

Оптическая ориентация и выстраивание экситонов в квантовых точках

© Р.И. Джиоев, Б.П. Захарченя, 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 Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Теоретически и экспериментально исследованы оптическая ориентация и выстраивание экситонов в квантовых точках InAlAs в матрице AlGaAs. В продольном магнитном поле (геометрия Фарадея) обнаружены эффекты преобразования оптической ориентации в выстраивание и выстраивания в ориентацию, обусловленные обменным расщеплением дипольно-активного экситонного дублета и допускаемые низкой симметрией квантовой точки. Сравнение теории с экспериментом, проведенное с учетом анизотропии генерации и рекомбинации экситонов в осях $[1\bar{1}0]$ и $[110]$, позволяет выяснить характер распределения по направлениям диполей для резонансных оптических переходов в исследованном самоорганизованном ансамбле квантовых точек.

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 локализирующего потенциала [1]. При исследовании 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 $\mathbf{B} \parallel z$, т.е. 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 nm ($x = 0.45$) [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 nm. Она ограничена со стороны подложки и поверхности 50-периодными сверхрешетками Al_{0.45}Ga_{0.55}As (2 nm)/GaAs (1 nm), 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 μm, соответственно. Переход от двумерного однородного к трехмерному неоднородному режиму роста InAlAs контролировался по изменению дифракции быстрых электронов на отражение от поверхности растущей пленки.

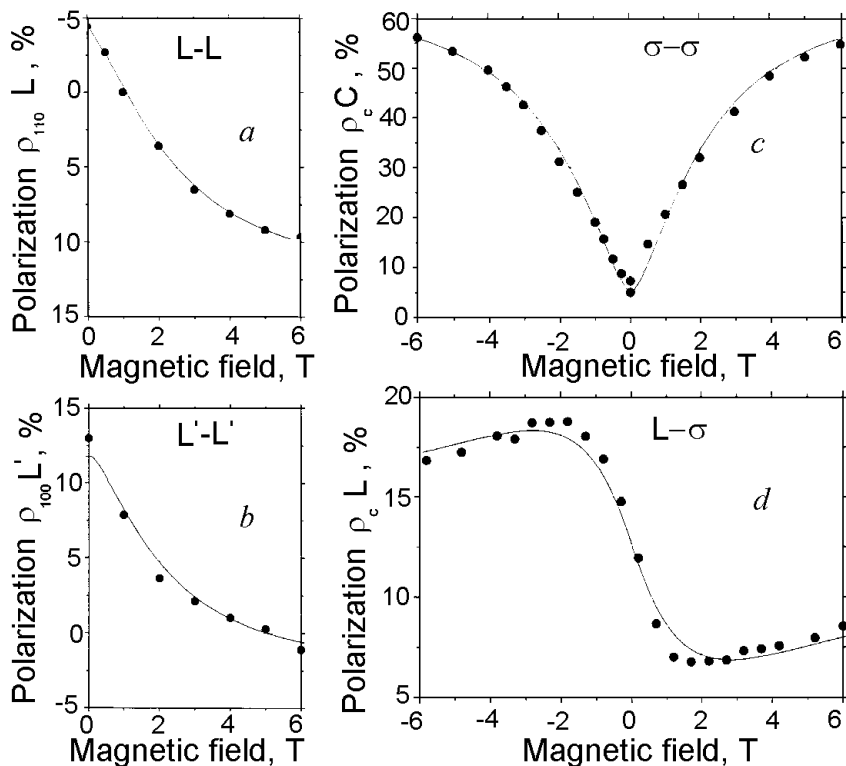
Образец помещался в криостат с жидким гелием. Гелий откачивался до температуры $T = 2$ K. Осуществлялось квазирезонансное (Kr⁺ лазер, $\lambda_{ex} = 6764 \text{ \AA}$) фотовозбуждение. Луч лазера направлялся на образец под малым углом к оси роста z , вдоль которой в геометрии "на отражение" регистрировалось рекомбинационное излучение. Магнитное поле, параллельное оси z , создавалось сверхпроводящим соленоидом. Поляризация люминесценции анализировалась в геометрии Фарадея. В экспериментах мы применяли модуляционную методику, в которой либо поляризатор фиксирован и модулируется пропускание анализатора, либо фиксировано положение анализатора, а образец возбуждается светом с переменным знаком круговой или линейной поляризации на частоте 26.61 kHz фотоупругого модулятора [5]. В первом случае измерялись степени поляризации излучения

