

Фотолюминесценция структур с квантовыми ямами ZnMnTe в магнитном поле

© В.Н. Кац, В.П. Кочерешко*, В.Ф. Агеян**, Л. Besombes***, G. Karczewski****

Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Петергоф, Россия

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

** Научно-исследовательский институт физики им. В.А. Фока Санкт-Петербургского государственного университета,
198504 Санкт-Петербург, Петергоф, Россия

*** Laboratoire de Spectrométrie Physique, Université Joseph Fourier de Grenoble,
France

**** Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,
02-668 Warsaw, Poland

E-mail: catsssssster@gmail.com

(Поступила в Редакцию 21 августа 2007 г.)

Исследованы спектры фотолюминесценции напряженных структур с магнитными квантовыми ямами и немагнитными барьерами $Zn_{1-x}Mn_xTe/Zn_{1-y}Mg_yTe$. Обнаружен необычный характер зеемановского расщепления тяжелого экситона: обе спиновые компоненты сдвигаются вниз по энергии. Наблюдалось обратное распределение интенсивности фотолюминесценции зеемановских компонент тяжелого экситона, когда верхняя по энергии компонента была интенсивнее нижней. Проведен расчет зеемановского расщепления экситона в магнитном поле. Полученные данные позволили уточнить некоторые параметры зонной структуры и магнитных свойств этих структур.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке грантов РФФИ, гранта Президиума РАН и гранта Развития научного потенциала высшей школы Министерства образования РФ.

PACS: 73.25.Fg, 78.66.Hf, 78.67.De

1. Введение

В последнее время активно изучаются оптические свойства полупроводников A_2B_6 , в частности ZnTe, что связано с перспективами изготовления полупроводниковых лазеров, работающих в зеленой области спектра. Несмотря на то что имеется обширная литература по свойствам ZnTe [1], лишь небольшое число статей посвящено исследованию оптических свойств тройных твердых растворов [2], в частности соединений ZnMgTe. Эти соединения являются наиболее перспективными для использования в полупроводниковых гетеролазерах на основе ZnTe. Интересными для приложений объектами являются также гетероструктуры ZnMnTe/ZnMgTe, обладающие специфическими магнитными свойствами. Магнитные свойства таких полупроводников, как ZnMnTe, определяются $sp-d$ -обменным взаимодействием между sp -носителями и d -электронами магнитных ионов Mn. Благодаря выраженным магнитным свойствам в этих структурах путем приложения внешнего магнитного поля удастся в широких пределах изменять строение энергетических зон вплоть до перехода тип I-тип II, что может представлять значительный интерес для спиновой электроники. Однако свойства таких структур изучены слабо, и имеется много неясностей в интерпретации их оптических спектров.

В настоящей работе исследуется излучательная рекомбинация экситонов в квантовых ямах ZnMgTe/

ZnMnTe в магнитных полях с целью уточнения параметров зонной структуры и характеристик излучательной рекомбинации экситонов.

2. Эксперимент и обсуждение

Исследовались периодические структуры с магнитными квантовыми ямами и немагнитными барьерами $Zn_{1-x}Mn_xTe/Zn_{1-y}Mg_yTe$ с концентрацией Mn в ямах 3 и 20% и концентрацией Mg в барьерах 35%. Ширина ям составляла 78 Å, толщина барьеров — 140 Å, число периодов равнялось 100. Структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaAs в направлении [100]. Для того чтобы уменьшить механические напряжения, вызванные рассогласованием решеток, непосредственно на подложке выращивался буферный слой ZnTe толщиной 3 μm и затем второй слой $Zn_{0.65}Mg_{0.35}Te$ толщиной 1.5 μm.

Исследовались спектры циркулярно-поляризованной фотолюминесценции (ФЛ). Люминесценция возбуждалась He–Cd-лазером с длиной волны 442 nm с плотностью мощности 10 W/cm². Спектры измерялись при температуре 4.2 K в магнитных полях до 11 T в геометрии Фарадея (магнитное поле вдоль оси наблюдения).

