00

Температурная зависимость оптического спектра экситонного бифононного резонанса

© А.В. Кудинов

ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

e-mail: koudinov@orient.ioffe.ru

Поступила в редакцию 03.05.2024 г.
В окончательной редакции 26.06.2024 г.
Принята к публикации 30.10.2024 г.

Экспериментально исследован оптический спектр резонансного комбинационного рассеяния на одном акустическом и одном оптическом фононе в квантовой яме — спектр экситонного бифононного резонанса. При возбуждении монохроматическим линейно поляризованным светом изучены спектры рассеяния в двух линейных поляризациях в зависимости от температуры. Найдено, что сополяризованный с возбуждающим лучом спектр при нагреве уменьшается по интенсивности равномерно для всех его компонент. В кросс-поляризованном спектре температурный эффект выражен сильнее и неравномерно по компонентам: более чувствительна к нагреву его высокоэнергетическая сторона.

Ключевые слова: комбинационное рассеяние, спектроскопия, экситон.

DOI: 10.61011/OS.2024.12.59795.6525-24

Неупругое рассеяние света на оптических (LO) фононах в кристаллах впервые наблюдалось Мандельштамом и Ландсбергом в 1928 г. [1] Позже они вовлекли в экспериментальные поиски Гросса [2–4], который и обнаружил в 1930 г. тонкую структуру рэлеевской линии, обусловленную рассеянием света на акустических фононах [5,6]. Теоретические предсказания, касающиеся этого рассеяния, ещё ранее опубликовали — в 1922 г. Бриллюэн [7], а в 1926 г. Мандельштам [8], и за эффектом в итоге закрепилось собственное наименование: рассеяние Мандельштама–Бриллюэна (или просто бриллюэновское рассеяние). В то же время рассеяние света на оптических фононах принято относить к более широкому классу явлений, в силу исторических причин именующихся рамановским рассеянием.

Технически трудные эксперименты по неупругому рассеянию света получили новый импульс с появлением мощных лазерных источников монохроматического света. В начале 1970-х годов в кристаллах полупроводников A_2B_6 Пермогоров и Травников обнаружили линии многократного рассеяния света на LO-фононах. Наблюдаемое уширение этих LO-реплик частоты падающего излучения они связывали с добавочным рассеянием на акустических фононах [9,10]. Затем появилось несколько сообщений об обнаружении тонкой структуры LO-повторений, которую авторы так или иначе связывали с комбинированными процессами с участием одного оптического и строго одного акустического фононов [11–13]. По условиям возбуждения спектров и наблюдению явно выраженной дисперсии акустических сателлитов было постепенно достигнуто понимание, что механизм рассеяния обусловлен поляритонами [14].

В недавней статье [15] оптический спектр с разрешенными центральной LO-репликой и ее четырьмя акустическими сателлитами впервые был обнаружен для квантовой ямы. Очевидно, здесь невозможен упомянутый выше механизм, так как отсутствуют поляритонные состояния, ориентированные вдоль оси роста структуры. С другой стороны, и резонансное поведение отличается от случая объемных кристаллов: резонанс узкий, в пределах экситонного контура, а стоксов сдвиг всех компонент оптического спектра фиксированный. В работе [15] показано, что в квантовой яме оптический спектр рассеяния формируется процессом с тремя резонансными знаменателями с вовлечением $2s$-экситонного состояния. Этот процесс, приводящий к узким акустическим сателлитам LO$\pm$LA, LO$\pm$TA центрального пика рассеяния, будем для краткости называть экситонным бифононным резонансом (ЭБР).

В настоящей работе продолжено экспериментальное изучение свойств оптического спектра ЭБР. Впервые изучено с поляризационным разрешением поведение линий ЭБР в диапазоне от гелиевых до азотных температур. Найдено, что в скрещенной поляризации с ростом температуры коротковолновые акустические сателлиты ослабевают и перестают быть видны.

Образец для исследования содержал изолированную квантовую яму (001)-CdTe, селективно легированную рением. Описание образца и методики см. в [15]. Образец помещался на хладопроводе прокачного гелиевого криостата. Возбуждение перестраиваемым лазером и регистрация рассеяния осуществлялись через микрообъектив. Спектральное разрешение, определенное по наблюдаемой полуширине линии рэлеевского рассеяния вдали от резонансов, составляло менее чем 30 μeV.

