

Поляризационные спектры экситонной люминесценции открытых квантовых проволок ZnCdSe/ZnSe

© Н.В. Ломасов, В.В. Травников, С.О. Когновицкий, С.А. Гуревич, С.И. Нестеров, В.И. Скопина, М. Рабе,* Ф. Хеннебергер*

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

*Университет им. Гумбольдта,
Берлин, Германия

(Поступила в Редакцию 13 февраля 1998 г.)

Исследованы линейно поляризованные спектры люминесценции открытых (незарощенных) полупроводниковых структур с квантовыми проволоками ZnCdSe/ZnSe, полученных методом реактивно-ионного травления. Обнаружено, что независимо от ориентации линейной поляризации возбуждающего света излучение люминесценции квантовых проволок поляризовано параллельно оси проволок, а излучение буферного слоя изотропного материала барьера ZnSe — перпендикулярно оси проволок. Выявленные поляризационные особенности обусловлены модификацией мод электромагнитного поля в окрестности открытых квантовых проволок, возникающей благодаря наличию вертикальных границ раздела сред с большим различием значений диэлектрических проницаемостей. Обнаружено также, что при использованном линейно поляризованном возбуждении существенное влияние на поляризационные свойства люминесценции оказывают эффекты выстраивания дипольных моментов экситонов.

Наиболее прямым способом получения квантовых проволок (КП) является травление через одномерные маски двумерных квантовых объектов, расположенных в непосредственной близости от поверхности. Если травление не сопровождается последующим зарастыванием, то характерной особенностью получаемых открытых КП является наличие границ раздела полупроводник/вакуум на их боковых стенках. Возникающее при этом большое различие диэлектрических проницаемостей полупроводника ($\epsilon \sim 10$) и окружающей среды ($\epsilon \sim 1$) приводит к существенному отличию величины компонент локальных электрических полей внутри КП, соответствующих поляризации внешнего электромагнитного поля, ориентированной перпендикулярно или параллельно оси проволок, что в свою очередь должно приводить к выраженной поляризационной анизотропии оптических свойств открытых КП [1,2]. Предсказанная в работах [1,2] анизотропия наблюдалась в спектрах люминесценции и комбинационного рассеяния в открытых квантовых проволоках InGaAs [3,4]. Настоящая работа посвящена исследованию анизотропии спектров люминесценции открытых КП ZnCdSe/ZnSe. В отличие от авторов работ [3,4], в которых основное внимание уделялось проявлению в наблюдаемых спектрах лишь анизотропии вероятностей оптических переходов, мы, используя резонансное возбуждение, исследовали также влияние кинетики пространственно-энергетической релаксации на поляризационные свойства люминесценции открытых КП. Кроме того, в работе исследована обнаруженная нами существенная анизотропия излучения изотропного материала буферного слоя барьера (ZnSe). Показано, что она связана с анизотропией поглощения света, проходящего через протравленную приповерхностную область.

1. Эксперимент

Образцы с квантовыми проволоками изготовлены методом интерференционной литографии с последующим реактивным ионным травлением [5] исходных, приготовленных методом МВЕ структур с одиночными квантовыми ямами $Zn_{1-x}Cd_xSe$ (5 nm), расположенными между слоями барьерного материала ZnSe. Были использованы две исходные структуры. В структуре I типа толщина верхнего слоя ZnSe составляла 60 nm, толщина буферного слоя, расположенного между подложкой GaAs и квантовой ямой, — 400 nm, концентрация Cd $x = 0.13$. В структуре II типа толщины слоев ZnSe были существенно меньше (верхний слой 25 nm, буферный слой 20 nm), а концентрация Cd $x = 0.16$. Травление осуществлялось на глубины порядка 60–100 nm. В образцах II типа это приводило к полному протравливанию материалов A_2B_6 , в результате чего эти образцы представляли собой расположенные непосредственно на подложке GaAs и изолированные друг от друга полоски ZnSe, примерно в середине которых расположены КП. Полученные в результате травления структуры оставались незарощенными. Поперечная ширина КП варьировалась в пределах 50–100 nm. Поскольку результаты, полученные на образцах с разными геометрическими параметрами, принципиально не отличались друг от друга, ниже образцы I типа представлены результатами, полученными на образце с шириной квантовой ямы 80 nm и глубиной протравленной части 100 nm, а образцы II типа представлены образцом с шириной КП, равной 70 nm, и высотой столбика с КП, равной 70 nm.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) исследовались при возбуждении линией 441.6 nm He–Cd-лазера ($T = 77$ K). Возбуждение и регистрация осуществлялись

в линейной поляризации параллельно или перпендикулярно оси проволоки.

