

Оптическая ориентация электронов в компенсированных полупроводниках

© И.А. Кокурин^{*+¶}, П.В. Петров^{*}, Н.С. Аверкиев^{*}

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

⁺ Мордовский государственный университет им. Н.П. Огарева, 430005 Саранск, Россия

(Получена 14 февраля 2013 г. Принята к печати 20 февраля 2013 г.)

Представлена теория оптической ориентации носителей заряда в компенсированных полупроводниках $A^{III}B^V$ и квантовых ямах на их основе в случае возбуждения электронов из состояния заряженного акцептора Mn^- в зону проводимости. Установлено, что в квантовой яме GaAs/AlGaAs степень спиновой ориентации электронов в зоне проводимости при такой схеме возбуждения может достигать 85%. При этом рост степени ориентации не связан с расщеплением уровней за счет размерного квантования, а происходит за счет увеличения вклада тяжелых дырок в состояние акцептора вблизи центра дефекта. Показано, что степень циркулярной поляризации фотолюминесценции при рекомбинации термализованных электронов со дна зоны и дырки в основном состоянии акцептора в квантовой яме может превышать 70%.

1. Введение

Оптическая ориентация спинов электронов и дырок представляет собой один из наиболее используемых методов исследования полупроводников и полупроводниковых наноструктур [1–3]. В работах [1–3] продемонстрировано, что, изучая поляризацию фотолюминесценции в условиях спиновой ориентации носителей заряда, можно определять времена релаксации электронов и дырок, а ориентация носителей может приводить к возникновению постоянного электрического тока, направление и величина которого зависят от степени круговой поляризации возбуждающего света.

Обычно в эксперименте средний спин свободных электронов создается за счет межзонной накачки, а наибольшая ориентация спина для полупроводников типа GaAs возникает при переходах из центра зоны Бриллюэна, и с увеличением энергии электрона эта величина уменьшается. В этом смысле привлекательным представляется возбуждение электронов при оптических переходах между, например, заряженным акцептором и зоной проводимости. Поскольку в основном состоянии симметрия волновых функций локализованных носителей совпадает с симметрией волновых функций вершины зоны [4], то при таком оптическом переходе можно ожидать предельной степени спиновой ориентации электрона. Эта ситуация возможна в компенсированных полупроводниках, например, если полупроводник с p -типом проводимости дополнительно легировать донорами. Тогда при низких температурах часть акцепторов будет ионизована (заряжена отрицательно), а все доноры окажутся заряженными положительно. При поглощении света с энергией кванта, меньшей ширины запрещенной зоны полупроводника на величину энергии связи дырки на акцепторе, в кристалле возникает электрон в зоне проводимости и дырка на акцепторе. Такие переходы

проявляются в спектрах поглощения компенсированных полупроводников при энергиях, меньших, чем ширина запрещенной зоны [5].

Особенно актуальным является вопрос об оптических переходах ионизованная примесь–зона в полумагнитных полупроводниках III-Mn-V. Недавно экспериментально было показано, что компенсация и связанные с ней оптические переходы являются основным фактором, определяющим спектральные свойства магнитного циркулярного дихроизма в GaMnAs [6]. При увеличении степени компенсации в поглощении циркулярно поляризованного света все большую роль играют переходы ионизованный акцептор–зоны проводимости, что в эксперименте приводило к смене знака измеренной поляризации проходящего света при энергиях меньше ширины запрещенной зоны [6].

Отдельный интерес представляет случай оптической ориентации электронов в двумерных системах. Экспериментально исследовать такое явление возможно в структурах с квантовыми ямами AlGaAs/GaMnAs с модулированным легированием. Известно, что легирование отдельной квантовой ямы марганцем в настоящее время технологически неосуществимо в связи с сильной сегрегацией марганца в кристаллической решетке во время роста [7]. Однако, легируя донорами барьеры вокруг квантовой ямы, можно управлять положением химического потенциала в яме таким образом, что внутри ямы будет находиться только ионизованная примесь марганца. Прямое измерение оптической ориентации электронов как в объемных, так и в двумерных системах возможно путем измерения степени циркулярной поляризации фотолюминесценции перехода из зоны проводимости на акцептор при энергии света накачки $\hbar\omega$, изменяемой в интервале $E_g - E_A < \hbar\omega < E_g - E_D$ (рис. 1), где E_g — ширина запрещенной зоны, $E_{D(A)}$ — энергия ионизации донора (акцептора).

