

ВЛИЯНИЕ СПИНОВОЙ РЕЛАКСАЦИИ НА ПОЛЯРИЗАЦИЮ ЭКСИТОННОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ В НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ СИСТЕМАХ

Л.Е.Голуб, А.А.Киселев

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН

194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 30 января 1997 г.

После переработки 12 марта 1997 г.

Рассмотрена кинетика локализованных экситонов в системах с беспорядком. Данная задача с учетом тонкой структуры экситонного состояния и процессов спиновой релаксации. Рассчитана функция распределения экситонов, формируемая в результате конкуренции излучательной и безызлучательной рекомбинации, спиновой релаксации и межцентровых переходов с экспоненциально широким разбросом времени.

PACS: 73.20.Dx, 78.30.Ly, 78.55.-m, 78.66.-w

Низкотемпературная люминесценция в структурах с квантовыми ямами обусловлена излучательной рекомбинацией экситонов, локализованных на неоднородностях гетероинтерфейсов или флуктуациях состава. Таким образом, наличие беспорядка в системе прямо отражается, например, на неоднородной ширине линии экситонной люминесценции и ее стоксовом сдвиге относительно пика экситонного поглощения. В данной работе рассмотрено влияние тонкой структуры экситона и процессов спиновой релаксации на поведение такой системы во внешнем магнитном поле. Рассчитаны спектры фотoluminesценции локализованных экситонов, что открывает дополнительные возможности характеристизации структур с неоднородностями методами поляризованной люминесценции.

Уравнения баланса при прыжковой релаксации. Если приход на все центры локализации одинаков, то в отсутствие энергетической релаксации спектр люминесценции повторяет вид плотности локализованных состояний $g(\epsilon)$ [1,2]. Для удобства здесь и далее в качестве аргумента использована энергия локализации состояния ϵ . При этом тонкая структура состояния для каждого независимого центра локализации может быть учтена, как и для экситонов в идеальной системе (см., например, [3]).

В обратном случае экситонное распределение формируется в результате конкуренции процессов рекомбинации (излучательной и безызлучательной) и процессов спиновой и энергетической релаксации. Энергетическая релаксация ведет к переходам экситона между состояниями (при низкой температуре – с увеличением энергии локализации). Эти процессы в системах с беспорядком характеризуются значительным разбросом времени. Например, темп туннельных межцентровых переходов определяется перекрытием состояний и, следовательно, является быстро спадающей (экспоненциальной) функцией расстояния между центрами [4]. В этом случае из всех локализованных состояний могут быть выделены такие, уход из которых за счет энергетической релаксации не эффективен. Темп ухода в другие состояния определяется локальной конфигурацией центров. Соотношение полного темпа рекомбинации в данном

экзитонном состоянии и темпа ухода в другие состояния позволяет характеризовать его как "рекомбинирующее" или "релаксирующее". Плотность рекомбинирующих состояний $g^*(\epsilon)$ должна быть рассчитана в рамках конкретной модели.

В качестве модельной системы хвоста локализованных состояний рассмотрим совокупность случайнным образом расположенных в пространстве центров локализации. Для простоты мы ограничимся рассмотрением энергетической релаксации в приближении прыжков на ближайшего соседа [4, 5], в котором экзитонные состояния могут быть классифицированы по энергии локализации ϵ и расстоянию до ближайшего доступного центра r . Пренебрегая, в соответствии с выбранным приближением, зависимостью темпа межцентровых переходов от энергии локализации начального и конечного состояний, получим, что

$$g^*(\epsilon) = g(\epsilon) \exp[-\rho(\epsilon)V], \quad \rho(\epsilon) = \int_{\epsilon}^{\infty} d\epsilon' g(\epsilon'). \quad (1)$$

Здесь $\rho(\epsilon)$ – концентрация центров локализации с энергией $\epsilon' > \epsilon$, через V обозначен объем области, отсутствие ближайшего соседа в которой определяет состояние как рекомбинирующее. Для изотропных двумерных систем, например, $V(r) = \pi r^2$ – площадь круга радиуса r .

