

© 2014 р. О.В. Деревянчук, Н.К. Крамар, В.М. Крамар

Чернівецький національний університет імені Юрія Федьковича, Чернівці

ОПТИЧНА БІСТАБІЛЬНІСТЬ КВАЗІДВОВИМІРНИХ НАПІВПРОВІДНИКОВИХ НАНОСТРУКТУР В ОБЛАСТІ ЕКСИТОННОГО ПОГЛИНАННЯ

Наведені результати числових розрахунків частотної і температурної областей можливої реалізації явища внутрішньої оптичної бістабільності у плоских квазідвовимірних напівпровідникових наноструктурах з одиночною квантовою ямою – наноплівках. Конкретні розрахунки виконані на прикладі наноплівки шаруватого напівпровідника PbI_2 , уміщеної в діелектричне середовище – сополімер етилен-метакрилової кислоти (Е-ММА). Показано, що збільшення товщини наноплівки приводить до довгохвильового зсуву частотного інтервалу реалізації бістабільності, зростання розмірів петлі гістерезису і розширення температурного інтервалу реалізації цього явища.

Ключові слова: оптична бістабільність, екситон, наносистема, наноплівка, екситон-фононна взаємодія.

Приведены результаты числовых расчетов частотной и температурной областей возможной реализации явления внутренней оптической бистабильности в плоских квазидвумерных полупроводниковых наноструктурах с одиночной квантовой ямой – нанопленках. Конкретные расчеты выполнены на примере нанопленки слоистого полупроводника PbI_2 , находящегося в диэлектрической среде – сополимере этилен-метакриловой кислоты (Е-ММА). Показано, что увеличение толщины нанопленки приводит к длинноволновому смещению частотного интервала реализации бистабильности, возрастанию размеров петли гистерезиса и расширения температурного интервала реализации этого явления.

Ключевые слова: оптическая бистабильность, экситон, наносистема, нанопленка, экситон-фононное взаимодействие.

The results of numerical calculations of frequency and temperature range of possible implementation of the internal optical bistability phenomena in quasi-2D semiconductor nanostructures with a single quantum well – nanofilms are presented here. Concrete calculations are made for the nanofilm of layered semiconductor PbI_2 , embedded in a dielectric medium – ethylene-methacrylic acid (E-MAA) copolymer. It is shown that increasing of the nanofilm thickness leads to long-wave shift of the frequency interval realization of bistability, the growth of the hysteresis loop and the expansion of temperature range of realization of this phenomenon.

Keywords: optical bistability, exciton, nanosystem, nanofilm, exciton-phonon interaction.

Вступ

Розвиток технологій отримання і дослідження оптичних властивостей низьковимірних напівпровідникових наногетероструктур є актуальним завданням сучасного напівпровідникового матеріалознавства для потреб оптоелектроніки [1]. Це пояснюється широкими перспективами використання таких структур для створення електрооптичних перемикачів, приймачів і джерел випромінювання, а також швидкодіючих транзисторів і приладів спінтроніки [1-4].

Поряд з іншими, у даний час інтенсивно розвиваються технології отримання нано-

розмірних плівок [2, 5], придатних для створення каскадних лазерів і детекторів [6-8], та здійснюється вивчення їх оптичних властивостей. Особливо перспективними тут вважаються гібридні наногетероструктури на основі неорганічного напівпровідника, уміщеного в органічне середовище. Вони володіють унікальними властивостями, поєднуючи переваги неорганічних (висока рухливість носіїв, можливість зміни зонної структури та створення провідності потрібного типу) і органічних матеріалів (дешеві технології отримання, високий квантовий вихід люмінесценції при температурах

аж до кімнатних та ін.) [9, 10].

У якості ямного матеріалу гібридних наногетероструктур широко використовують шаруваті напівпровідники, поверхня яких практично ідеальна і характеризується малою густиною обірваних зв'язків [11]; тому властивості відповідних структур контролюються єдиним параметром – їх товщиною. Це робить їх привабливими як з практичної точки зору – для отримання матеріалу з потрібними характеристиками, так і з наукової – для дослідження впливу просторових обмежень руху квазічастинок на властивості наносистеми.