$$P_c^\alpha = \frac{I_{\sigma_+}^\alpha - I_{\sigma_-}^\alpha}{I_{\sigma_+}^\alpha + I_{\sigma_-}^\alpha}, \quad P_l^\alpha = \frac{I_{1\bar{1}0}^\alpha - I_{110}^\alpha}{I_{1\bar{1}0}^\alpha + I_{110}^\alpha}, \quad P_{l'}^\alpha = \frac{I_{100}^\alpha - I_{010}^\alpha}{I_{100}^\alpha + I_{010}^\alpha}, \quad (1)$$

а во втором — эффективные степени поляризации

$$\rho_\alpha^c = \frac{I_{\sigma_+}^\alpha - I_{\sigma_-}^\alpha}{I_{\sigma_+}^\alpha + I_{\sigma_-}^\alpha}, \quad \rho_\alpha^l = \frac{I_{1\bar{1}0}^\alpha - I_{110}^\alpha}{I_{1\bar{1}0}^\alpha + I_{110}^\alpha}, \quad \rho_\alpha^{l'} = \frac{I_{\alpha}^{100} - I_{\alpha}^{010}}{I_{\alpha}^{100} + I_{\alpha}^{010}}. \quad (2)$$

Здесь символ I_β^α обозначает интенсивность рекомбинационного излучения в конфигурации (α, β) поляризатора и



Оптическое выстраивание экситонов вдоль осей $1\bar{1}0$ и $[110]$ (a) и вдоль осей $[100]$ и $[010]$ (b), оптическая ориентация экситонов (c) и преобразование оптического выстраивания вдоль осей $[1\bar{1}0]$, $[110]$ в ориентацию (d). Сплошными линиями показаны результаты расчета по формулам (5), (6), (11) с учетом распределения (12).

анализатора, а индекс α или β принимает одно из шести значений: линейной поляризации вдоль осей $[100]$, $[010]$, $[1\bar{1}0]$, $[110]$ или циркулярной поляризации σ_+ , σ_- .

При квазирезонансном возбуждении ($\hbar\omega = 1.832 \text{ eV}$) в спектре излучения появляются пики, отстоящие от возбуждающей линии на величину энергии оптических фононов GaAs (35 meV) и AlAs (48 meV), а также слабо выраженная структура [7,8]. Приведенные ниже экспериментальные данные получены на фоновном пике, отстоящем от лазерной линии на 35 meV . Похожие результаты получаются и на другой фоновной линии.

На рисунке приведены зависимости степени поляризации люминесценции от продольного магнитного поля. Выстраивание экситонов в осях $[1\bar{1}0]/[110]$ и $[100]/[010]$ показано на рисунке, a и b соответственно. При измерении эффективной степени линейной поляризации люминесценции (выстраивание экситонов) возбуждение осуществлялось линейно поляризованным светом, меняющим направление колебаний электрического вектора от параллельного оси $[1\bar{1}0]$ до перпендикулярного ей (или от $[100]$ к $[010]$) на частоте 26.61 kHz , а в канал люминесценции ставился линейный поляризатор с осью пропускания вдоль $[1\bar{1}0]$ (или $[100]$).

Измерение степени эффективной круговой поляризации экситонов (ориентация экситонов) производилось при возбуждении циркулярно поляризованным светом, меняющим знак поляризации на той же частоте (26.61 kHz), а в канал люминесценции ставились че-

твертьволновая фазовая пластинка и линейный поляризатор (анализатор круговой поляризации).