С учетом спина электрона $s = \pm 1/2$ и момента тяжелой дырки $j = \pm 3/2$ нижнее экзитонное состояние $e1 - hh1(1s)$ является четырехкратно вырожденным. Далее экзитонные состояния с проекцией углового момента на ось роста структуры $s + j = +2, +1, -1, -2$ последовательно пронумерованы индексом $m = 1, 2, 3, 4$.

Полагая скорость дырочной спиновой релаксации выше электронной (см., например, [6]), ограничимся учетом только переворотов спина дырок. Таким образом, процессами спиновой релаксации оказываются связанными подуровни 1 и 3, 2 и 4 экзитонного квартета. В зависимости от типа полупроводников, составляющих гетероструктуру, g -фактор электрона и дырки в экзитоне может быть как положительным, так и отрицательным [7]. Для определенности мы выбираем $|g_e| < g_h$ (случай, типичный для структур GaAs/AlGaAs). В магнитном поле, таком что $\Delta_h \equiv \mu_B g_h B > k_B T$, это приводит к термализации дырок на нижнем зеемановском подуровне. При этом существенными в задаче процессами переворота спина оказываются лишь переходы $1 \rightarrow 3$ и $2 \rightarrow 4$.

Плотность рекомбинирующих локализованных состояний $g_m^*(\epsilon)$ связана с размерами области $V_m \equiv V(r_m)$ соотношением (1), где r_1, \dots, r_4 определяются темпами ухода с подуровней квартета:

$$\omega_h(r_1) = \omega_n + \omega_s, \quad \omega_h(r_2) = \omega_r + \omega_n + \omega_s, \quad \omega_h(r_3) = \omega_r + \omega_n, \quad \omega_h(r_4) = \omega_n. \quad (2)$$

Здесь $\omega_r(\omega_n)$ – темп излучательной (безызлучательной) рекомбинации экзитона, $\omega_h(r)$ определяет темп межцентровых переходов. Заметим, что темп спиновой релаксации дырок ω_s включен в полный темп рекомбинации в состояниях квартета, поскольку при перевороте спина дырки экзитон уходит с соответствующего подуровня. Итак, для разных подуровней квартета плотность рекомбинирующих состояний $g_m^*(\epsilon)$ различна.

Без учета процессов спиновой релаксации в стационарном режиме в случае малых интенсивностей накачки может быть получена совокупность интегральных уравнений для среднего прихода $\Gamma_m(\epsilon)$ на экзитонный подуровень m

состояния с энергией локализации ϵ :

$$\Gamma_m(\epsilon) = \Gamma_m^{(0)}(\epsilon) + \int_0^\epsilon d\epsilon' \frac{g(\epsilon') - g_m^*(\epsilon')}{\rho(\epsilon')} \Gamma_m(\epsilon'). \quad (3)$$

Через $\Gamma_m^{(0)}(\epsilon)$ обозначен приход за счет локализации свободных экситонов или непосредственной резонансной генерации локализованных экситонов. Для подуровней 3 и 4 с учетом спиновой релаксации дырок необходимо также учесть приход с подуровней 1 и 2, соответственно. Для интересующего нас далее прихода $1 \rightarrow 3$ наиболее просто это может быть сделано, если $\omega_r > \omega_s$. В этом случае экситон, находящийся в рекомбинирующем состоянии (то есть расстояние до ближайшего соседа $r > r_1$), после переворота спина дырки заведомо оказывается в рекомбинирующем состоянии $r > r_1 > r_3$. Таким образом, дальнейшая энергетическая релаксация такого экситона на подуровне 3 невозможна. Итак, переход $1 \rightarrow 3$ не меняет $\Gamma_3^{(0)}(\epsilon)$, однако следует учесть дополнительный вклад в люминесценцию с экситонного подуровня 3, связанный с переворотом спина дырки в экситоне. Если $\omega_r < \omega_s$, то после переворота спина дырки локализованный экситон может продолжать прыжки по системе центров локализации. Это приводит к "зацеплению" уравнений (3), и полученная замкнутая система интегральных уравнений должна решаться численными методами.