Протягом декількох останніх десятиліть стійко зберігається інтерес до вивчення оптичних властивостей діюдиду свинцю – шаруватого напівпровідника, привабливого матеріалу для потреб оптоелектроніки як безпосередньо [12-16], так і у складі наногетероструктур [17, 18], у тому числі й гібридних [19-22]. Важливою особливістю цього напівпровідника є суттєва нелінійність спектра екситонної поглинання, викликана особливостями структури енергетичного спектра електронів і фононів, а також екситон-фононної взаємодії, що сприяє реалізації в ньому явища внутрішньої оптичної бістабільності (ОБ) [23, 24], яке має дуже широку перспективу використання в оптоелектроніці [25]. Частотна та температурна області реалізації ОБ в масивних кристалах PbI_2 , розміри петлі гістерезису, а також їх залежність від поляризації збуджуючої хвилі і сили магнітного поля досліджені теоретично у роботах [26, 27]. Аналогічні дослідження можливості реалізації ОБ у наноструктурах не виконувалися.

Мета цієї статті полягає в теоретичному дослідженні особливостей реалізації явища внутрішньої ОБ у наноплівці (НП) – квазидвовимірній плоскій наногетероструктурі І типу, утвореній подвійним гетеропереходом напівпровідник-полімер. Актуальність такого дослідження полягає в тому, що його результат дає змогу здійснення спрямованого пошуку умов експериментального спостереження внутрішньої ОБ в області ек-

ситонних резонансів. Складність такого спостереження у масивних напівпровідниках полягає в тому, що діапазон частот, в якому можлива реалізація явища ОБ, досить вузький. Його положення і протяжність визначаються структурою енергетичних спектрів електронної та фононної систем напівпровідника, а також ефективністю їх взаємодії. Тому не завжди можна підібрати лазер з частотою випромінювання, що відповідає діапазону можливої реалізації ОБ. Залежність енергії збудження екситонного стану та ефективності його взаємодії з фононами у НП від її товщини робить можливим узгодження частоти джерела (лазера) і області реалізації ОБ.

Постановка задачі

Просторові обмеження руху квазічастинок у наносистемах, а також зростання впливу на їх стан граничних умов на межах гетеропереходів вносять зміни у процеси екситонного поглинання та екситон-фононної релаксації, що є визначальними у формуванні умов реалізації явища ОБ. Крім того, експериментальному спостереженню цього явища сприяє факт збільшення енергії зв'язку екситону в квазидвовимірних наноструктурах порівняно з масивними кристалами, що робить його стійкішим відносно термічної дисоціації.

Для досягнення мети дослідження розглядалася задача розрахунку коефіцієнту екситонного поглинання напівпровідникової НП в умовах опромінювання потужним джерелом – лазером, що забезпечує виникнення густин екситонних станів, достатніх для появи нелінійностей відповідних спектрів [23]. Конкретні розрахунки здійснені для моделі НП шаруватого напівпровідника $2H-PbI_2$, розміщеної в діелектричному середовищі – сополімер етилен-метакрилової кислоти (Е-ММА).

Мікрокристаліти у формі гексагональних пластинок товщиною в декілька шарів PbI_2 , синтезовані хіміко-термічним методом в органічному середовищі Е-ММА, отримані та досліджені авторами роботи [19]. Оскільки товщини мікрокристалітів суттєво менші їх поперечних розмірів, таку структуру можна вважати квазидвовимірною. Моделюючи її плоскою гетероструктурою з нескінченно

глибокою квантовою ямою (КЯ), нами розраховано енергію переходу в основний екситонний стан і спектральну залежність функції форми смуги екситонного поглинання у НП різної товщини за різних температур [28, 29]. Показано, що зменшення товщини НП спричиняє нелінійне зростання енергії зв'язку екситону та зсув енергії основного екситонного стану в бік більших її значень.

Використовуючи описану в роботах [28, 29] методику, можна знайти спектральну залежність коефіцієнта поглинання НП

$$\alpha(\omega, T) = 2\pi |D_0|^2 S(\omega, T), \quad (1)$$

де D_0 – дипольний момент прямого екситонного переходу;

$$S(\omega, T) = \frac{\Gamma(\omega, T)}{[\omega - \omega_0 - \Delta(\omega, T)]^2 + \Gamma(\omega, T)^2} \quad (2)$$

– залежна від частоти переходу ω і температури T функція форми смуги поглинання, яка визначається дійсною і уявною частинами масового оператора екситон-фононої взаємодії $M(\omega, \vec{k}) = \Delta(\omega, \vec{k}) - i\Gamma(\omega, \vec{k})$ [30];

ω_0 – частота екситонного переходу в НП, обчислена без урахування екситон-фононої взаємодії [28].