На рис. 1, *a, b* представлен спектр ФЛ образца с концентрацией Mn 3% в нулевом магнитном поле. В спектре доминируют две линии излучения. Более интенсивная линия на энергии 2.36 eV (рис. 1, *a*) связана

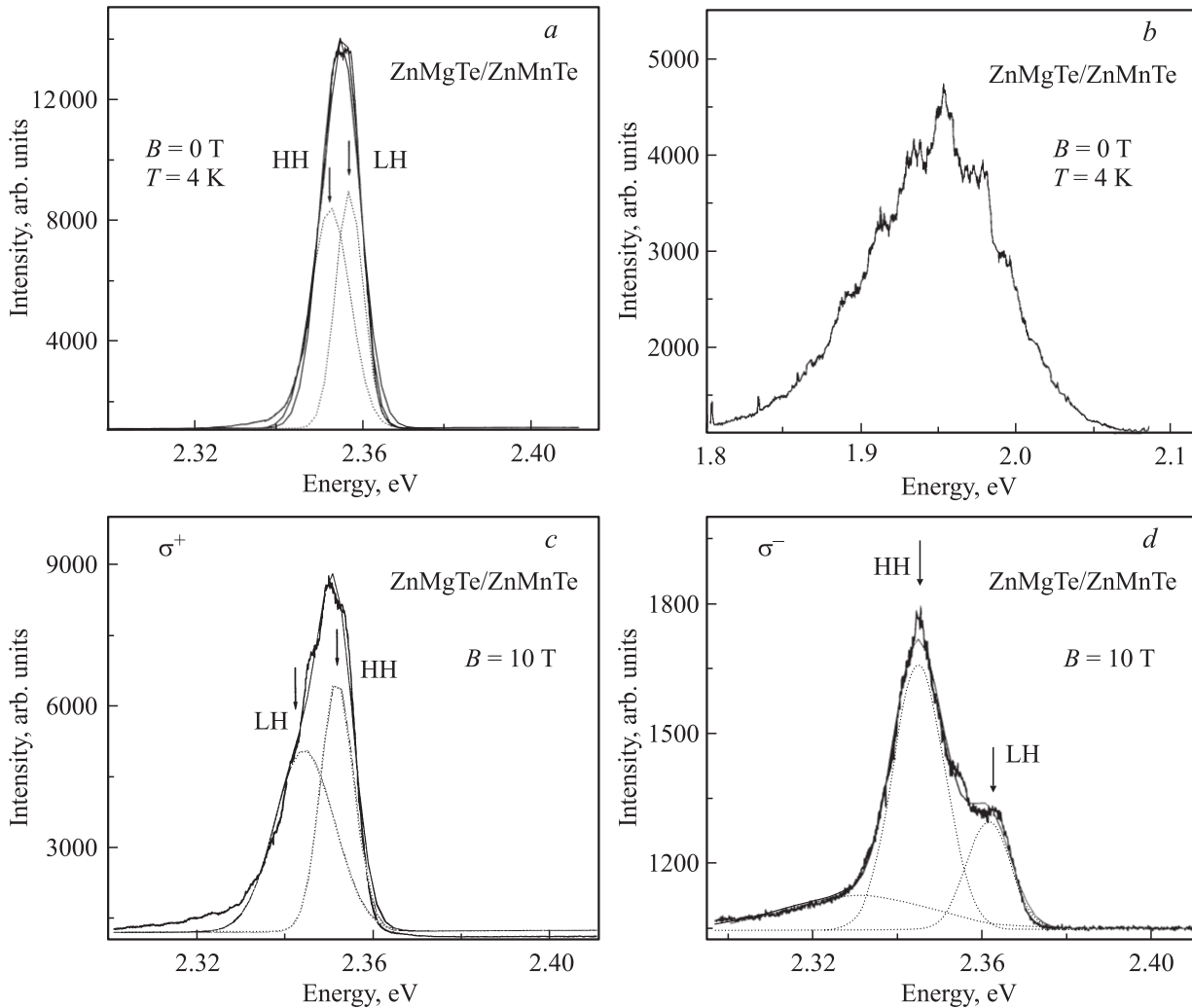


Рис. 1. Спектры ФЛ экситонов (*a*) и внутрицентровых переходов в $3d$ -оболочке марганца (*b*) в нулевом магнитном поле; спектры ФЛ экситонов в магнитном поле 10 Т в поляризации σ^+ (*c*) и σ^- (*d*). НН — положение линии ФЛ тяжелого экситона, ЛН — легкого экситона. Пунктиром показан результат деконволюции спектров на набор гауссовых кривых.

