

ТОНКАЯ СТРУКТУРА ЭКСИТОННЫХ УРОВНЕЙ В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ

Р.И.Джоев, Б.П.Захарчена, Е.Л.Ивченко, В.Л.Коренев, Ю.Г.Кусраев,
Н.Н.Леденцов, В.М.Устинов, А.Е.Жуков, А.Ф.Цацульников

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе РАН
194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 21 апреля 1997 г.

Представлены результаты экспериментов по изучению тонкой структуры уровней экситонов, локализованных в квантовых точках InAlAs в матрице AlGaAs. В продольном магнитном поле (геометрия Фарадея) обнаружены эффекты преобразования оптической ориентации в выставление и выстраивание в ориентацию, обусловленные обменным расщеплением дипольно-активного экситонного дублета и допускаемые низкой симметрией квантовой точки. Сравнение теории с экспериментом позволяет выяснить характер распределения по направлениям диполей для резонансных оптических переходов в исследованном самоорганизованном ансамбле квантовых точек.

PACS: 71.35.Cc, 78.55.Cr

Энергетические уровни экситонов в полупроводниках даже в случае простых зон вырождены с учетом спиновых состояний электронов и дырок. В частности, основной уровень $e1-hh1(1s)$ экситона с тяжелой дыркой в квантовых ямах с решеткой цинковой обманки четырехкратно вырожден и характеризуется проекцией углового момента $M = s + j = \pm 1, \pm 2$, где спин электрона $s = \pm 1/2$ и угловой момент дырки $j = \pm 3/2$. Обменное взаимодействие расщепляет этот уровень на радиационный дублет $|\pm 1\rangle$ и два близко расположенных и оптически неактивных синглета. При локализации экситона на анизотропном острове или в анизотропной квантовой точке симметрия системы понижается и радиационный дублет должен расщепляться на два подуровня, поляризованных линейно в двух ортогональных направлениях, ориентация которых задается формой локализующего потенциала [1]. При исследовании спектров фотолюминесценции локализованных экситонов в квантовых ямах GaAs/AlGaAs(001) в режиме ближнего поля (optical near-field regime) Гаммон и др. [2] обнаружили обменное расщепление дублета $e1-hh1(1s)$ на две компоненты, поляризованные вдоль осей [110] и [1\bar{1}0]. В сверхрешетках GaAs/AlGaAs(001) типа II аналогичное расщепление, связанное с локализацией экситона на отдельном интерфейсе и низкой симметрией C_{2v} , одиночного интерфейса [3], изучалось методами поляризованной фотолюминесценции [4, 5]. Показано, что наблюдение преобразования "оптическая ориентация – оптическое выстраивание" или "выстраивание – ориентация" в магнитном поле $B \parallel z$, то есть наблюдение линейной (циркулярной) поляризации фотолюминесценции при циркулярно (линейно) поляризованном возбуждении позволяет надежно определять величину расщепления и направления поляризации оптически активных подуровней, не разрешая спектрально тонкой структуры. В настоящей работе исследована тонкая структура локализованных экситонов в самоорганизованной системе квантовых точек InAlAs/AlGaAs.

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии с твердотельным источником As₄ в установке RIBER 32P на полуизолирующих подложках GaAs, ориентированных в плоскости (100). Массив квантовых точек формировался в процессе самоорганизованного роста при температуре 485 °C осаждением In_xAl_{1-x}As с эффективной толщиной 1.6 нм ($x = 0.45$) [6]. Рост остальной части структуры проводился при температуре 700 °C в условиях обогащения мышьяком. Активная область в образце состоит из трех рядов квантовых точек, разделенных слоями Al_{0.3}Ga_{0.7}As толщиной 5 нм. Она ограничена со стороны подложки и поверхности 50-периодными сверхрешетками Al_{0.45}Ga_{0.55}As (2 нм)/GaAs (1 нм), за которыми следуют слои Al_xGa_{1-x}As ($x = 0.45 - 0.6$) и Al_{0.6}Ga_{0.4}As толщиной 0.15 и 0.1 мкм, соответственно. Переход от двумерного однородного к трехмерному неоднородному режиму роста InAlAs контролировался по изменению дифракции быстрых электронов на отражение от поверхности растущей пленки.