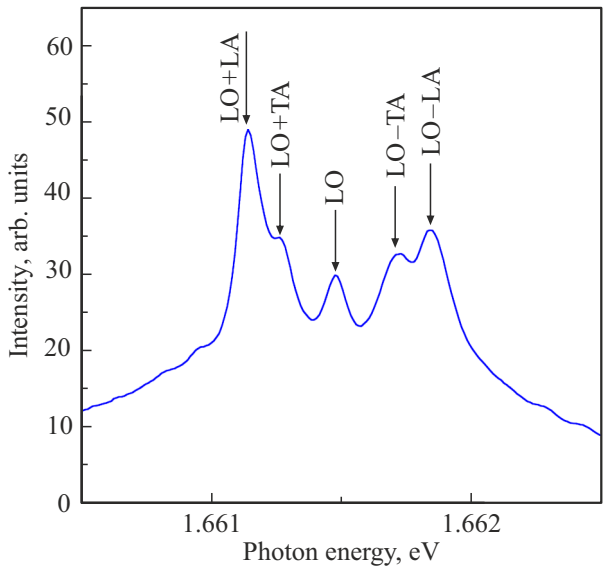


Рис. 1. Оптический спектр ЭБР в районе максимума линии основного состояния ($1s\,1e1hh$) экситона в квантовой яме. $T = 8$ K. Приведена интерпретация линий ЭБР по [15]. Возбуждение — на 20.88 meV выше линии, помеченной LO.

Отметим, что проводившееся нами ранее исследование различных видов спин-флип комбинационного рассеяния в квантовых ямах на основе CdTe [16,17] показало, что в спектрах высокого разрешения содержится информация, недоступная при обычно достигаемых в эксперименте значениях спектрального разрешения [18,19].

На рис. 1 представлен спектр вторичного свечения квантовой ямы (001)-CdTe/(Cd,Mg)Te шириной 18 монослоев (около 6 nm) при возбуждении примерно на энергию оптического фонона выше основного экситонного состояния $1s\,1e1hh$. В излучении доминирует спектр ЭБР — пятерка линий шириной около 100 μeV каждая, занимающая в целом интервал около 1 meV. Заметим, что свет фотолюминесценции, который обычно представляет основной оптический отклик квантовой ямы на возбуждение, для показанного спектрального интервала играет второстепенную роль: контур экситонной люминесценции виден как плавно меняющийся фон (интенсивностью около 10 units), так как его ширина ($\sim 3-4$ meV) перекрывает спектральное окно детектора. „Центральная“ линия, помеченная как LO, соответствует рассеянию с испусканием оптического фонона. Четыре ее симметрично расположенных сателлита отвечают рассеянию с испусканием одного оптического и испусканием/поглощением одного акустического фонона (поперечного или продольного). Интересно, что интенсивность в центральной линии меньше, чем в боковых. Причина этого состоит в различии механизмов, формирующих центральную линию и сателлиты ЭБР [15].

На рис. 2 представлены поляризованные спектры ЭБР при нескольких температурах в диапазоне от 15 до 65 K. В целом с ростом температуры имеет место сдвиг основного экситонного состояния $1s$ в сторону меньших энергий как следствие общего температурного сужения запрещенной зоны (закон Варшни). Как тенденцию можно также отметить увеличение вклада люминесценции по сравнению со вкладом ЭБР. Рассматривая отдельно серию сополяризованных спектров, приходим к выводу, что температура влияет на них слабо. Пожалуй, можно констатировать уменьшение вклада центральной линии по сравнению с собственно линиями ЭБР. Гораздо сильнее зависит от температуры кросс-поляризованная часть. Здесь по-разному ведут себя две группы линий. Линии ЭБР LO+LA, LO+TA, лежащие по энергии ниже середины спектра, ослабевают с ростом температуры заметно быстрее, чем эти же линии в сополяризованном спектре: если при 15 K соотношение примерно 2 : 1 в пользу линий сополяризованного спектра, то при 65 K оно уже ближе к 4 : 1. Но более резко меняется поведение пары линий LO−LA, LO−TA, расположенных выше середины спектра ЭБР. Эти линии в кросс-поляризованном спектре уже при 35 K почти пропадают.