с рекомбинацией экситона в квантовой яме. Полоса с максимумом 1.95 eV (рис. 1, *b*) относится к внутрицентровым переходам в $3d$ -оболочке марганца. Эти переходы подробно рассмотрены в работах [3,4], и в настоящей работе будем рассматривать только экситонную линию излучения, так как именно на ней происходят заметные изменения в магнитном поле. Полоса излучения экситона имеет явно выраженную негауссовскую форму. Эта полоса разлагается на две гауссовы компоненты примерно одинаковой интенсивности и ширины с близкими энергиями: НН и ЛН. Высокоэнергетический пик НН мы связываем с рекомбинацией тяжелого экситона, а низкоэнергетический пик ЛН — с рекомбинацией легкого экситона.

В магнитном поле каждый из этих пиков расщепляется по энергии на две зеемановские компоненты, поляризованные по правому (σ^+) (рис. 1, *c*) и левому (σ^-) (рис. 1, *d*) кругу. С ростом магнитного поля амплитуда линий в обеих поляризациях падает, но при этом растет

их ширина. Суммарная интегральная интенсивность при этом почти сохраняется. Интенсивность обеих линий в поляризации σ^+ заметно превосходит их интенсивность в поляризации σ^- . Каждую из зеемановских компонент люминесценции можно разделить на два гауссовых контура, соответствующих состояниям легкого и тяжелого экситонов, как это показано на рис. 1, *a, c, d*.

В структуре с концентрацией Mn 20% линия излучения экситона была очень широкой из-за флуктуаций состава твердого раствора в яме. В магнитном поле никаких особых изменений спектра, кроме зеемановского расщепления, на этой линии не наблюдалось. Поэтому в настоящей работе будем рассматривать только спектры структур с 3%-ным содержанием Mn, в которых наблюдался ряд необычных явлений.

На рис. 2 представлены зависимости положения максимумов линий НН и ЛН от величины магнитного поля. Обращает на себя внимание то обстоятельство, что знаки зеемановского расщепления этих линий проти-

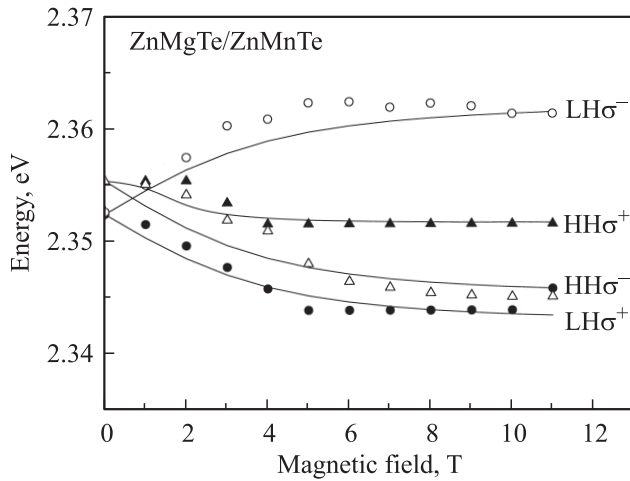


Рис. 2. Расщепление в магнитном поле уровней легкого и тяжелого экситонов. Точки — эксперимент, линии — расчет.

воположны, при этом расщепление линии LH на σ^+ - и σ^- -компоненты симметричное, а расщепление линии HH — сильно асимметричное. Нижняя компонента HH в поляризации σ^- смещается практически так же, как и у LH, а вот положение верхней компоненты HH слабо зависит от магнитного поля.

Противоположные знаки расщепления можно получить для состояний легкого и тяжелого экситона при условии, что зеемановское расщепление для электронов превосходит зеемановское расщепление для дырок. Это связано с тем, что состояние экситона с тяжелой дыркой с моментом ± 1 формируется из дырочных состояний с моментом $\pm 3/2$ и электронных состояний со спином $\mp 1/2 : |\pm 1\rangle = |\pm 3/2, \mp 1/2\rangle$, а состояние экситона с легкой дыркой с моментом ± 1 формируется из дырочных состояний с моментом $\pm 1/2$ и электронных состояний со спином $\pm 1/2 : |\pm 1\rangle = |\pm 1/2, \pm 1/2\rangle$.