Образцы помещались в центр сверхпроводящего соленоида и погружались в криостат с жидким гелием. Гелий откачивался до температуры $T = 2$ К. Осуществлялось как квазирезонансное (Kr⁺-лазер, $\lambda_{ex} = 6764 \text{ \AA}$), так и нерезонансное (He-Ne-лазер, $\lambda_{ex} = 6328 \text{ \AA}$) фотовозбуждение. Возбуждающий свет падал на образец под малым углом к оси роста z , вдоль которой в геометрии "на отражение" регистрировалась интенсивность и анализировалась поляризация люминесценции в геометрии Фарадея. В экспериментах мы применяли модуляционную методику, в которой положение анализатора фиксировано, а образец возбуждается светом с переменным знаком круговой или линейной поляризации на частоте 26.61 кГц фотоупругого модулятора [5]. Измерялись значения эффективной поляризации

$$\rho_{\alpha}^c = \frac{I_{\alpha}^{\sigma+} - I_{\alpha}^{\sigma-}}{I_{\alpha}^{\sigma+} + I_{\alpha}^{\sigma-}}, \quad \rho_{\alpha}^l = \frac{I_{\alpha}^{110} - I_{\alpha}^{1\bar{1}0}}{I_{\alpha}^{110} + I_{\alpha}^{1\bar{1}0}}, \quad \rho_{\alpha}^{l'} = \frac{I_{\alpha}^{100} - I_{\alpha}^{010}}{I_{\alpha}^{100} + I_{\alpha}^{010}}. \quad (1)$$

Здесь символ I_{β}^{α} обозначает интенсивность рекомбинационного излучения в конфигурации (α, β) поляризатора и анализатора, α и β – линейная поляризация вдоль осей [100], [010], [110], [1 $\bar{1}$ 0] или циркулярная поляризация σ_+ , σ_- .

Низкотемпературный спектр фотолюминесценции исследуемой структуры при нерезонанском возбуждении состоит из одной полосы с полушириной $\Delta = 30$ мэВ и максимумом при $E = 1.787$ эВ. При квазирезонанском возбуждении ($\hbar\omega = 1.832$ эВ) в спектре излучения появляются пики, отстоящие от возбуждающей линии на величину энергии оптических фононов GaAs (35 мэВ) и AlAs (48 мэВ), а также слабо выраженная структура. Подобная трансформация спектра фотолюминесценции при резонанском возбуждении наблюдалась в [7, 8] для аналогичной системы квантовых точек. Приведенные ниже экспериментальные данные получены на фононном пике, отстоящем от лазерной линии на 35 мэВ. Похожие результаты получаются и на другой фононной линии, сдвинутой на 48 мэВ от возбуждающей.

На рис.1а приведены зависимости степени циркулярной поляризации от продольного магнитного поля (геометрия Фарадея) при возбуждении циркулярно поляризованным светом. Наблюдается значительный рост поляризации излучения с последующим насыщением. Характерный масштаб изменения степени поляризации определяется энергией расщепления радиационного экситонного дублета и составляет около 2.5 Тл.

