительно больших микрокристаллов InP — микрокристаллов, в которых не проявляется размерное квантование. Монотонно

увеличивающееся межзонное поглощение полупроводника можно исключить в экспериментах по измерению дифференциального поглощения [8].

В соответствии с результатами теоретического расчета (см. далее) мы связываем полосу поглощения 1.9 eV (рис. 1) и совпадающую по энергии полосу люминесценции (рис. 2, 3) с экситонными переходами в КН InP,



**Рис. 4.** Теоретически рассчитанные зависимости энергии экситонных переходов  $e - hh$  (1),  $e - lh$  (3) и ширины одномерной запрещенной зоны для переходов с участием тяжелых (2) и легких (4) дырок квантовых нитей InP, кристаллизованных в диэлектрической матрице, от диаметра квантовой нити.

кристаллизованных в хризотил-асбесте. Существенное увеличение интенсивности люминесценции при возбуждении образцов излучением лазера, поляризованным вдоль оси нанотрубок хризотил-асбеста (рис. 2), позволяет сделать вывод о том, что InP кристаллизован в основном в виде КН. В [12] показано, что в отличие от однородного распределения поля в двухкомпонентной среде (параллельные полупроводниковые тонкие нити в диэлектрике с меньшей диэлектрической проницаемостью) для световой волны, поляризованной вдоль нити, поле существенно неоднородно (ослаблено внутри нити) для световой волны противоположной поляризации. Таким образом, уменьшается как поглощение света, поляризованного перпендикулярно оси КН, так и соответственно интенсивность люминесценции.

Спектральное положение полосы поглощения и люминесценции КН InP, кристаллизованных в хризотил-асбесте, позволяет оценить поперечные размеры (диаметр) КН. С этой целью были проведены расчеты, позволившие получить зависимость энергии экситонных переходов от диаметра КН из фосфида индия, кристаллизованных в диэлектрической матрице (рис. 4). При вычислениях использовалась следующая модель: экситон

Ванье–Мотта, локализованный в цилиндрической полупроводниковой нити, находящейся в диэлектрической матрице [6]. Из-за большой разницы в диэлектрических проницаемостях полупроводника и матрицы наряду с размерным квантованием, определяющим квазиодномерные свойства экситонов, учитывались потенциалы изображений. Они приводят к изменению локализуемого потенциала и к эффекту диэлектрического усиления — в десятки раз возрастает энергия связи экситонов (до 200 meV, рис. 4). В расчетах использовались следующие параметры полупроводника и диэлектрической матрицы: диэлектрическая проницаемость InP — 9.61, хризотил-асбеста — 2.3; эффективная масса электронов — 0.077, эффективная масса тяжелых дырок — 0.287, легких — 0.123. Если считать, что в спектрах поглощения и люминесценции доминируют переходы, обусловленные экситонами, образованными электронами одномерной зоны проводимости и тяжелыми дырками, то значения энергии этих переходов (рис. 1–3) при использовании результатов расчета (рис. 4) позволяют определить диаметр КН: 3.6–4 nm. Эти значения согласуются с измеренными внутренними диаметрами хризотил-асбестовых нанотрубок, в которых кристаллизован полупроводник. Значительная полуширина линий экситонного поглощения и люминесценции, по-видимому, связана с дисперсией поперечных размеров КН.

Как видно из рис. 3, при увеличении энергии (мощности) возбуждающего излучения лазера полуширина линий фотолюминесценции КН InP остается практически неизменной. Это можно объяснить [13] особенностью (дискретностью) плотности состояний в КН ( $P(E) \propto E^{-1/2}$ ).