Масовий оператор екситон-фононої системи за умови інтенсивного поглинання, пов'язаного з переходом виключно в основний екситонний стан [28], подається у вигляді

$$M(\vec{k}_\perp, \omega, T) = \sum_{n, \alpha, \vec{q}_\perp} |\Phi_{1n}^{(\alpha)}(\vec{q}_\perp)|^2 \times \left[\frac{1 + v_\alpha(\vec{q}_\perp, T) + N(\vec{q}_\perp)}{\omega - \omega_0(\vec{k}_\perp - \vec{q}_\perp) - \Omega_\alpha(\vec{q}_\perp)} + \frac{v_\alpha(\vec{q}_\perp, T) - N(\vec{q}_\perp)}{\omega - \omega_0(\vec{k}_\perp + \vec{q}_\perp) + \Omega_\alpha(\vec{q}_\perp)} \right], \quad (3)$$

де

$$\Phi_{m'n'}^{(\alpha)}(\vec{q}_\perp) = F_{m'n'}^\alpha(\vec{q}_\perp) \left[\frac{1}{1 + (m_{h\perp} a_{ex} q_\perp / 4m_{ex})^2} - \frac{1}{1 + (m_{e\perp} a_{ex} q_\perp / 4m_{ex})^2} \right], \quad (4)$$

$F_{m'n'}^\alpha(\vec{q}_\perp)$ – функція зв'язку електрона, що знаходиться на n -му рівні у КЯ, з фононом (поперечна до напрямку росту НП компонента хвильового вектора якого дорівнює \vec{q}_\perp) за участі вищих (n') станів електронного спектра [28, 29]:

$$v_\alpha(\vec{q}_\perp, T) = \left[\exp \frac{\hbar \Omega_\alpha(\vec{q}_\perp)}{k_B T} - 1 \right]^{-1}$$

і

$$N(\vec{k}_\perp, T) = \left[\exp \frac{\hbar \omega(\vec{k}_\perp) - \mu}{k_B T} - 1 \right]^{-1}$$

– числа заповнення фононних і екситонних станів, відповідно, μ – хімічний потенціал екситонів, α – індекс, що визначає тип фонона та поздовжню компоненту його хвильового вектора $\vec{q} = (\vec{q}_\perp, q_\parallel)$ [28], Ω_α – частота відповідного фонона, $m_{e\perp}$ і $m_{h\perp}$ – поперечні компоненти тензора ефективних мас електрона і дірки, відповідно, m_{ex} і a_{ex} – маса і радіус основного екситонного стану в КЯ.

Розглядаються прямі переходи в області дна екситонної зони ($\vec{k}_\perp = 0$), тому за умови слабкої інтенсивності освітлення НП (I_0) концентрація екситонів може вважатися малою, так що масовий оператор (3), функція форми смуги поглинання (2) і коефіцієнт поглинання (1) виявляються залежними тільки від частоти збуджуючої хвилі та температури. Поглинальна здатність наносистеми при цьому формується тільки процесами фононої релаксації екситонного збудження, а залежність інтенсивності I на виході з НП товщиною d від I_0

$$I(\omega) = I_0 e^{-\alpha(\omega)d} \quad (5)$$

буде лінійною.

Збільшення інтенсивності I_0 зумовлює зростання густини екситонного газу N_{ex} . У цьому випадку значення Δ , Γ , а тому і коефіцієнта поглинання α , будуть визначатися не тільки частотою ω і температурою T , але й інтенсивністю поглинання кристалу на даній частоті. Дійсно, внаслідок наявності зв'язку між хімічним потенціалом екситонів

та їх концентрацією у наносистемі, числа заповнення екситонних станів виявляються залежними від N_{ex} . Значення ж цієї величини визначається інтенсивністю освітлення I_0 . Тому залежність (5) між інтенсивностями I та I_0 стає нелінійною. Це приводить до можливості існування певних частотних і температурних інтервалів, у межах яких одній і тій самій інтенсивності I_0 буде відповідати два різних значення I , тобто досягається стан ОБ [23].