В объемном магнитном полупроводнике зеемановское расщепление для валентной зоны ΔV_{\pm}^h и зоны проводимости ΔV_{\pm}^e можно записать как

$$\Delta V_{\pm}^h = \pm \frac{1}{3} \beta N_0 \tilde{x} J \langle S_z \rangle \text{ и } \Delta V_{\pm}^e = \pm \alpha N_0 \tilde{x} I / \langle S_z \rangle, \quad (1)$$

где α и β — обменные константы в зоне проводимости и валентной зоне соответственно, $N_0 = 6.0221 \cdot 10^{23}$ — число Авогадро, \tilde{x} — эффективная концентрация магнитных ионов Mn, $\langle S_z \rangle$ — средняя проекция спина.

В соответствии с величинами обменных констант в объемном полупроводнике ZnMnTe (дырочная обменная константа $\beta N_0 = -1.09 \text{ eV}$, электронная обменная константа $\alpha N_0 = 0.19 \text{ eV}$ [5]) зеемановское расщепление тяжелых дырок в объеме должно превосходить расщепление электронов почти в 5 раз. Однако в квантовой яме это соотношение может быть и иным в зависимости от того, какая доля волновой функции носителей находится в магнитной яме или в немагнитном барьере. Поэтому

энергия зеемановских подуровней для экситона в магнитной яме будет задаваться следующим выражением:

$$E_{\pm} = \pm N_0 \tilde{x} \langle S_z \rangle \left(\frac{1}{3} \beta J \gamma_h^{\pm} + \alpha I \gamma_e^{\pm} \right), \quad (2)$$

где γ_e и γ_h — вероятности обнаружить электрон (дырку) в слое магнитного полупроводника. Знаки „+“ и „-“ соответствуют противоположным направлениям магнитного поля.

Если предположить, что в слое ZnMnTe сосредоточено почти 100% волновой функции электрона и менее 20% волновой функции дырки, то в этом случае зеемановское расщепление тяжелого экситона будет определяться электроном и иметь противоположный знак. Это возможно, если структура будет иметь тип II.

Наши структуры были выращены на подложке GaAs с постоянной решетки 5.6 Å, постоянные решетки материалов ям $\text{Zn}_{0.97}\text{Mn}_{0.03}\text{Te}$ и барьеров $\text{Zn}_{0.65}\text{Mg}_{0.35}\text{Te}$ равны 6.108 и 6.212 Å соответственно. Поскольку постоянные решеток подложки, буферных слоев, квантовых ям и барьеров не совпадают, ямы и барьеры оказываются напряженными. Это напряжение приводит к расщеплению состояний легких и тяжелых дырок в ямах и барьерах.

Изменение глубин ям для легкой и тяжелой дырок можно рассчитать по формулам

$$E_{hh} = 2a_v(S_{11} + 2S_{12})\sigma - b(S_{11} - S_{12})\sigma, \quad (3)$$

$$E_{lh} = 2a_v(S_{11} + 2S_{12})\sigma + b(S_{11} - S_{12})\sigma, \quad (4)$$

$$E_c = 2a_c(S_{11} + 2S_{12})\sigma, \quad (5)$$

где S_{11} и S_{12} — упругие константы [5], a_v и a_c — деформационные потенциалы гидростатического сжатия для валентной зоны и зоны проводимости соответственно, b — деформационный потенциал одноосного сжатия; $\sigma = \varepsilon / (S_{11} + S_{12})$, $\varepsilon = (a_{\text{sub}} - a) / a$, a есть постоянная решетки слоя, подвергаемого деформации, a_{sub} — постоянная решетки предыдущего слоя (величина, от которой отсчитывается изменение a).