Отклонение от линейного роста интенсивности люминесценции КН InP с ростом уровня возбуждающего излучения лазера (вставка на рис. 3) может быть связано с нелинейным поглощением (просветлением) экситонов, обусловленным эффектом заполнения фазового пространства и экранированием экситонов в квазиодномерной системе [8]. Оценим интенсивность  $S$  возбуждающего излучения лазера, при которой возникает нелинейное поглощение на частоте экситонного перехода. При этом концентрация экситонов должна увеличиться до  $n_{exc} \approx (a_{exc})^{-1}$ , где  $a_{exc}$  — эффективная боровская длина экситона, — экситоны ”трутятся плечами”. Поскольку измеренное время жизни экситонов в КН InP кристаллизованных в диэлектрической матрице,  $\tau_{exc} \cong 0.5$  ns [14] значительно меньше длительности импульса лазера, то для интенсивности накачки, при которой возникает насыщение поглощения экситонов, можно получить следующее выражение:  $S \approx \hbar\omega / [\tau_{exc} a_{exc} d (1 - e^{\alpha d})]$ , где  $\alpha$  — коэффициент поглощения КН, а  $d$  — ее эффективный поперечный размер. При  $a_{exc} = 10$  nm,  $d = 3$  nm и  $\alpha = 10^4$  cm<sup>-1</sup> интенсивность  $S \approx 9$  MW/cm<sup>2</sup>. Интенсивности возбуждения, при которых зарегистрирована нелинейная зависимость интенсивности люминесценции (вставка к рис. 3), не противоречат оцененному значению. Другим процессом, приводящим к нелинейной

зависимости интенсивности люминесценции от уровня возбуждения, может быть увеличение эффективности безызлучательной рекомбинации с ростом уровня возбуждения (Оже-рекомбинация).

Таким образом, анализ особенностей процессов поглощения и люминесценции квантовых нитей InP, кристаллизованных в диэлектрической матрице, зависимости интенсивности люминесценции от поляризации излучения возбуждающего лазера и уровня возбуждения позволяет сделать вывод о том, что они обусловлены экситонными переходами. При этом диэлектрическое усиление экситонов может вызывать значительное увеличение энергии связи экситонов. Полученные в результате теоретических расчетов значения энергий экситонных переходов в квазиодномерной структуре полупроводник (InP)–диэлектрик согласуются с измеренными.

Авторы благодарны С.Г. Романову за предоставленные образцы, Н.А. Кисилеву и Д.Н. Захарову за измерения на электронном микроскопе.

## Список литературы

- [1] Y. Arakawa, A. Yariv. *IEEE J. Quantum. Electron.* **22**, 1887 (1986).
- [2] C. Weisbuch, B. Vinter. "Quantum Semiconductor Structures". Academic Press, INC (1991).
- [3] T. Someya, H. Akiyama, H. Sakaki. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2965 (1996).
- [4] W. Weigscheider, L.N. Pfeiffer, M.M. Dignam, A Pinczuk, K.W. West, S.L. McCall, R. Hull. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 4071 (1993).
- [5] Н.С. Рытова. *ДАН СССР* **163**, 1118 (1965).
- [6] Е.А. Муляров, С.Г. Тиходеев. *ЖЭТФ* **111**, 274 (1997).
- [7] L.V. Keldysh. *Phys. Stat. Sol. (a)* **164**, 3 (1997).
- [8] В.С. Днепровский, Е.А. Жуков, Е.А. Муляров, С.Г. Тиходеев. *ЖЭТФ* **114**, 700 (1998).
- [9] В.Н. Богомолов. *УФН* **124**, 171 (1978); С.Г. Романов, Н.М. Йатс, М.И. Пембл, Д.Р. Аггер, М.В. Андерсон, К.М. Сотомайор Торрес, В.Ю. Бутко, Ю.А. Кумзеров. *ФТТ* **39**, 727 (1997).
- [10] R. Zimmermann. *Jpn. J. Of Appl. Phys.* **34**, 228 (1995).
- [11] S. Glutsch, D.S. Chemla. *Phys. Rev.* **B53**, 15902 (1996–I); R. Zimmermann. *Jpn. J. of Appl. Phys.* **34**, 228 (1995).
- [12] N.A. Gippius, S.G. Tikhodeev, J. Rubio, J.M. Calleja, P. Ils, A. Forchel, V.D. Kulakovskii. *Phys. Stat. Sol. (b)* **188**, 269 (1995).
- [13] С.А. Гуревич, Л.Г. Гладышева, С.О. Когновицкий, С.И. Кохановский, И.В. Кочнев, С.И. Нестеров, В.И. Скопина, В.Б. Смирницкий, В.В. Травников, С.И. Трошков, А.С. Усиков. *ФТТ* **36**, 6, 1774 (1994).
- [14] V. Dneprovskii, E. Zhukov, E. Mulyarov, S.Tikhodeev, Y. Masumoto. *Proc. ECS* **98–19**. Quantum Confinement: Nanostructures, 241 (1999).