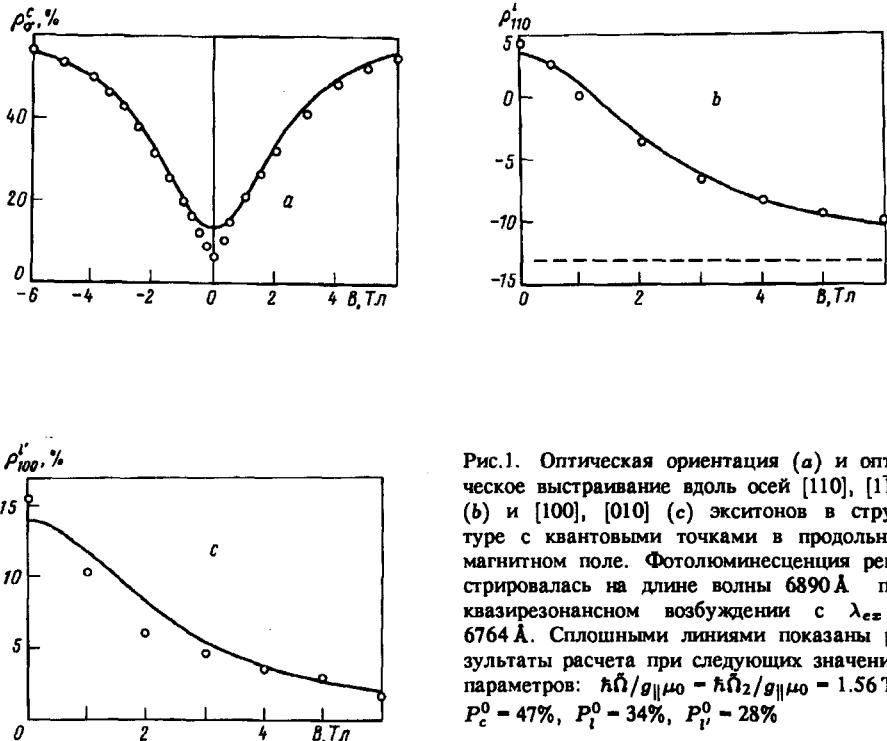


Рис.1. Оптическая ориентация (а) и оптическое выстраивание вдоль осей [110], [1 $\bar{1}$ 0] (б) и [100], [010] (с) экситонов в структуре с квантовыми точками в продольном магнитном поле. Фотолюминесценция регистрировалась на длине волны 6890 Å при квазирезонансном возбуждении с $\lambda_{ex} = 6764 \text{ \AA}$. Сплошными линиями показаны результаты расчета при следующих значениях параметров: $\hbar\Omega/g\mu_0 = \hbar\Omega_2/g\mu_0 = 1.56 \text{ Тл}$, $P_c^0 = 47\%$, $P_l^0 = 34\%$, $P_i^0 = 28\%$

Оптическое выстраивание экситонов наблюдается при возбуждении светом, линейно поляризованным как вдоль оси [110], так и вдоль оси [100] (рис.1б и 1с). В продольном магнитном поле линейная поляризация подавляется в том же характерном диапазоне полей, в котором наблюдается рост циркулярной поляризации (см. рис.1а). Отметим, что эффект подавления выстраивания вдоль [110] определяется разностью значений степени линейной поляризации в нулевом и сильном магнитных полях, поскольку на измеряемую степень эффективной линейной поляризации ρ_{110}' накладывается эффект модуляции интенсивности. Он обусловлен разницей коэффициентов поглощения для света, поляризованного вдоль осей [110] и [1 $\bar{1}$ 0] (эффект линейного дихроизма), составляет 13% и не зависит от поля B . При возбуждении вдоль осей [100], [010] линейный дихроизм отсутствует.

Как указывалось в начале статьи, комбинация анизотропного обменного взаимодействия и эффекта Зеемана в экситоне приводит к взаимосвязи оптической ориентации и выстраивания. Этот эффект продемонстрирован на рис.2а и 2б: в исследуемой структуре с квантовыми точками в продольном магнитном поле ориентация экситонных спинов взаимосвязана с выстраиванием осциллирующих дипольных моментов в системе осей [110], [1 $\bar{1}$ 0]. Следует особо отметить, что при возбуждении циркулярно поляризованным светом в магнитном поле составляющая линейной поляризации в системе осей [100], [010] не возникала, так же как не обнаружен и обратный эффект преобразования линейной поляризации в осях [100], [010] в циркулярную.