Хорошо известно [8], что в полупроводниках типа GaAs степень ориентации электронов зоны проводи-

¶ E-mail: kokurinia@math.mrsu.ru

мости ограничена величиной 1/2, что связано с вырождением валентной зоны Γ_8 в центре зоны Бриллюэна. Чтобы увеличить степень ориентации, необходимо снять вырождение подзон легких и тяжелых дырок. Это может быть достигнуто одноосной деформацией [9] либо при размерном квантовании в квантовых ямах.

В данной работе будет развита теория оптической ориентации электронов в зоне проводимости при оптических переходах между состояниями заряженных акцепторов и зоной проводимости в полупроводниках типа GaAs и квантовых ямах, а также будет рассчитана степень круговой поляризации фотолюминесценции, обусловленной рекомбинацией термализованных электронов с равновесными дырками на акцепторах. Будет показана возможность увеличения степени ориентации электронов в случае, когда вырождение состояний акцептора сохраняется.

2. Оптические переходы Mn^- — зона проводимости

Рассмотрим оптические переходы между состояниями заряженного акцептора Mn^- и зоной проводимости (рис. 1, *b*). Такие переходы удобно описывать в двухчастичной схеме: начальное состояние характеризуется моментом электронов $3d^5$ -оболочки марганца, а конечное — состоянием электрона в зоне проводимости и дырки на акцепторе.

Рассмотрим более подробно состояние дырки на акцепторе Mn^0 . Следуя подходу, развитому в [10], будем рассматривать дырку и $3d$ -электроны как одну частицу, с полным моментом F . Момент F может принимать целые значения от 1 до 4, поскольку момент $3d$ -электронов $S_d = 5/2$, а полный момент дырки $J = 3/2$ (основное состояние). Волновая функция состояния $|F, m_F\rangle$ с моментом F и его проекцией m_F определяется в соответствии с общими правилами сложения моментов:

$$\Psi_{F, m_F} = \sum_{M, \nu} C_{M\nu}^{F m_F} \Psi_\nu^S \Psi_M^J, \quad (1)$$

где Ψ_ν^S, Ψ_M^J — волновые функции $3d$ -электронов и дырки соответственно, $C_{M\nu}^{F m_F}$ — коэффициенты Клебша–Гордана, ν и M — проекции соответствующих моментов.

Состояние $|F, m_F\rangle$ является 24-кратно-вырожденным: $(2S_d + 1)(2J + 1) = 24$. Однако учет обменного взаимодействия приводит к снятию вырождения по полному моменту F , при этом вырождение по проекции m_F сохраняется и имеет, очевидно, кратность $2F + 1$ при заданном F . Таким образом, уровень с энергией E^* расщепляется на четыре:

$$E_F = E^* - \frac{A}{2} \left[F(F + 1) - \frac{25}{2} \right], \quad (2)$$

где A — константа обменного взаимодействия. Экспериментально было показано, что обменное взаимодействие