Причины сильной температурной зависимости кросс-поляризованного спектра ЭБР, особенно его высокоэнергетической стороны, в настоящее время не ясны. Приходит в голову, что высокоэнергетические линии ЭБР лежат как бы „с антистоксовой стороны“ по акустическим фононам, т. е. в оптическом переходе должно происходить поглощение акустического фонона, так что мог бы сказываться фактор населенностей — увеличение концентрации тепловых фононов. Однако в этом случае логично было бы ожидать с ростом температуры, независимо от поляризации, увеличения вклада высокоэнергетических сателлитов по сравнению с низкоэнергетическими. В эксперименте же наблюдается диаметрально противоположный эффект в кросс-поляризованном спектре и отсутствие сколько-нибудь выраженного эффекта — в сополяризованном. Необходимо дальнейшее развитие теории ЭБР с учетом поляризации.

Таким образом, нами исследовано температурное поведение спектра ЭБР в диапазоне от гелиевых до азотных температур с разрешением по линейной поляризации (при линейно поляризованном возбуждении). Найдено, что сополяризованный с возбуждающим лучом спектр ЭБР при нагреве постепенно уменьшается по интенсивности (не только по абсолютной величине, но даже сравнительно с фотолюминесценцией), притом равномерно для всех линий ЭБР. Однако в кросс-поляризованном спектре температурный эффект выражен сильнее и неравномерно по линиям. Особенно чувствительны к нагреву высокоэнергетические сателлиты LO−LA, LO−TA, которые уже при 35 K едва можно разглядеть в спектре. Для понимания полученных результатов необходимо дальнейшее развитие теории ЭБР.