На рис. 1 представлены спектры ФЛ образца I типа при поляризации возбуждающего света, ориентированной параллельно ($E_{ex} \parallel Z$) (a) и перпендикулярно ($E_{ex} \perp Z$) (b) оси КП. Спектры 1 соответствуют регистрации параллельных оси проволоки линейно поляризованных компонент излучения, а спектры 2 — регистрации перпендикулярных оси проволоки компонент излучения. Спектры 3 являются спектрами степени линейной поляризации, которые определялись как

$$\rho = \frac{I_{\parallel Z} - I_{\perp Z}}{I_{\parallel Z} + I_{\perp Z}}, \quad (1)$$

где $I_{\parallel Z}$ ($I_{\perp Z}$) — интенсивность излучения с поляризацией, параллельной (перпендикулярной) оси проволоки.

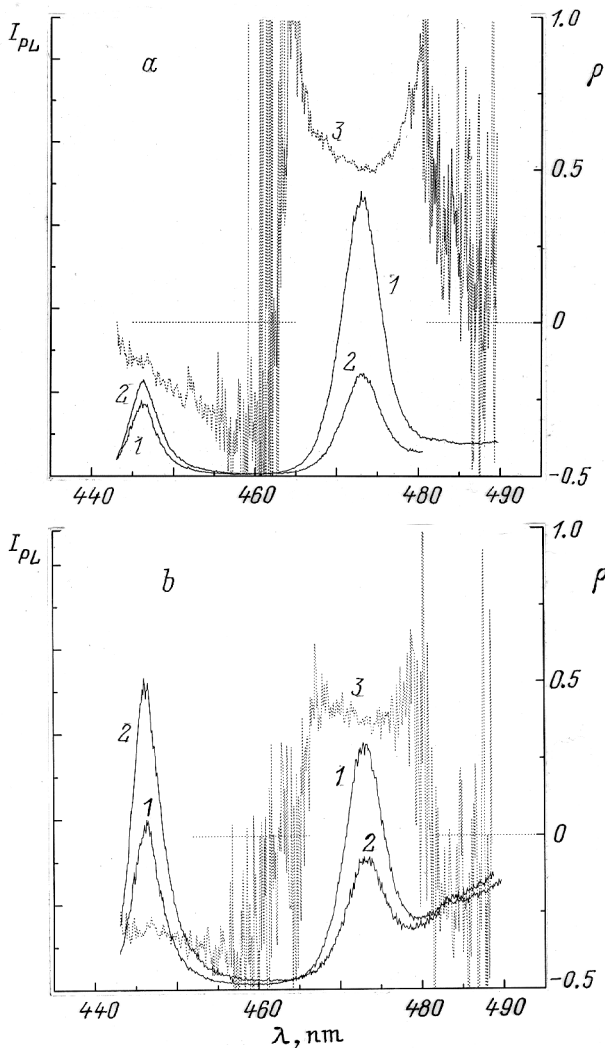


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции и спектры степени поляризации образца I типа, полученные при параллельной (a) и перпендикулярной (b) оси проволоки поляризации возбуждающего света. 1, 2 — спектры люминесценции с параллельной и перпендикулярной оси проволоки поляризацией излучения соответственно, 3 — спектры степени поляризации ρ .

Измерение в соответствии с формулой (1) означает измерение степени поляризации относительно оси проволоки Z . Положительные значения ρ соответствуют тому, что люминесценция в основном поляризована вдоль оси проволоки, а отрицательные значения — тому, что излучение поляризовано перпендикулярно оси проволоки.

Коротковолновая линия на рис. 1 в области 446 nm соответствует излучению материала барьера ZnSe. Длинноволновая линия соответствует излучению проволоки ZnCdSe. Из рис. 1 видно, что в образцах I типа независимо от поляризации возбуждающего света излучение проволоки поляризовано параллельно оси проволоки, а излучение барьера — перпендикулярно (при неполяризованном возбуждении наблюдается такое же соотношение поляризации). В образцах II типа излучение КП также поляризовано вдоль оси проволоки при обеих поляризациях возбуждающего света. Люминесценцию барьера в образцах II типа нам зарегистрировать не удалось. Это, очевидно, является следствием эффективного захвата носителей из барьера в проволоку.