Мы провели расчет зонной диаграммы в наших структурах с учетом напряжений. Рассчитанная зонная

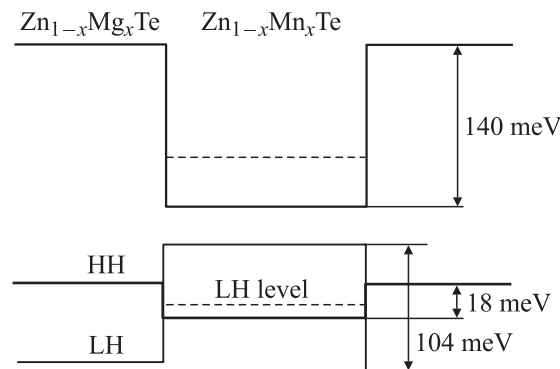


Рис. 3. Схема взаимного расположения уровней размерного квантования легкого и тяжелого экситонов с учетом напряжения, действующего на яму и барьер в нулевом внешнем поле.

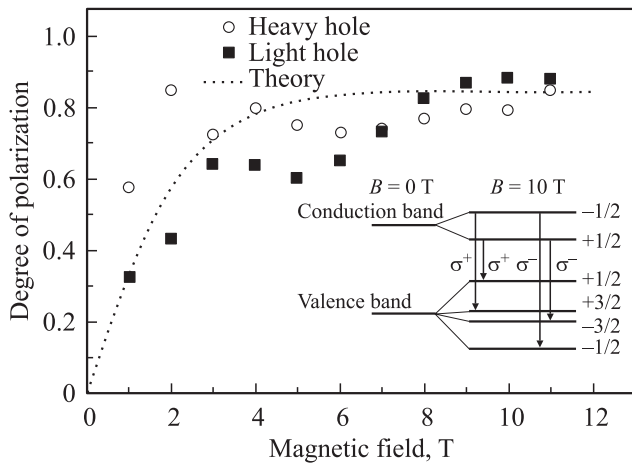


Рис. 4. Зависимость степени поляризации ФЛ легкого и тяжелого экситонов от магнитного поля. На вставке — схема расщепления уровней и оптических переходов в магнитном поле.

диаграмма представлена на рис. 3. Для наилучшего соответствия расчета с экспериментом соотношение разрывов зон в валентной зоне и зоне проводимости было принято 1:4. Эта величина совпадает с результатами работ [6,7] для структур CdTe/CdMnTe. Как видно из рисунка, в результате напряжения яма для легкой дырки становится еще глубже, а вместо ямы для тяжелой дырки появляется небольшой барьер, т.е. для тяжелых дырок происходит переход к структуре зон типа II.

В этом случае вероятность обнаружить тяжелую дырку в магнитной яме может оказаться малой, и тогда зеемановское расщепление экситона будет определяться электроном. Мы провели расчет зеемановского расщепления тяжелого и легкого экситонов, результат расчета представлен сплошными кривыми на рис. 2. Видно хорошее совпадение результатов расчета с экспериментом. Это совпадение подтверждает нашу гипотезу о том, что линии, названные нами LH и HH, соответствуют рекомбинации легкого и тяжелого экситонов.

Мы также построили зависимость степени поляризации ФЛ для линий легкого и тяжелого экситона от магнитного поля. Эта зависимость представлена на рис. 4. Обнаружено, что, несмотря на противоположные знаки зеемановского расщепления, знак поляризации для легкого и тяжелого экситона один и тот же. При этом знак поляризации линии излучения легкого экситона соответствует его зеемановскому расщеплению, а знак поляризации линии тяжелого экситона противоположный. Это указывает на неравновесный характер заселенности состояний тяжелого экситона.

В магнитных гетероструктурах имеет место так называемое „гигантское“ зеемановское расщепление уровней электронов и дырок, когда величина зеемановского расщепления может превосходить величину энергии связи экситона. В этом случае следует рассматривать оптические переходы между состояниями электронов

и дырок, а кулоновское взаимодействие, ответственное за образование экситона, следует считать возмущением, приводящим к небольшому изменению энергии перехода. Следовательно, в этом случае интенсивность излучения будет определяться заселенностью подуровней электронов и дырок, а не подуровней экситона, как в случае немагнитного полупроводника.

На вставке к рис. 4 представлена схема расположения уровней электронов и дырок в магнитном поле, а также оптических переходов между этими уровнями. Из этой схемы видно, что действительно верхняя зеемановская компонента экситона с тяжелой дыркой будет наблюдаться в поляризации σ^+ , а верхняя зеемановская компонента экситона с легкой дыркой — в поляризации σ^- , т.е. расщепления имеют разный знак.