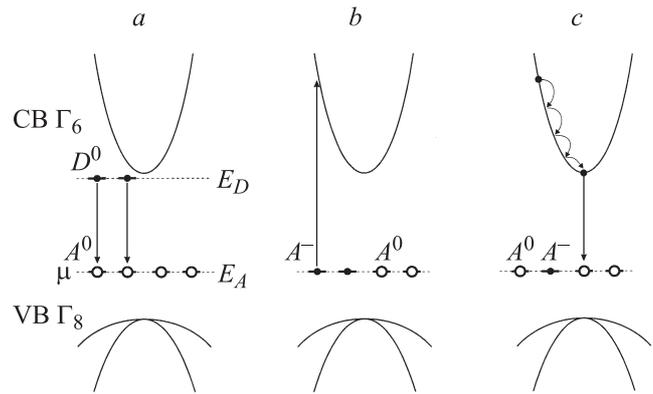


Рис. 1. Схема возбуждения и рекомбинации в частично компенсированном полупроводнике p -типа: *a* — частичная компенсация образца p -типа донорами; *b* — возбуждение электрона с заряженного акцептора в зону проводимости; *c* — релаксация и рекомбинация электрона со дна зоны проводимости и дырки на акцепторе.

носит антиферромагнитный характер, т. е. $A < 0$, основным состоянием является $F = 1$ и $|A| = 2$ мэВ [11].

Согласно рис. 1, при поглощении фотона образуются нейтральный акцептор и электрон в зоне проводимости. Независящая от времени часть оператора электрон-фотонного взаимодействия, соответствующая переходу с поглощением фотона, имеет вид

$$H_{e-ph} = \frac{eA_0}{m_0c} \sum_{s, m, \mathbf{k}} \mathbf{e}_{\mathbf{p}_{sm}} c_{s\mathbf{k}}^\dagger c_{m\mathbf{k}}, \quad (3)$$

где A_0 — амплитуда векторного потенциала световой волны, m_0 — масса свободного электрона, \mathbf{e} — вектор поляризации фотона, $c_{s\mathbf{k}}^\dagger$ — оператор рождения электрона со спином s и волновым вектором \mathbf{k} в зоне проводимости, $c_{m\mathbf{k}}$ — оператор уничтожения электрона с проекцией спина m и волновым вектором \mathbf{k} в валентной зоне, \mathbf{p}_{sm} — матричный элемент оператора импульса соответствующего оптического перехода.

Поскольку оператор электрон-фотонного взаимодействия (3) не действует на волновые функции $3d$ -электронов в (1), то, воспользовавшись ортогональностью состояний Ψ_ν^S , можно получить следующее соотношение для матричного элемента перехода $Mn^- + \hbar\omega \rightarrow Mn^0 + e$:

$$\langle s, \mathbf{k}, F, m_F | H_{e-ph} | \nu \rangle = C_{M\nu}^{F m_F} \langle s, \mathbf{k}, M | H_{e-ph} | 0 \rangle. \quad (4)$$

Здесь $\langle s, \mathbf{k}, M | H_{e-ph} | 0 \rangle$ есть матричный элемент, соответствующий переходу с образованием электрона в состоянии $|s, \mathbf{k}\rangle$ и дырки с проекцией момента M на немагнитном акцепторе, вакуумному состоянию $|0\rangle$ соответствуют полностью заполненная валентная зона, заряженные акцепторы и свободная зона проводимости. Формула (4), очевидно, выполняется при $M + \nu = m_F$, когда коэффициенты $C_{M\nu}^{F m_F}$ отличны от нуля.

Волновая функция основного состояния дырки на акцепторе (симметрия Γ_8) в методе эффективной массы определяется произведением медленно меняющихся функций и состояний потолка валентной зоны:

$$\Psi_M^{3/2}(\mathbf{r}) = \sum_m F_m^M(\mathbf{r}) u_{m0}(\mathbf{r}),$$

где u_{m0} — блоховские функции вершины валентной зоны Γ_8 ; $F_m^M(\mathbf{r})$ — соответствующие огибающие. Тогда искомые матричные элементы могут быть записаны в следующем виде:

$$\langle s, \mathbf{k}, M | H_{e-ph} | 0 \rangle = \frac{eA_0}{m_0c} \sum_m F_m^M(\mathbf{k}) \mathbf{e} p_{sm}, \quad (5)$$

где $F_m^M(\mathbf{k})$ есть фурье-образы огибающих, которые для случая глубокого акцептора в модели потенциала нулевого радиуса [12–14] могут быть получены из результатов работы [15], где были найдены волновые функции дырки на акцепторе в импульсном представлении. Далее, для простоты, ограничимся сферическим приближением гамилтониана Латтинджера.