Використовуючи явний вигляд наведених у [28] функцій зв'язку, можна розрахувати спектральну залежність коефіцієнта поглинання при фіксованому значенні температури, та, за наведеною в [26] методикою, визначити залежність коефіцієнта поглинання α або пропускання $\tau=1/I_0$ від I_0 при фіксованих значеннях частоти і температури T . Унаслідок нелінійності поглинання можливе існування області зміни I_0 , всередині якої α і τ стають двозначними функціями інтенсивності освітлення I_0 . Розміри області існування ОБ можуть змінюватись при зміні частоти, температури і товщини НП.

Результати й обговорення

Розрахунки виконувались для наносистеми E-ММА/PbI₂/E-ММА, параметри якої та методика обчислення енергії екситонного переходу $E_{ex}^{(0)}$ наведені у роботі [31]. Використовуючи виміряне у [19] при температурі 2 К значення оптичної густини ультратонких мікрочастінок дийодиду свинцю товщиною у 7 шарових пакетів PbI₂ (товщина пакету 6,979 Å), рівне 0,387, знаходимо, що коефіцієнт поглинання у максимумі становить величину $\alpha=1,84 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$, а відповідне значення коефіцієнта пропускання – $\tau=0,41$. Обчислене на прикладі НП товщиною у 7 шарів 2H-PbI₂ при врахуванні взаємодії виключно з обмеженими фононами відповідне значення функції форми смуги поглинання $S_{max}=0,3536$. За цими даними визначено коефіцієнт пропорційності між α і S , що дало змогу здійснити подальші обчислення спектральної залежності коефіцієнта

поглинання за різних інтенсивностях освітлення та температур.

Результати розрахунків наведені у табл. 1 і на рис. 1, де, подібно до [26], використано безрозмірні одиниці вимірювання частоти енергетичних величин, нормованих на ширину (L) екситонної зони у 2H-PbI₂, наприклад, $w=\hbar(\omega - \omega_0)/L$.

Видно, що збільшення товщини НП приводить до:

- довгохвильового зсуву частотного інтервалу реалізації ОБ $\Delta\omega=\omega_2-\omega_1$ і збільшення його розмірів;
- розширення температурного інтервалу реалізації ОБ $\Delta T=T_2 - T_1$.

Збільшення температури НП товщиною у 10 шарів 2H-PbI₂ приводить до зменшення реперної частоти w_s спостереження ОБ і збільшення розмірів петлі гістерезису (рис. 1).

Указані факти пояснюються тим, що збільшення як товщини НП, так і її температури підсилює екситон-фононну взаємодію з обмеженими фононами.

Таблиця 1. Межі частотного (при $T=40$ К) і температурного (при $w=w_s$) інтервалів реалізації ОБ у НП товщиною в N шарів 2H-PbI₂

N	w_1	w_2	w_s	$T_1, \text{ К}$	$T_2, \text{ К}$
5	-0,013952	-0,013774	-0,013815	32	114
7	-0,018160	-0,017908	-0,018034	33	117
10	-0,027696	-0,027276	-0,027485	35	120

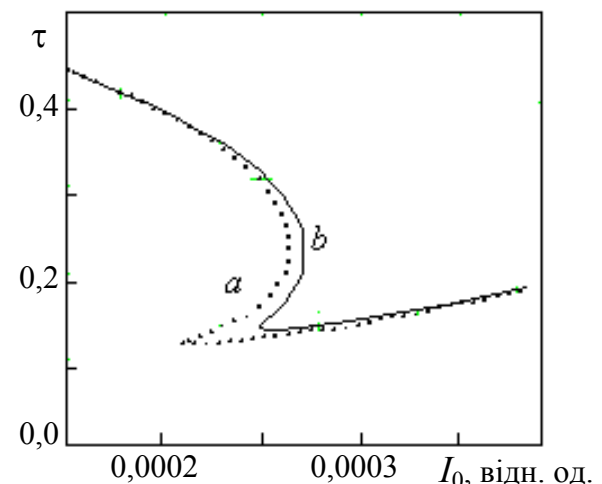


Рис. 1. Залежності пропускання τ НП товщиною $N = 10$ від інтенсивності освітлення I_0 , розраховані при значеннях реперної частоти $w_s=-0,027432$ і температури: $T=100$ К (а) і $T=50$ К (б).