Интенсивность ФЛ определяется заселенностью электронных и дырочных уровней. Естественно ожидать, что заселенность дырочных уровней с моментом $+3/2$ и $+1/2$, имеющих меньшую энергию, окажется выше, чем заселенность уровней с моментом $-3/2$ и $-1/2$. Что касается заселенности электронных уровней, то имеются все основания предполагать, что уровни со спином $+1/2$ и $-1/2$ заселены примерно одинаково. Действительно, разность заселенностей электронных подуровней при наличии безызлучательного канала пропорциональна множителю $\frac{w_s}{w_s + w_{nr}}$, где w_{nr} — вероятность ухода электрона, w_s — вероятность спиновой релаксации электрона. Если $w_{nr} \gg w_s$, то разность заселенностей окажется малой и в этих условиях электроны не успеют поляризоваться по спину за время их жизни.

Это подтверждается результатами работы [4], в которой измерялась кинетика ФЛ в тех же самых образцах и был сделан вывод об эффективном уходе электронов в квантовые ямы на ионы Mn.

Мы провели расчет степени поляризации излучения электронно-дырочных пар в магнитном поле в предположении, что вероятность ухода электронов на Mn много больше вероятности их спиновой релаксации на зеемановских подуровнях. Результаты расчета приведены на рис. 4 сплошной кривой. Видно хорошее согласие с экспериментом, что подтверждает правильность нашей интерпретации спектров.

3. Заключение

В работе исследованы спектры ФЛ структур с квантовыми ямами на основе магнитных полупроводников ZnMnTe ($Zn_{1-x}Mn_xTe/Zn_{1-y}Mg_yTe$) и обнаружено, что обе спиновые компоненты экситона с тяжелой дыркой сдвигаются в сторону низких энергий. Наблюдалась инверсная заселенность состояний тяжелого экситона, когда интенсивность ФЛ верхней зеемановской компоненты экситона была выше, чем интенсивность ФЛ нижней компоненты. Проведен расчет зеемановского расщепления экситона в магнитном поле. Установлено, что: 1) вследствие напряжений исследованная система

имеет структуру зон типа II; 2) соотношение разрывов в валентной зоне и в зоне проводимости составляет 1:4; 3) значения обменных констант для дырок и электронов составляют $\beta N_0 = -1.16$ и $\alpha N_0 = 0.13$ соответственно; 4) экситонная ФЛ имеет ярко выраженный неравновесный характер благодаря быстрому уходу электронов на уровни Mn.

Список литературы

- [1] L. Ward. In: Handbook of optical constants of solids II / Ed. E. Palik. Academic, N.Y. (1991). P. 737.
- [2] H.J. Masterson, J.G. Lunney, J.M.D. Coey. *J. Appl. Phys.* **81**, 799 (1997); T. Asano, K. Funato, F. Nakamura, A. Ishibashi. *J. Cryst. Growth* **156**, 373 (1995); M.J. Seong, H. Alawadhi, I. Miotkowski, A.K. Ramdas, S. Miotkowska. *Solid State Commun.* **112**, 329 (1999).
- [3] V.F. Agekyan, I. Akai, N.G. Filosofov, T. Karasawa, G. Karczewski, A.Yu. Serov, N.N. Vasiliev. *Phys. Stat. Sol. (b)* **244**, 3265 (2007).
- [4] В.Ф. Агекян, I. Akai, Н.Н. Васильев, T. Karasawa, G. Karczewski, А.Ю. Серов, Н.Г. Философов. *ФТТ* **49**, 1117 (2007).
- [5] Landolt-Buornstein. Numerical data and functional relationships in science and technology. Group III. V. 22 / Ed. O. Madelung. Springer-Verlag, Berlin (1987).
- [6] A.V. Kavokin, V.P. Kochereshko, G.R. Posina, I.N. Uraltsev, D.R. Yakovlev, G. Landwehr, R.N. Bicknell-Tassius, A. Waag. *Phys. Rev. B* **46**, 9788 (1992).
- [7] E.L. Ivchenko, A.V. Kavokin, V.P. Kochereshko, G.R. Posina, I.N. Uraltsev, D.R. Yakovlev, R.N. Bicknell-Tassius, A. Waag, G. Landwehr. *Phys. Rev. B* **46**, 7713 (1992).