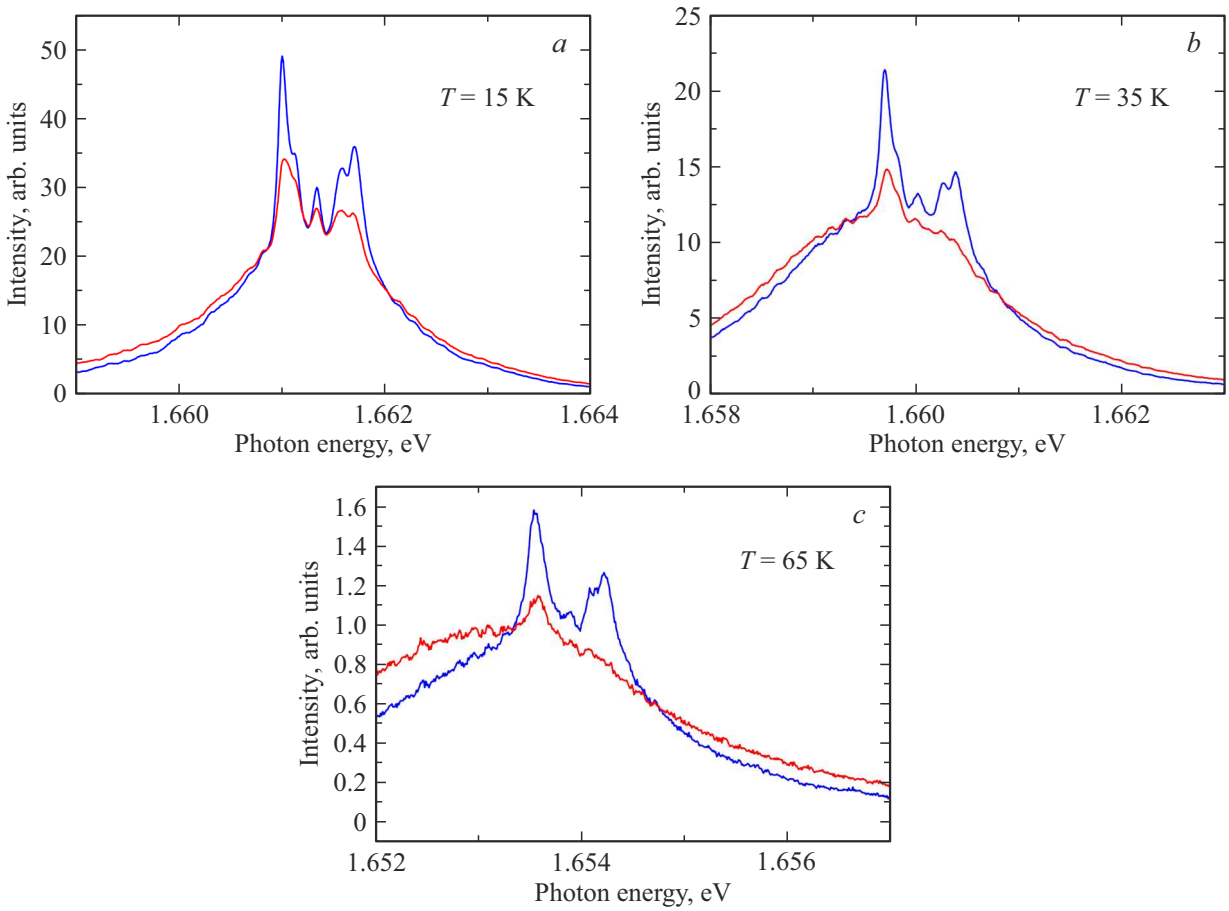


Рис. 2. Температурная эволюция поляризованных спектров ЭБР. Синим показана интенсивность свечения, поляризованного как возбуждение, красным — кросс-поляризованного свечения. Энергия возбуждающих квантов при каждой температуре подобрана так, чтобы спектр ЭБР находился вблизи максимума линии люминесценции.

Конфликт интересов

Автор заявляет об отсутствии у него конфликта интересов.

Список литературы

[1] G.S. Landsberg, L.I. Mandelstam. Naturwiss, **16**, 557 (1928).
[2] И.Л. Фабелинский. УФН, **170**, 93 (2000). DOI: 10.3367/UFNr.0170.200001f.0093
[3] Б.В. Новиков. УФН, **170** 109 (2000). DOI: 10.3367/UFNr.0170.200001g.0109
[4] *Оптика твердого тела и физика ультразвука*. Под ред. Б.В. Новикова (Изд-во С.-Петербургского университета, 1999), С. 198–217.
[5] E. Gross. Z. Phys., **63**, 685 (1930).
[6] E. Gross. Nature (London), **126**, 201 (1930); Ibid. **126**, 400 (1930).
[7] L. Brillouin. Ann. Phys. (Paris), **17**, 88 (1922).
[8] Л.И. Мандельштам. ЖРФХО, **58**, 381 (1926).
[9] С.А. Пермогоров, В.В. Травников. ФТТ, **13**, 709 (1971).
[10] S. Permogorov, V. Travnikov. Phys. Stat. Sol. (b), **78**, 389 (1976).
[11] P.Y. Yu. Solid State Commun., **19**, 1087 (1976).
[12] Y. Oka, M. Cardona. Solid State Commun., **30**, 447 (1979).
[13] E. S. Koteles, G. Winterling. Phys. Rev. B, **20**, 628 (1979).
[14] C. Weisbuch, R.G. Ulbrich. *Light Scattering in Solids III*, ed. by M. Cardona, G. Güntherodt (Springer, Berlin, 1982), P. 207.
[15] A.V. Koudinov, E.V. Borisov, A.A. Shimko, Yu.E. Kitaev, C. Trallero-Giner, T. Wojtowicz, G. Karczewski, S.V. Goupalov. Phys. Rev. B, **105**, L121301 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevB.105.L121301
[16] A.V. Koudinov, Yu.G. Kusrayev, B.P. Zakharchenya, D. Wolverson, J.J. Davies, T. Wojtowicz, G. Karczewski, J. Kossut. Phys. Rev. B, **67**, 115304 (2003). DOI: 10.1103/PhysRevB.67.115304
[17] A.V. Koudinov, Yu.G. Kusrayev, D. Wolverson, L.C. Smith, J.J. Davies, G. Karczewski, T. Wojtowicz. Phys. Rev. B, **79**, 241310(R) (2009). DOI: 10.1103/PhysRevB.79.241310
[18] A.V. Koudinov, A. Knapp, G. Karczewski, J. Geurts. Phys. Rev. B, **96**, 241303(R) (2017). DOI: 10.1103/PhysRevB.96.241303
[19] R.V. Cherbunin, V.M. Litviak, I.I. Ryzhov, A.V. Koudinov, S. Elsässer, A. Knapp, T. Kiessling, J. Geurts, S. Chusnutdinow, T. Wojtowicz, G. Karczewski. Phys. Rev. B, **101**, 241301(R) (2020). DOI: 10.1103/PhysRevB.101.241301