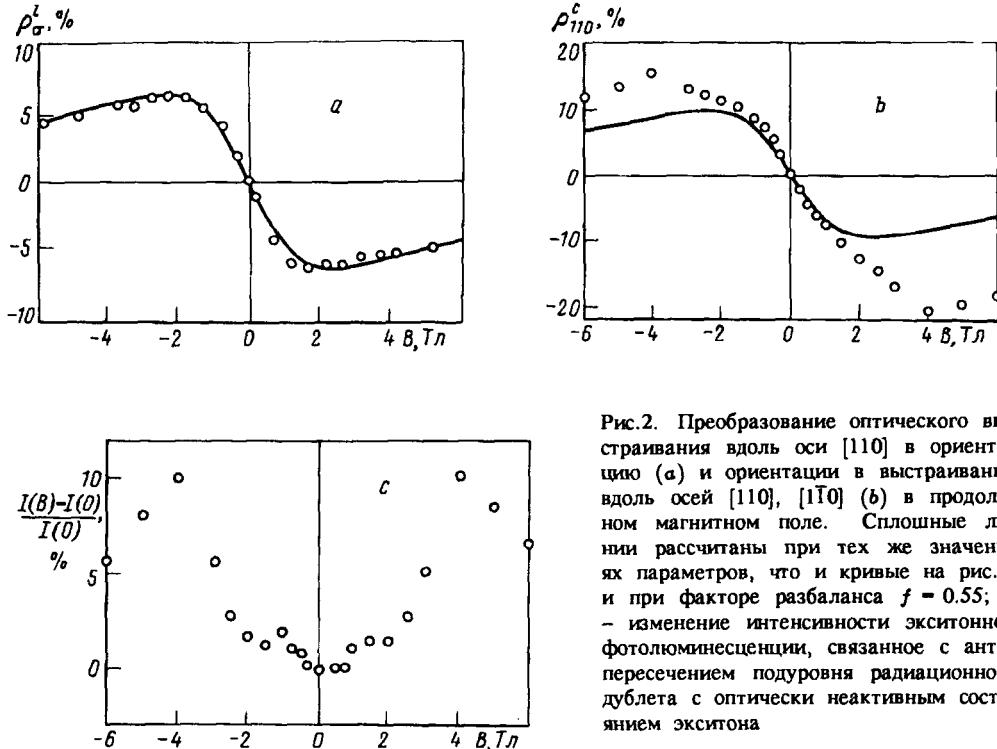


Рис.2. Преобразование оптического выстраивания вдоль оси [110] в ориентацию (а) и ориентации в выстраивание вдоль осей [110], [1̄10] (б) в продольном магнитном поле. Сплошные линии рассчитаны при тех же значениях параметров, что и кривые на рис.1, и при факторе разбаланса $f = 0.55$; с – изменение интенсивности фотолюминесценции, связанное с антипересечением подуровня радиационного дублета с оптически неактивным состоянием экситона

Мы также обнаружили резонансное изменение интенсивности фотолюминесценции в магнитном поле, связанное с антипересечением радиационного и нерадиационного подуровней квартета $e1-hh1(1s)$ (рис.2c). Видно, что антипересечение происходит при $B = 4$ Тл. При этом же значении поля и возбуждении светом фиксированной линейной поляризации $E \parallel [100]$ наблюдается резонансное изменение циркулярной поляризации излучения. Ранее эффект антипересечения экситонных подуровней наблюдался в квантовых точках InAs/GaAs [9].

Для анализа оптической ориентации и выстраивания экситонов удобно рассмотреть дублет $|\pm 1\rangle$ как пару состояний псевдоспина $S = 1/2$. Тогда гаммилтониан, описывающий расщепление дублета в продольном магнитном поле $B \parallel z$, можно записать в виде

$$\mathcal{H} = \hbar(\Omega_1\sigma_1 + \Omega_2\sigma_2 + \Omega_{\parallel}\sigma_3), \quad (2)$$