Висновки

Отримані результати числових розрахунків, виконаних на прикладі НП дийодиду свинцю, уміщеного в полімер Е-ММА показують, що збільшення її товщини приводить до довгохвильового зсуву частотного інтервалу реалізації бістабільності, зростання розмірів петлі гістерезису і розширення температурного інтервалу реалізації ОБ.

На відміну від масивних напівпровідників, умови для експериментального спостереження внутрішньої ОБ у НП краді. По-перше, залежність положення максимуму екситонної смуги та розмірів частотного інтервалу можливої реалізації ОБ від товщини НП дає змогу узгодження частот цього інтервалу і джерела збудження. По-друге, внаслідок суттєвого збільшення енергії зв'язку екситону в НП порівняно з масивним напівпровідником, зменшується ймовірність руйнування бістабільного стану внаслідок термічної дисоціації екситонів.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Оптика наноструктур. Под. ред. А.В. Федорова. – СПб.: Недра, 2005.
2. *Manfra M.J.* Molecular Beam Epitaxy of Ultra-High Quality AlGaAs/GaAs Heterostructures: Enabling Physics in Low-Dimensional Electronic Systems // arXiv: Cond. Mater. 1309.2717 (2013).
3. *Круківський С., Коман Б., Струхляк Н.* Гетерофотоелементи *p*-AlGaAs/*n*-GaAs підвищеної ефективності з шаром GaAs, комплексно легованим Al та Yb // Вісник Львів. ун-ту: Серія фізична. – 2005. – **38**. – С.276.
4. *Sarkr T., Mazumder S.K.* Epitaxial design of a direct optically controlled GaAs/AlGaAs-based heterostructure lateral superjunction power device for fast repetitive switching // IEEE Transition Electron Devices. – 2007. – **54**(3). – P.589.
5. *Shchukin V., Ledentsov N.N., Bimberg D.* Epitaxy of Nanostructures – Berlin: Springer, 2004.
6. *Krysa A.B., Roberts J.S., Green R.P., Wilson L.R., Page H., Garcia M., Cockburn J.W.* MOVPE-grown quantum cascade lasers operating at $\sim 9 \mu\text{m}$ wavelength // J. Crystal Growth. – 2004. – **272**(1-4). P. 682.
7. *Weerasekara A., Matsik S., Rinzan M., Perera A.G., Buchanan M., Liu H.C., Winkel G., Stintz A., Krishna S.* *n*-type GaAs/AlGaAs heterostructure detector with a 3.2 THz threshold frequency // Optics Letters. – 2007. – **32**(10). – P.1335
8. *Засавицький І.І., Пашикеєв Д.А., Мармалюк А.А., Рябоштан Ю.Л., Мікаелян Г.Т.* Квантовий каскадний лазер ($\lambda \sim 8 \text{ мкм}$), получаемый методом МОС-гидридной эпитаксии // Квантовая электроника. – 2010. – **40**(2). – С. 95.
9. *Mitzi D.B., Chondroudis K., Kagan C.R.* Organic-inorganic electronics. // IBM J. Res.&Develop. – 2001. – **45**(1). – P. 29.
10. *Saikumar I., Ahmad Sh., Baumberg J.J., and Praksh G.V.* Fabrication of excitonic luminescent inorganic-organic hybrid nano- and microcrystals // Scripta Materialia. – 2012. – **67**. – P. 834.
11. *Ковалюк З.Д., Политанская О.А., Сидор О.Н., Маслюк В.Т.* Электрические и фотоэлектрические характеристики структур на основе слоистых полупроводников InSe и GaAs при облучении электронами с энергией 12,5 MeV // ФТП. – 2008. – **42**(11). – С.1321.
12. *Veissid N., An C.Y., Ferreira da Silva A., Pinto de Souza J.I.* Gap energy studied by optical transmittance in lead iodide monocrystals grown by Bridgman's method // Materials Research. – 1999. – **2**(4). – P.279.
13. *Новосад С.С., Новосад И.С., Матвишин И.М.* Люминесценция и фоточувствительность кристаллов PbI₂ // Неорг. Материалы. – 2002. – **38**(10). – С.1253.
14. *Ahuja R., Arwin H., Ferrera da Silva A. et al.* Electronic and optical properties of lead iodide // J. Appl. Phys. – 2002. – **92**(12). – P.7219.
15. *Kapustyanyk V.B., Pasternak R.M., Kalush A.Z. et al.* Exciton spectra of layered PbI₂ and PbI₂:Zr crystals // J. Appl. Spectr. – 2007. – **74**(2). – P.252.
16. *Matuchova M., Zdansky K., Zavadil J.* Lead iodide crystals prepared under stoichiometric and nonstoichiometric conditions // Mater. Sci.&Engin. B. – 2009. – **165**(1-2). – P.60.
17. *Акопян И.Х., Волкова О.Н., Новиков Б.В., Вензель Б.И.* Размерные эффекты в оптических спектрах микрокристаллов PbI₂ и HgI₂ // ФТТ. – 1997. – **39**(3). – С. 468.
18. *Аблицова А.С., Агекян В.Ф., Серов А.Ю.* Оптические спектры микрокристаллов слоистого полупроводника PbI₂, выращенных в стеклянних матрицах // ФТП. – 1998. – **32**(2). – С.151.
19. *Yamamoto A., Nakahara H., Yano S., Goto T., and Kasuya A.* Exciton dynamics in PbI₂ ultra-thin microcrystallites // Phys. stat. sol. (b). – 2001. – **224**(1). – P.301.
20. *Savchuk A.I., Fediv V.I., Kandyba Ye.O., Savchuk T.A., Stolyarchuk I.D., Nikitin P.I.* Platelet-sharped nanoparticles of PbI₂ and PbMnI₂ embedded in polymer matrix // Mater. Sci.&Engin. C. – 2002. – **19**(1-2). – P.59.
21. *Preda N., Mihut L., Baltog I., Velula T., Teodorescu V.* Optical properties of low-dimensional PbI₂ particles embedded in polyacrylamide matrix // J. Optoelectron. & Adv. Materials. – 2006. – **8**(3). – P.909.
22. *Preda N., Mihut L., M. Baibarac, Baltog I.* Raman and photoluminescence studies on low-dimensional PbI₂ particles embedded in polymer matrix // J. Optoelectron.&Adv. Materials. – 2007. – **9**(5). – P. 1358.
23. *Nitsovich B.M., Krehivskii O.V., Pestryakov G.M.* Ex-