В образцах I типа толщина буферного слоя ZnSe весьма велика, в результате чего основной вклад в люминесценцию барьера должны вносить внутренние области этого слоя. Буферный слой является изотропным (в плоскости слоя) материалом, и его излучение (по крайней мере выходящее перпендикулярно слою), казалось бы не должно быть поляризованным. Для выяснения причины появления отрицательной степени поляризации барьера мы выполнили следующий эксперимент. В образце I типа мы исследовали зависимость интенсивности примесной люминесценции буферного слоя ZnSe ($\lambda_{max} \sim 550$ nm) от поляризации возбуждающего света (возбуждение также осуществлялось линией 441.6 nm). Оказалось, что при поляризации возбуждения вдоль оси проволоки интенсивность этой полосы примерно в 1.4 раза меньше интенсивности излучения, соответствующего перпендикулярной поляризации возбуждения (при измерении отношения интенсивностей мы учитывали различие в коэффициентах отражения для двух поляризаций возбуждающего света). Поскольку буферный слой ZnSe является изотропным материалом и обнаруженная зависимость от поляризации возбуждения не может быть связана с анизотропией поглощения в самом буферном слое, полученные результаты указывают на поляризационную анизотропию поглощения возбуждающего света при его прохождении через поверхностную решетку ZnCdSe/ZnSe. Прохождение изначально неполяризованного изотропного излучения, формируемого в объеме буферного слоя, через ту же решетку в обратном направлении (из кристалла) приводит, очевидно, к появлению отрицательной степени поляризации наблюдаемой люминесценции барьера.

В отличие от знака степени поляризации величина и спектральная зависимость степени поляризации для двух поляризаций возбуждения заметно отличаются друг от друга. Это отличие существенно возрастает в образцах II типа. Это отчетливо видно из рис. 2, на котором для

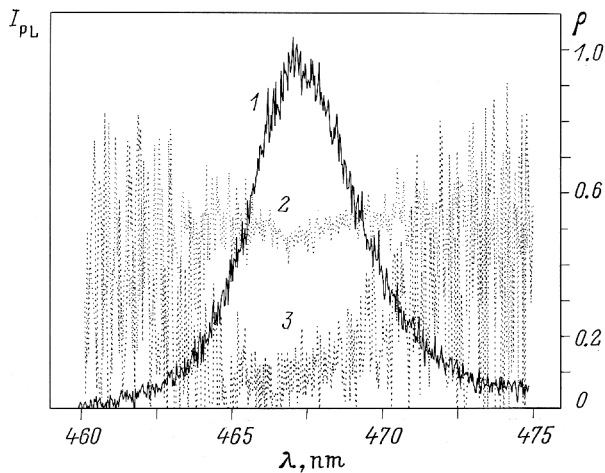


Рис. 2. Спектр люминесценции образца II типа (1), а также спектры степени поляризации, полученные при параллельной (2) и перпендикулярной (3) оси проволок поляризации возбуждающего света.

образцов II типа представлено сопоставление спектров степени поляризации, полученных при параллельной (спектр 2) и перпендикулярной (3) поляризации возбуждающего света, со спектром люминесценции (1). Величина степени поляризации в максимуме линий люминесценции для параллельной поляризации возбуждения (ρ_{\parallel}) в двух типах образцов примерно одинакова, при этом она заметно больше величины степени поляризации, соответствующей перпендикулярному возбуждению (ρ_{\perp}). Это превышение для образцов II типа существенно больше, и величина ρ_{\perp} примерно в 5 раз меньше величины ρ_{\parallel} . Обращает на себя внимание также изменение величины ρ по контуру линий люминесценции. В образцах I типа (рис. 1), в которых спектры степени поляризации измерены более надежно (лучшее отношение сигнал/шум), наблюдается отчетливое увеличение величины ρ при смещении от центра линии в сторону меньших и больших энергий. Представленные результаты показывают, что величина степени поляризации излучения КП зависит как от поляризации возбуждающего света, так и от типа образца. Поскольку для наших образцов геометрические параметры, которые в соответствии с работами [1–4] определяют величину степени поляризации, примерно одинаковы, полученные результаты указывают на наличие иных факторов, влияющих на поляризацию излучения КП.