где $\hbar\Omega_{\parallel} = g_{\parallel}\mu_0B$, g_{\parallel} – продольный g -фактор экситона, μ_0 – магнетон Бора, σ_i – матрицы Паули в осях 1, 2, 3 эффективного пространства, в котором вращается псевдоспин, $\hbar\Omega_1$ и $\hbar\Omega_2$ – параметры обменного расщепления радиационного дублета. При $\Omega_1 = \Omega_{\parallel} = 0$, $\Omega_2 \neq 0$ компоненты дублета поляризованы по осям $x \parallel [1\bar{1}0]$, $y \parallel [110]$, а при $\Omega_2 = \Omega_{\parallel} = 0$, $\Omega \neq 0$ они поляризованы по осям $x' \parallel [100]$, $y' \parallel [010]$, развернутым на 45° относительно осей x , y . Средние значения проекций псевдоспина связаны со степенями поляризации излучаемого света (параметрами Стокса) простыми соотношениями: $P_{\parallel} = 2S_1$,

$P_l = -2S_2$, $P_c = 2S_3$. Аналогичные соотношения связывают поляризацию падающего света и направление псевдоспина S^0 в момент возбуждения, если в процессе возбуждения не происходит частичной потери поляризации. Согласно (2), псевдоспин прецессирует вокруг вектора $\vec{\Omega}(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_{\parallel})$ с частотой $|\vec{\Omega}|$. Если эта частота существенно превышает обратное время жизни экситона τ^{-1} и время спиновой релаксации $\tau_s \gg \tau$, для нахождения среднего вектора псевдоспина S достаточно спроектировать вектор S^0 на направление $\vec{\Omega}$, то есть $S = \vec{\Omega}(S^0)/|\vec{\Omega}|^2$. В результате получаем связь между поляризацией фотолюминесценции и возбуждающего света:

$$P_i = \Lambda_{ij} P_j^0 \quad (i, j = l', l, c), \quad (3)$$

$$||\Lambda_{ij}|| = \frac{1}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2 + \Omega_{\parallel}^2} \begin{bmatrix} \Omega_1^2 & -\Omega_1\Omega_2 & \Omega_1\Omega_{\parallel} \\ -\Omega_1\Omega_2 & \Omega_2^2 & -\Omega_2\Omega_{\parallel} \\ \Omega_1\Omega_{\parallel} & -\Omega_2\Omega_{\parallel} & \Omega_{\parallel}^2 \end{bmatrix}. \quad (4)$$

Заметим, что в пренебрежении эффектами антипересечения уровней и дихроизма поглощения поляризация P_i^a совпадает с величинами ρ_a^i , введенными в (1).

В эксперименте анализируется свет, излучаемый большим числом квантовых точек, и матрицу Λ_{ab} нужно усреднить по распределению значений Ω_1 и Ω_2 , вклад в который вносят флуктуации формы квантовых точек и локальные деформации. Кажущееся противоречие экспериментальных результатов: 1) оптическое выстраивание экситонов при любом направлении линейной поляризации возбуждающего света и 2) конверсия "ориентация – выстраивание" в продольном поле, свидетельствующее о неэквивалентности осей [110] и [1T0], можно удовлетворительно объяснить, предполагая, что положительные и отрицательные значения Ω_1 равновероятны, а среднее значение Ω_2 отлично от нуля. В этом случае после усреднения компоненты Λ_{ij} , нечетные по Ω_1 , сводятся к нулю и матрица (4) принимает вид

$$||\Lambda_{ij}|| = \frac{1}{\tilde{\Omega}_1^2 + \tilde{\Omega}_2^2 + \tilde{\Omega}_{\parallel}^2} \begin{bmatrix} \tilde{\Omega}_1^2 & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{\Omega}_2^2 & -f\tilde{\Omega}_2\Omega_{\parallel} \\ -f\tilde{\Omega}_2\Omega_{\parallel} & 0 & \tilde{\Omega}_{\parallel}^2 \end{bmatrix}. \quad (5)$$