Из рисунка, a видно, что оптическое выстраивание экситонов в осях $[1\bar{1}0]/[110]$ не разрушается ниже 12.5%. Как показали отдельные эксперименты, это связано с модуляцией интенсивности люминесценции при модуляции поляризации возбуждающего света. В свою очередь, модуляция интенсивности обусловлена разницей коэффициентов поглощения для света, поляризованного вдоль осей $[1\bar{1}0]$ и $[110]$ (эффект линейного дихроизма) и не зависит от поля B . При измерении линейного дихроизма поглощения возбуждение производилось также, как и в измерениях по выстраиванию экситонов, а в канал люминесценции ставился деполаризатор для устранения влияния поляризирующего действия дифракционных решеток и зеркал спектрометра.

Оптическое выстраивание экситонов наблюдается при возбуждении светом, поляризованным как вдоль оси $[110]$, так и вдоль $[100]$ (см. рисунок, a и b). В продольном магнитном поле линейная поляризация подавляется в том же характерном диапазоне полей, в котором наблюдается рост циркулярной поляризации (см. рисунок, c). 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. При возбуждении вдоль осей $[100]$, $[010]$ линейный дихроизм незначителен.

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

Исследуемые квантовые точки имеют форму пирамиды (возможно, усеченной), высота которой параллельна оси $z \parallel [001]$, а прямоугольное основание ориентировано вдоль осей $[100]$ и $[010]$ [6,9]. Для анализа оптической ориентации и выстраивания экситонов удобно рассматривать дублет $|\pm 1\rangle$ как пару состояний псевдоспина $S = 1/2$. Тогда гамильтониан, описывающий расщепление дублета в продольном магнитном поле $\mathbf{B} \parallel z$, можно записать в виде

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2}(\Omega_1\sigma_1 + \Omega_2\sigma_2 + \Omega_{\parallel}\sigma_3), \quad (3)$$

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 $\hbar\Omega_2$ — два линейно независимых параметра обменного расщепления радиационного дублета. Квантовые точки с квадратным основанием характеризуются точечной симметрией C_{2v} , при которой $\Omega_1 = 0$, $\Omega_2 \neq 0$ и в отсутствие магнитного поля компоненты дублета поляризованы по осям $x \parallel [1\bar{1}0]$ и $y \parallel [110]$. В общем случае прямоугольного основания локальная 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 $[010]$. Заметим, что при $\Omega_2 = \Omega_{\parallel} = 0$, $\Omega_1 \neq 0$ компоненты дублета были бы поляризованы по осям $x' \parallel [100]$, $y' \parallel [010]$, развернутым на 45° относительно осей x, y . Если пренебречь анизотропией генерации и рекомбинации экситонов, то средние значения проекций псевдоспина S_j ($j = 1, 2, 3$) связаны со степенями поляризации излучаемого света простыми соотношениями

$$P_{l'} = 2S_1, \quad P_l = 2S_2, \quad P_c = 2S_3. \quad (4)$$

Аналогичные соотношения связывают поляризацию падающего света $P_{l'}^0, P_l^0, P_c^0$ и направление псевдоспина \mathbf{S}^0 в момент генерации экситона, если в процессе возбуждения не происходит частичной потери поляризации. Согласно (3) псевдоспин прецессирует вокруг вектора $\mathbf{\Omega} = (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_{\parallel})$ с частотой $|\mathbf{\Omega}|$. Если эта частота существенно превышает обратное время жизни экситона τ^{-1}

и время спиновой релаксации $\tau_s \gg \tau$, для нахождения среднего вектора псевдоспина \mathbf{S} достаточно спроектировать вектор \mathbf{S}^0 на направление $\mathbf{\Omega}$, т. е. $\mathbf{S} = \mathbf{\Omega}(\mathbf{\Omega}\mathbf{S}^0)/|\mathbf{\Omega}|^2$. В результате получаем связь между поляризацией фотолюминесценции и возбуждающего света

$$P_i = \Lambda_{ij}P_j^0 \quad (i, j = l', l, c), \quad (5)$$

$$|\Lambda_{ij}| = \frac{1}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2 + \Omega_{\parallel}^2} \begin{bmatrix} \Omega_1^2 & \Omega_1\Omega_2 & \Omega_1\Omega_{\parallel} \\ \Omega_1\Omega_2 & \Omega_2^2 & \Omega_2\Omega_{\parallel} \\ \Omega_1\Omega_{\parallel} & \Omega_2\Omega_{\parallel} & \Omega_{\parallel}^2 \end{bmatrix}. \quad (6)$$

Заметим, что в пренебрежении эффектами антипересечения уровней и дихроизма поглощения поляризация P_j^α совпадает с величинами ρ_{α}^j , введенными в (2).