2. Обсуждение результатов

Внутри открытой проволоки величины локальных электрических полей, соответствующих поляризации внешнего электромагнитного поля $E \parallel Z$, существенно превышают величины локальных полей для поляризации $E \perp Z$ [1,2]. Следует отметить, что это является фактически следствием граничных условий Максвелла.

Тангенциальные (параллельные границе раздела, а следовательно, и оси проволок) компоненты электрического вектора должны быть одинаковыми по обе стороны от границы раздела ($E_{\parallel 1} = E_{\parallel 2}$). Нормальные (перпендикулярные) компоненты связаны отношением $\varepsilon_1 E_{\perp 1} = \varepsilon_2 E_{\perp 2}$. В результате, поскольку в вакууме $\varepsilon_1 = 1$, перпендикулярная компонента электрического поля на границе раздела со стороны КП в ε_2 (~ 10) раз меньше внешнего электрического поля. Различие локальных полей на границе раздела, естественно, приводит и к различию локальных электрических полей в среднем по всему профилю КП. В силу того что матричные элементы оптических переходов пропорциональны скалярному произведению напряженности локального электрического поля на межзонный дипольный момент, вероятности оптических переходов (величины которых получаются после усреднения по электронно-дырочным волновым функциям) для поляризации света вдоль квантовой нити существенно превышают соответствующие вероятности для перпендикулярной поляризации [1,2]. Это различие и должно приводить к сильной поляризации люминесценции вдоль оси открытых проволок [3]. Максимальные значения (~ 0.5) степени поляризации линий люминесценции КП в нашем случае совпадают с экспериментальными и теоретическими значениями степени поляризации люминесценции, полученными в [3]. Это вполне естественно, поскольку геометрические параметры и значения диэлектрической проницаемости в наших открытых проволоках примерно такие же, как соответствующие величины для проволок, исследованных в [3,4].

Обнаруженная анизотропия фотовозбуждения буферного слоя ZnSe является, по существу, прямым доказательством того, что при прохождении через открытую поверхностную решетку коэффициент поглощения света с поляризацией света вдоль оси проволок существенно превышает соответствующий коэффициент для перпендикулярной поляризации [1,2]. Частота использованной нами возбуждающей линии практически совпадает с положением линии поглощения экситонного состояния $n = 2$ материала ZnSe. Данное обстоятельство, а также тот факт, что материал барьера в протравленной части ZnSe, как и материал КП, находится в области, характеризуемой наличием вертикальных границ раздела полупроводник/вакуум, свидетельствуют о том, что анизотропное поглощение возбуждающего света обусловлено анизотропным экситонным поглощением в протравленной части ZnSe, поскольку ее толщина почти на порядок превосходит толщину квантовой ямы. В результате воздействия этого анизотропного поглощения неполяризованное само по себе излучение барьера, формируемое в основном объеме буферного слоя, после прохождения приповерхностной области становится поляризованным перпендикулярно оси проволок благодаря более эффективному поглощению компоненты света с поляризацией вдоль оси проволок.

В общем случае отношение интенсивности излучения в параллельной и перпендикулярной поляризациях зависит не только от вероятности W соответствующих оптических переходов, но и от заселенности (N) экситонных состояний с соответствующими дипольными моментами

$$\frac{I_{\parallel}}{I_{\perp}} = \frac{W_{\parallel} N_{\parallel}}{W_{\perp} N_{\perp}}. \quad (2)$$

При линейной поляризации возбуждающего света и используемом нами резонансном возбуждении различие в заселенностях может возникать за счет эффекта выстраивания дипольных моментов экситонов (см., например, [6,7]).

Максимальная степень выстраивания экситонов, возникающая при поглощении света по мере энергетической релаксации, с увеличением числа актов рассеяния на фононах уменьшается [6,7]. Это, очевидно, является причиной наблюдаемого при $E \parallel Z$ выраженного уменьшения степени поляризации экситонов при приближении к центру линии со стороны больших энергий. Максимум линии люминесценции КП при $T = 77$ К примерно соответствует дну зоны основного экситонного состояния КП. Экситоны, достигшие дна зоны, за время жизни испытывают наибольшее число актов рассеяния, и для них характерна максимальная степень деполяризации [7] (N_{\parallel} максимально приближается к N_{\perp}). Наблюдаемое возрастание степени поляризации на длинноволновом краю линии люминесценции обусловлено, по-видимому, захватом выстроенных экситонов с большой энергией в состоянии локализованных экситонов (при рассеянии, например, на LO -фононах).