Для приближенного учета случайного разброса Ω_1 и Ω_2 относительно средних значений $\langle \Omega_1 \rangle = 0$, $\langle \Omega_2 \rangle \neq 0$ при переходе от (4) к (5) мы заменили Ω_n^2 на средний квадрат $\langle \Omega_n^2 \rangle \equiv \tilde{\Omega}_n^2$ ($n = 1, 2$) и $\Omega_2\Omega_{\parallel}$ на $f\tilde{\Omega}_2\Omega_{\parallel}$, где $f = \langle \Omega_2 \rangle / \tilde{\Omega}_2$, $|f| < 1$. Результаты расчета по формулам (3), (5) показаны сплошными линиями на рис.1, 2a и 2b. Отличие от единицы значений P_j^0 связано с потерями поляризации при квазирезонансном возбуждении экситонов. Как видно из рис.2b, полностью исключить влияние эффекта антипересечения на поляризацию в эксперименте не удается. Учет этого эффекта в рамках теории [10] требует отдельного рассмотрения.

Таким образом, в отличие от структуры $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ с квантовыми ямами [2] и сверхрешеток GaAs/AlAs типа II [5], положение главных осей анизотропного обменного расщепления для локализованных экситонов в квантовых точках $\text{InAlAs}/\text{AlGaAs}$ не фиксировано вдоль направлений [110] и [1T0] и характеризуется двумя линейно независимыми параметрами Ω_1 и Ω_2 . Исследуемые квантовые точки имеют форму пирамиды (возможно, усеченной),

высота которой параллельна оси $z \parallel [001]$, а прямоугольное основание ориентировано вдоль осей $[100]$ и $[010]$ [6, 11]. Квантовые точки с квадратным основанием характеризуются точечной симметрией C_{2v} , при которой $\Omega_1 = 0$, $\Omega_2 \neq 0$ и компоненты радиационного дублета поляризованы по осям $[110]$ и $[1\bar{1}0]$. В общем случае прямоугольного основания симметрия понижается до C_2 и величина Ω_1 отлична от нуля. Ясно, что знаки этой величины противоположны для квантовых точек с основаниями, вытянутыми вдоль $[100]$ и вдоль $[010]$. При отсутствии преимущественной ориентации прямоугольных оснований в плоскости (001) среднее значение $\langle \Omega_1 \rangle = 0$, а среднее от квадрата Ω_1 отлично от нуля.

Работа частично поддержана фондом Volkswagen, грантами Российского фонда фундаментальных исследований 95-02-06038 и 96-02-17824 и INTAS-REPR 95-618.

-
1. S.V.Goupalov, E.L.Ivchenko, and A.V.Kavokin, Proc. Int. Symposium "Nanostructures: Physics and Technology", St. Petersburg, 1996, p.322.
 2. D.Gammon, E.S.Snow, B.V.Shanabrook et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
 3. И.Л.Алейнер, Е.Л.Ивченко, Письма в ЖЭТФ **55**, 662 (1992); E.L.Ivchenko, A.Yu.Kaminski, and U.Rössler, Phys. Rev. B **54**, 5852 (1996).
 4. E.L.Ivchenko, V.P.Kochereshko, A.Yu.Naumov et al., Superlatt. Microstruct. **10**, 497 (1991).
 5. R.I.Dzhioev, H.M.Gibbs, E.L.Ivchenko et al., в печати.
 6. А.Ф.Цацульников, А.Ю.Егоров, А.Е.Жуков и др., ФТП **31**, 109 (1997).
 7. N.N.Ledentsov, M.Grundmann, N.Kirstaedter et al., Proc. 22-nd Int. Conf. Phys. Semicond., Vancouver, Canada, 1994, p.1855; R.Heitz, M.Grundmann, N.N.Ledentsov et al., Appl. Phys. Lett. **68**, 361 (1996).
 8. S.Raymond, S.Fafard, S.Charbonneau et al., Phys. Rev. B **52**, 17238 (1995).
 9. B.Kowalski, P.Omling, M.S.Miller et al., Solid. State Electron **40**, 367 (1996).
 10. Е.Л.Ивченко, А.Ю.Каминский, ФТТ **37**, 1418 (1995).
 11. M.Grundmann, O.Strier, and D.Bimberg, Phys. Rev. B **51**, 11969 (1995).