Поляризованная люминесценция в магнитном поле. Считая возбуждение нерезонансным, пренебрежем различием темпов захвата экситонов в состояния с разными энергиями локализации. При этом $\Gamma_m^{(0)}$ не зависят от ϵ , и интенсивности люминесценции оптически активного дублета $m = 2, 3$ равны соответственно:

$$I_2(\epsilon) = \frac{\omega_r}{\omega_n + \omega_r + \omega_s} \mathcal{F}_2(\epsilon), \quad (4)$$

$$I_3(\epsilon) = \frac{\omega_r}{\omega_n + \omega_r} \left[\mathcal{F}_3(\epsilon) + \frac{\omega_s}{\omega_n + \omega_s} \mathcal{F}_1(\epsilon) \right],$$

где

$$\mathcal{F}_m(\epsilon) \equiv g_m^*(\epsilon) \Gamma_m(\epsilon) = \rho(0) \Gamma_m^{(0)} \frac{g(\epsilon)}{\rho(\epsilon)} \exp\{-\rho(\epsilon)V_m + \text{Ei}[-\rho(\epsilon)V_m] - \text{Ei}[-\rho(0)V_m]\},$$

а $\text{Ei}(x)$ – интегральная показательная функция. Второе слагаемое в $I_s(\epsilon)$ учитывает обсуждавшийся выше вклад в люминесценцию экситонов, попадающих на подуровень 3 при перевороте спина дырки.

С учетом зеемановского расщепления состояний радиационного дублета $\Delta \equiv \mu_B(g_h - h_e)B$ степень циркулярной поляризации люминесценции есть

$$P(\epsilon) = \frac{I_2(\epsilon + \Delta/2) - I_3(\epsilon - \Delta/2)}{I_2(\epsilon + \Delta/2) + I_3(\epsilon - \Delta/2)}. \quad (5)$$

В умеренно сильных магнитных полях, таких что расщепление Δ много меньше характерных энергий локализации, при низком темпе спиновой релаксации ($\omega_s \ll \omega_n$) и одинаковом темпе прихода на все подуровни ($\Gamma_m^{(0)} = \Gamma^{(0)}$) выражение для $P(\epsilon)$ можно разложить в ряд по степеням Δ и ω_s :

$$P(\epsilon) = P_\Delta(\epsilon)\Delta + P_s(\epsilon)\omega_s,$$

$$P_{\Delta}(\epsilon) = \frac{g(\epsilon)}{2\rho(\epsilon)} [\rho(\epsilon)V_3 - e^{-\rho(\epsilon)V_3}] + \frac{1}{2} \frac{d}{d\epsilon} \ln \left[\frac{g(\epsilon)}{\rho(\epsilon)} \right], \quad (6)$$

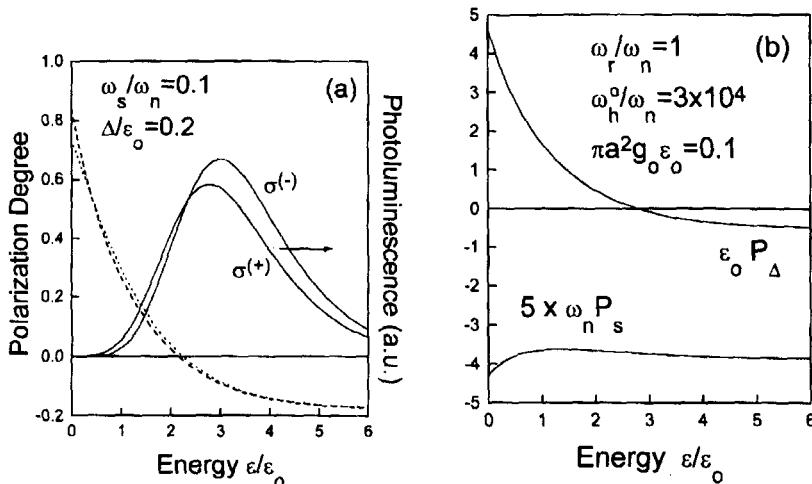
$$P_s(\epsilon) = -\frac{1}{2(\omega_r + \omega_n)} - \frac{S_3}{2V_3} [\rho(\epsilon)V_3 - e^{-\rho(\epsilon)V_3} + e^{-\rho(0)V_3}] \left[\frac{d\omega_h}{dr} \right]_{r=r_s}^{-1} - \frac{1}{2\omega_n} \frac{\mathcal{F}(\epsilon)}{\mathcal{F}_3(\epsilon)},$$