Для учета анизотропии генерации и рекомбинации в осях $[1\bar{1}0]$, $[110]$ введем концентрацию нуль-мерных экситонов N_0 и вектор \mathbf{N} , проекции которого связаны соотношениями $N_l = 2N_0S_l$ ($l = 1, 2, 3$) со средними значениями проекций псевдоспина. В стационарных условиях возбуждения уравнения кинетики для величин N_0 и \mathbf{N} можно записать в виде

$$\frac{\mathbf{N}}{\tau} + \frac{N_0}{T}\mathbf{o}_2 + \mathbf{\Omega} \times \mathbf{N} = \dot{\mathbf{N}}, \quad \frac{N}{\tau} + \frac{N_2}{T} = \dot{N}_0, \quad (7)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{1\bar{1}0}} + \frac{1}{\tau_{110}} \right), \quad \frac{1}{T} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{1\bar{1}0}} - \frac{1}{\tau_{110}} \right), \quad (8)$$

$\tau_{1\bar{1}0}$, τ_{110} — время жизни экситона в состояниях $|1\bar{1}0\rangle$, $|110\rangle$, \mathbf{o}_2 — единичный вектор в направлении оси 2. Связь между скоростями генерации \dot{N}_0 , $\dot{\mathbf{N}}$ и поляризацией падающего света, а также между N_0 , \mathbf{N} и характеристиками вторичного излучения имеет вид

$$\dot{N}_0 = AI_0(1 + aP_l^0), \quad \dot{N}_j = AI_0(\zeta_j P_j^0 + b\delta_{j2}), \quad (9)$$

$$I = B(N_0 + cN_2), \quad IP_j = B(N_j + cN_0\delta_{j2}). \quad (10)$$

Здесь компоненты I_0, I — интенсивности первичного и вторичного излучения, компоненты P_1, P_2, P_3 отождествляются с $P_{l'}, P_l, P_c$, $\delta_{jj'}$ — символ Кронекера, коэффициенты $\zeta_j \leq 1$ учитывают потери поляризации в процессе нерезонансного или квазирезонансного возбуждения, параметр a характеризует относительное различие скоростей генерации полного числа экситонов при возбуждении светом, поляризованным вдоль осей $[1\bar{1}0]$ и $[110]$, параметр b описывает селективность генерации состояний $|1\bar{1}0\rangle$, $|110\rangle$ при неполяризованном или циркулярно поляризованном возбуждении, анизотропия излучательной рекомбинации описывается параметром c . Предполагается, что значения a, b , малы по сравнению с единицей. Анализ решения уравнений (7) показывает, что удовлетворительное описание экспериментальных данных достигается при $|b - d| \ll |c|$, где $d \equiv T/\tau = (\tau_{110} - \tau_{1\bar{1}0})/(\tau_{110} + \tau_{1\bar{1}0})$. Тогда в первом порядке по малым параметрам $|\Lambda_{ij}\zeta_j|$, $|a|, |b| \ll 1$ получаем

$$P_j^\alpha = \zeta_j (P_j^\alpha)_{a=b=0} + c\delta_{j2}, \quad \rho_{\alpha}^j = (P_j^\alpha)_{a=b=0} + a\delta_{j2}, \quad (11)$$

где $(P_j^\alpha)_{a=b=0}$ — поляризация, рассчитанная в пренебрежении анизотропией и при $\zeta_j = 1$. В рамках

двухуровневой модели интенсивность I от магнитного поля не зависит.