- citon-phonon mechanism of optical bistability // *Phys. Stat. Sol. (b)*. – 1988. – **150**(2). – P. 561.
24. Бродин М.С., Блонский И.В., Блажков В.С. и др. Оптическая бистабильность в области экситонного поглощения кристаллов HgJ_2 // *УФЖ*. – 1989. – **34**(2). – С. 178.
25. Гиббс Х. *Оптическая бистабильность. Управление светом при помощи света*: Пер. с англ. – М.: Мир, 1988.
26. Зенкова К.Ю., Крамар В.М., Крамар Н.К., Деревянчук А.В. Оптическая бистабильность слоистого полупроводника в области экситонного поглощения // *Оптика и спектроскопия*. – 2006. – **101**(5). – С. 778.
27. Зенкова К.Ю., Деревянчук А.В., Крамар В.М., Крамар Н.К. Магнитооптическая бистабильность слоистого полупроводника в области экситонного поглощения // *Оптика и спектроскопия*. – 2008. – **104**(2). – С. 260.
28. Kramar V.M., Pugantseva O.V., Derevyanchuk A.V. Spatial confinement, self-polarization and exciton-phonon interaction effect on the location of exciton line in lead iodide nanofilms // *Low Temp. Phys.* – 2014. – **40**(8). – P.981.
29. Derevyanchuk A.V., Pugantseva O.V., Kramar V.M. Temperature changes in the function of shape inherent to the band of exciton absorption in nano-film of layer semiconductor // *Semicond. Phys. Quant. Electron. & Optoelectronics*. – 2014. – **17**(2). – P.188.
30. Давыдов А.С. *Теория твердого тела*. – М.: Наука, 1976.
31. Пуганцева О.В., Крамар В.М. Перенормування енергії екситонного збудження в наноплівці дийодиду свинцю внаслідок ефектів самополяризації та електрон-фононної взаємодії // *Журнал нанотехнологічної фізики*. – 2013. – **5**(3). – С.03036.