где $S_3 = (dV/dr)_{r=r_s}$. Подчеркнем, что здесь получены универсальные соотношения, справедливые при произвольных зависимостях $g(\epsilon)$, $\omega_h(r)$.

Обсуждение результатов. На рис. а сплошными линиями представлены спектры люминесценции в $\sigma^{(\pm)}$ поляризации, рассчитанные в рамках изложенной модели по формулам (4) при экспоненциальной зависимости плотности экситонных состояний от энергии локализации и туннельном механизме межцентровых переходов:

$$g(\epsilon) = g_0 e^{-\epsilon/\epsilon_0}, \quad \omega_h(r) = \omega_h^0 e^{-r/a}, \quad (7)$$

g_0 задает полную концентрацию локализованных состояний $\rho(0) = g_0\epsilon_0$, а определяется радиусом локализации экситона. Расчет выполнен для двумерной системы при следующем наборе параметров: $\pi a^2 g_0 \epsilon_0 = 0.1$, $\omega_r = \omega_n$, $\omega_s = 0.1\omega_n$, $\omega_h^0 = 3 \cdot 10^4 \omega_n$, $\Delta = 0.2\epsilon_0$.



а) Поляризация люминесценции хвоста локализованных состояний в магнитном поле. Результаты точного и приближенного расчетов циркулярной поляризации представлены штриховой и пунктирной линиями, соответственно. Спектры люминесценции в поляризации $\sigma^{(+)}$ и $\sigma^{(-)}$ показаны сплошными линиями. б) Вклады зеемановского расщепления радиационного дублета (P_{Δ}) и процессов спиновой релаксации (P_s) в степень циркулярной поляризации люминесценции

Контуры люминесценции смещены друг относительно друга вследствие зеемановского расщепления радиационного дублета, интегральный сигнал $\sigma^{(-)}$ поляризации превышает сигнал $\sigma^{(+)}$ из-за спиновой релаксации дырок. Поляризация люминесценции локализованных экситонов изображена на рисунке штриховой линией. Результаты расчета по приближенной формуле (6) показаны пунктиром. Для выбранного набора параметров расхождение результатов точного и приближенного расчетов наблюдается лишь вблизи порога подвижности, где степень циркулярной поляризации достигает больших величин, $P \simeq 1$.

Рисунок демонстрирует соотношение эффектов зеемановского расщепления (P_Δ) и процессов спиновой релаксации (P_s) на степень циркулярной поляризации люминесценции.

Релаксация локализованных экситонов в магнитном поле определяется соотношением трех энергетических масштабов: ϵ_0, Δ_h и $k_B T$ и требует отдельного рассмотрения различных предельных случаев. Так, при температуре $k_B T \ll \epsilon_0$ нет необходимости учитывать прыжки, идущие с уменьшением энергии локализации, или делокализацию экситона. Для типичных значений ϵ_0 порядка нескольких мэВ гелиевые температуры оказываются низкими. Однако только в сильных магнитных полях или в гетеросистемах с большими значениями g -факторов оказывается возможным выполнить также и неравенство $\Delta_h \gg k_B T$. В противном случае нужно учитывать как прямые, так и обратные переходы дырки между зеемановскими подуровнями. Связывая темп обратных (ω_s^*) и прямых (ω_s) переходов феноменологическим соотношением $\omega_s^* = \omega_s e^{-\Delta_h/k_B T}$, получим в пределе малого темпа спиновой релаксации $\omega_s \ll \omega_n$, что