Для круговой поляризации $\mathbf{e}_\pm = (\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$, согласно правилам отбора, получим

$$\begin{aligned} \langle \uparrow, \mathbf{k}, M | H_{e-ph}^+ | 0 \rangle &= \frac{eA_0 P_{cv}}{m_0c} \frac{1}{\sqrt{3}} F_{1/2}^M(\mathbf{k}), \\ \langle \downarrow, \mathbf{k}, M | H_{e-ph}^+ | 0 \rangle &= \frac{eA_0 P_{cv}}{m_0c} F_{3/2}^M(\mathbf{k}), \quad (6) \\ \langle \uparrow, \mathbf{k}, M | H_{e-ph}^- | 0 \rangle &= -\frac{eA_0 P_{cv}}{m_0c} F_{-3/2}^M(\mathbf{k}), \\ \langle \downarrow, \mathbf{k}, M | H_{e-ph}^- | 0 \rangle &= -\frac{eA_0 P_{cv}}{m_0c} \frac{1}{\sqrt{3}} F_{-1/2}^M(\mathbf{k}), \quad (7) \end{aligned}$$

где индекс $+$ ($-$) у оператора H_{e-ph} соответствует поляризации σ^+ (σ^-), $P_{cv} = \langle S | p_x | X \rangle$ — межзонный матричный элемент оператора импульса.

3. Спиновая ориентация электронов при возбуждении циркулярно поляризованным светом

Рассмотрим теперь оптическую ориентацию электронов циркулярно поляризованным светом в полупроводниках типа GaAs и квантовых ямах на их основе (оценки и численные расчеты будут проведены для GaAs) при возбуждении по схеме „заряженный акцептор—зона проводимости“ в условиях компенсации. Детально будет рассмотрена примесь замещения Mn_{Ga} , а результаты для немагнитного акцептора симметрии Γ_8 могут быть легко получены как один из предельных случаев центра Mn.

Для расчета спиновой ориентации носителей будем использовать стандартный для этих целей подход, основанный на методе матрицы плотности. При указанной схеме возбуждения выражение для матрицы фотогенерации (во 2-м порядке теории возмущений по величине

электрон-фотонного взаимодействия) при стационарном возбуждении светом частотой ω может быть записано в виде

$$\begin{aligned} G_{\alpha\alpha'} &= \frac{\pi}{6\hbar} \sum_{v,i} \langle \alpha | H_{e-ph} | v \rangle_i \langle \alpha' | H_{e-ph} | v \rangle_i^* \\ &\times \left[\delta \left(\hbar\omega - E_g - E_F - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} \right) \right. \\ &\left. + \delta \left(\hbar\omega - E_g - E_{F'} - \frac{\hbar^2 k'^2}{2m_c} \right) \right], \quad (8) \end{aligned}$$

где m_c — эффективная масса электрона в зоне проводимости, $|\alpha\rangle \equiv |s, \mathbf{k}, F, m_F\rangle$. Суммирование в (8) ведется по начальным состояниям с возможными проекциями v момента d -электронов и положениям примесей \mathbf{r}_i . Предполагается, что концентрация примесей невелика, в том смысле, что примеси находятся на таких расстояниях, что их волновые функции не перекрываются и потому вклад от каждой примеси в матрицу фотогенерации является аддитивным (такая ситуация реализуется при концентрациях акцепторов меньше или порядка 10^{18} см^{-3}). Вычисление матричных элементов проведено в лабораторной системе координат, так что индекс i показывает, что переход происходит с примеси с радиус-вектором \mathbf{r}_i . Каждый такой матричный элемент приобретает дополнительный множитель $e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}_i}$ по сравнению с матричными элементами, найденными в системе координат, начало которой совпадает с примесью (см. предыдущий раздел). Множитель $1/6$ соответствует равной вероятности возбуждения из состояния Mn с одной из возможных проекций $3d$ -электронов (состояние Mn^- считается неполяризованным). При выводе (8) мы не учитывали спиновое расщепление зоны проводимости, однако его необходимо принять во внимание при расчете спиновой релаксации.