В эксперименте анализируется свет, излучаемый большим числом квантовых точек, и матрицу $\Lambda_{\alpha,\beta}$ 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, свидетельствующая о неэквивалентности осей $[110]$ и $[\bar{1}\bar{1}0]$, — можно удовлетворительно объяснить, предполагая, что положительные и отрицательные значения Ω_1 равновероятны, т.е. $\langle \Omega_1 \rangle = 0$, а среднее значение $\langle \Omega_2 \rangle$ отлично от нуля. При расчете поляризации излучения мы предполагали гауссово распределение параметров обменного расщепления:

$$P(B_1, B_2) = \frac{1}{2\pi b_1 b_2} \exp\left(-\frac{B_1^2}{b_1^2}\right) \exp\left[-\frac{(B_2 - \langle B_2 \rangle)^2}{b_2^2}\right], \quad (12)$$

где $B_1 = \hbar\Omega_1/(\mu_B g_{\parallel})$, $B_2 = \hbar\Omega_2/(\mu_B g_{\parallel})$ и учтено, что среднее значение Ω_1 равно нулю.

Под параметрами a и c , характеризующими эффект линейного дихроизма для поглощения и излучения, соответственно, следует понимать их значения, усредненные по ансамблю квантовых точек. На рисунке сплошными линиями приведены результаты теоретического расчета, которые получаются усреднением выражений (11) с помощью функции распределения (12) при значениях $\langle B_2 \rangle = 1.2 \text{ kG}$, $b_2 = b_1 = 1.8 \text{ kG}$, $P_c^0 = 63\%$, $P_l^0 = P_l^0 = 33\%$. Отличие от единицы значений P_j^0 связано с потерями поляризации при квазирезонансном возбуждении экситонов. Степень линейного дихроизма поглощения a относительно осей $\langle 110 \rangle$ составляет 12.5%. Имеется также указание на наличие линейного дихроизма в осях $\langle 100 \rangle$ (см. рисунок, b). Однако этот эффект мал и может быть связан с непараллельностью оси $[100]$ и плоскости поляризации возбуждающего света. Поэтому при обработке данных на рисунке, b теоретическая кривая смещалась на величину 2.5%. Параметр анизотропии рекомбинации измерялся по линейной поляризации излучения в осях $\bar{1}\bar{1}0/110$ при неполяризованном возбуждении и оказался равным $c = 6\%$.

Таким образом, в отличие от структур GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами [2] и сверхрешеток GaAs/AlAs типа II [5], положение главных осей анизотропного обменного расщепления для экситонов в квантовых точках InAlAs/AlGaAs не фиксировано вдоль направлений $[110]$ и $[\bar{1}\bar{1}0]$ и характеризуется двумя линейно независимыми параметрами Ω_1 и Ω_2 . 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 Е.Л.И. частично поддержана фондом Volkswagen и грантом РФФИ 95-02-06038; работа Ю.Г.К. — грантом РФФИ 95-02-04102, работа Н.Н.Л., В.М.У., А.Е.Ж. и А.Ф.Ц. — грантами РФФИ 96-02-17824, INTZAS-RFPR 95-618 и фондом Volkswagen.

Список литературы

- [1] S.V. Goupalov, E.L. Ivchenko, A.V. Kavokin. Proc. Int Symposium "Nanostructures: Physics and Technology". St.Petersburg (1996). P. 322.
- [2] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.C. Katzer, D. Park. 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, U. Rössler. Phys. Rev. **B54**, 5852 (1996).
- [4] E.L. Ivchenko, V.P. Kochereshko, A.Yu. Naumov, I.N. Uraltsev, P. Lavallard. Superlatt. Microstruct. **10**, 497 (1991).
- [5] R.I. Dzhiyev, H.M. Gibbs, E.L. Ivchenko, G. Khitrova, V.L. Korenev, M.N. Tkachuk, B.P. Zakharchenya. Phys. Rev., **B56**, 13 405 (1997).
- [6] А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, А.А. Суворов, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов, Д. Бимберг. ФТП **31**, 1, 109 (1997).
- [7] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Christen, R. Heitz, J. Böbrer, J. Heinrichsdorff, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Proc. 22nd Int. Conf. Phys. Semicond. Vancouver, Canada (1994). P. 1855; R. Heitz, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, L.Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Appl. Phys. Lett. **68**, 361 (1996).
- [8] S. Raymond, S. Fafard, S. Charbonneau, R. Leon, D. Leonard, P.M. Petroff, J.L. Merz. Phys. Rev. **B52**, 17 238 (1995).
- [9] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. **B51**, 11 969 (1995).