$$P_s(T) = P_s(1 - e^{-\Delta_h/k_B T}).$$

Укажем также возможный дополнительный эффект внешнего магнитного поля. При нерезонансном возбуждении электронно-дырочных пар значительной концентрации вероятность связывания электрона со своей дыркой (близнецовый экситон) пренебрежимо мала. Это значит, что в экситон связываются случайные электроны и дырки, то есть заселяются как радиационные, так и нерадиационные состояния экситонного квартета. Внешнее магнитное поле затрудняет движение носителей и эффективно удерживает их вблизи точки рождения электронно-дырочной пары, что приводит к возрастанию числа близнецовых экситонов и преимущественному заселению радиационного дублета. Представленная теория может быть обобщена на случай селективной генерации экситона на подуровнях квартета.

Заметим, что в [8] при характеризации неупорядоченных твердых растворов замещения GaSeS проводился анализ спектров поляризованной люминесценции в магнитном поле в геометрии Фойхта. Процессы спиновой релаксации не учитывались, а поляризация возникала за счет смешивания магнитным полем состояний экситонного триплета.

Недавно в работе [9] экспериментально исследована поляризованная люминесценция локализованных экситонов в монокристаллах твердого раствора $CdS_{1-x}S_x$ в магнитном поле. Обнаружено спектральное изменение знака циркулярной поляризации на коротковолновом краю полосы излучения. Несовпадение положений нуля поляризации и максимума люминесценции в [9] качественно интерпретируется в терминах термализации экситонов. В данной работе построена последовательная микроскопическая теория, объясняющая это несовпадение. Сопоставление с расчетом в рамках предложенной модели может быть использовано при характеризации образцов, например для определения урбаховских параметров хвоста локализованных состояний, темпов спиновой релаксации и g -факторов электронов и дырок.

Заключение. В работе рассмотрена кинетика экситонов в хвосте локализованных состояний неупорядоченной системы во внешнем магнитном поле в геометрии Фарадея. Исследовано влияние процессов энергетической и спиновой релаксаций на спектры поляризованной люминесценции локализованных экситонов. Для модельной системы в приближении прыжков на ближайшего

соседа аналитически получены спектральные зависимости сигналов люминесценции.

Авторы выражают благодарность Российскому фону фундаментальных исследований (грант 96-02-17849) и Фонду Фольксвагена (Volkswagen Foundation) за поддержку. Работа А.А.К. была также частично поддержана грантом "The Japan - Former Soviet Union Scientists Collaboration Program of Japan Society for the Promotion of Science" (JSPS).

-
1. G.Bastard, C.Delalande, M.H.Meynadier et al., *Phys. Rev. B* **29**, 7042 (1984).
 2. П.С.Кольев, И.Н.Уральцев, Ал.Л.Эфрос и др., *ФТП* **22**, 424 (1988).
 3. *Optical Orientation*, Eds. F.Meier, B.P.Zakharchenya, Amsterdam: North-Holland, 1984 (Перевод: *Оптическая ориентация*, Л.: Наука, 1989).
 4. А.Г.Абдукадыров, С.Д.Барановский, С.Ю.Вербин и др., *ЖЭТФ* **98**, 2056 (1990).
 5. L.E.Goub, E.L.Ivchenko, and A.A.Kiselev, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 1199 (1996).
 6. E.L.Ivchenko and G.E.Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures. Symmetry and Optical Phenomena*, Springer-Verlag, 1995.
 7. А.А.Киселев, Л.В.Моисеев, *ФТТ* **38**, 1574 (1996).
 8. Е.Л.Ивченко, М.И.Караман, Д.К.Нельсон и др., *ФТТ* **36**, 400 (1994).
 9. А.Н.Резницкий, С.Ю.Вербин, С.А.Пермогоров и др., *ФТТ* **37**, 2140 (1995).