В случае перпендикулярной поляризации возбуждающего света $E_{\text{ex}} \perp Z$ поглощение непосредственно в материале квантовой проволоки мало, и в образцах I типа основная доля возбуждающего света поглощается в объеме буферного слоя ZnSe. В результате излучение КП формируется в значительной степени за счет рекомбинации экситонов, которые возникают благодаря захвату в КП термализовавшихся носителей и экситонов из материала барьера. Естественно предположить, что в этом случае доля выстроенных экситонов очень мала ($N_{\perp} \approx N_{\parallel}$) и поляризация излучения определяется в основном соотношением вероятностей оптических переходов. В образцах II типа толщина буферного слоя очень мала, и относительный вклад в люминесценцию КП экситонов, образующихся непосредственно в материале проволоки и подверженных выстраиванию, существенно возрастает; кроме того, экситоны, возникающие за счет захвата из областей барьера, непосредственно примыкающих к проволоке, также могут быть частично выстроенными. Поэтому при $E_{\text{ex}} \perp Z$ дипольные моменты заметной части экситонов выстроены по поляризации возбуждения, и различие заселенностей ($N_{\perp} > N_{\parallel}$) в существенной степени компенсирует разницу вероятностей оптических переходов, в результате чего степень поляризации относительно оси проволок весьма мала.

При $E_{\text{ex}} \parallel Z$ коэффициент поглощения в проволоке и прилегающих к ней областях барьера существенно больше, чем при поляризации $E_{\text{ex}} \perp Z$, в результате доля выстроенных параллельно проволоке экситонов заметно больше ($N_{\parallel} > N_{\perp}$) и степень поляризации, естественно, превышает те значения, которые характерны для неполяризованного возбуждения, когда $N_{\parallel} = N_{\perp}$.

Проведенные исследования показали, что излучение люминесценции квантовых проволок поляризовано параллельно, а излучение барьера перпендикулярно оси проволок. Обнаруженные особенности обусловлены модификацией мод электромагнитного поля, вследствие наличия вертикальных границ раздела сред с большим различием значений диэлектрических проницаемостей. Поляризация квантовых проволок вдоль оси возникает благодаря тому, что вероятность излучательных переходов для параллельной поляризации существенно превышает соответствующие вероятности для перпендикулярной поляризации. Большая вероятность поглощения для параллельной поляризации в открытых проволоках приводит к тому, что изначально неполяризованное излучение люминесценции барьера, формируемое в объеме буферного слоя приобретает перпендикулярную поляризацию после прохождения через поверхностную область с открытыми проволоками. Обнаружено также, что при использованном механизме возбуждения существенное влияние на поляризационные свойства оказывают эффекты выстраивания дипольных моментов экситонов.

Авторы выражают благодарность за поддержку Российскому фонду фундаментальных исследований (грант № 96-02-00131) и Международной программе НАТО (NANO.LG 950382).

Список литературы

- [1] Н.А. Гиппиус, В.Д. Кулаковский, С.Г. Тиходеев, А. Форхель. Письма в ЖЭТФ **59**, 8, 527 (1994).
- [2] N.A. Gippius, S.G. Tikhodeev, A. Forchel, V.D. Kulakovskii. Superlatt. Microst. **16**, 2, 165 (1994).
- [3] P. Ils, Ch. Greus, A. Forchel, V.D. Kulakovskii, N.A. Gippius, S.G. Tikhodeev. Phys. Rev. **B51**, 7, 4272 (1995).
- [4] J. Rubio, Z.H. van Der Meulen, N. Mestres, J.M. Calleja, K.H. Wang, P. Ils, A. Forchel, N.A. Gippius, S.G. Tikhodeev. Sol. Stat. Electron. **40**, 707 (1996).
- [5] С.А. Гуревич, А.В. Колобов, В.М. Любин, С.И. Нестеров, М.М. Кулагина, Ф.Н. Тимофеев, С.И. Трошков. Письма в ЖТФ **18**, 17, 85 (1992).
- [6] Е.Л. Ивченко, Г.Е. Пикус, Л.В. Такунов. ФТТ **20**, 9, 1235 (1978).
- [7] С.А. Пермогоров, В.В. Травников. ФТТ **22**, 9, 2651 (1980).