Далее, будем предполагать, что электроны и дырки релаксируют независимо, причем дырки теряют свой спин гораздо быстрее. Рассмотрим отдельно матрицу фотогенерации для электронов зоны проводимости. Для этого необходимо в (8) взять след по квантовым числам, не затрагивающим состояния электрона, т.е. по F и m_F . Принимая во внимание формулу (4) и свойства коэффициентов Клебша–Гордана, получим

$$\begin{aligned} G_{s\mathbf{k}, s'\mathbf{k}'} &= \frac{\pi}{\hbar} \sum_{F=1}^4 \frac{2F+1}{24} \\ &\times \sum_{M,i} \langle s, \mathbf{k}, M | H_{e-ph} | 0 \rangle_i \langle s', \mathbf{k}', M | H_{e-ph} | 0 \rangle_i^* \\ &\times \left[\delta \left(\hbar\omega - E_g - E_F - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} \right) \right. \\ &\left. + \delta \left(\hbar\omega - E_g - E_{F'} - \frac{\hbar^2 k'^2}{2m_c} \right) \right]. \quad (9) \end{aligned}$$

Можно сказать, что матрица фотогенерации состоит из аддитивных вкладов от простых акцепторов с разными энергиями ионизации и различными весовыми вкладками, $(2F + 1)/24$. Матрица фотогенерации для случая немагнитного акцептора получается из (9), если положить энергии E_F равными и учесть при этом, что $\sum_{F=1}^4 (2F + 1)/24 = 1$.

Все предыдущие выражения носили общий характер, не зависящий от размерности изучаемой системы. Найденные в предыдущем разделе матричные элементы оптического перехода (6) и (7) соответствуют переходу акцептор–зона проводимости объемного полупроводника $A^{III}B^V$. Для перехода к квантовой яме следует учесть, что волновая функция электрона в этом случае отличается огибающей в z направлении. В случае объемного полупроводника это плоская волна $e^{ik_z z}$, которую следует заменить на некоторую пространственно ограниченную функцию, соответствующую дискретному спектру. Вид этой функции определяется непосредственно формой потенциала, ограничивающего движение в данном направлении. Будем описывать квантовую яму потенциалом жесткой стенки (бесконечно глубокая потенциальная яма) и рассмотрим только нижнюю подзону размерного квантования. Тогда огибающая задается функцией $\cos(k_z z)$, причем k_z в этом случае фиксировано, $k_z = k_0 = \pi/L$, где L — ширина квантовой ямы. Будем предполагать, что размер квантовой ямы не слишком мал, в том смысле, что характерный размер волновой функции акцептора остается все еще меньше ширины квантовой ямы. В этом случае расщеплением уровней акцептора за счет размерного квантования можно пренебречь и продолжать рассматривать состояния акцептора так же, как в объеме. В результате, чтобы получить матричные элементы для случая квантовой ямы, в выражениях (6), (7) необходимо сделать замену

$$\frac{1}{\sqrt{V^{1/3}}} F_m^M(\mathbf{k}) \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2L}} [F_m^M(\mathbf{k}_+) + F_m^M(\mathbf{k}_-)],$$

где $\mathbf{k}_{\pm} = (k_x, k_y \pm k_0)$, $V^{1/3}$ — размер объемного образца. Далее под вектором \mathbf{k} будем понимать волновой вектор в плоскости квантовой ямы $\mathbf{k} = (k_x, k_y, 0)$. Направление векторов \mathbf{k}_{\pm} будет задаваться тем же углом φ ($\text{tg } \varphi = k_y/k_x$), что и у вектора \mathbf{k} в плоскости квантовой ямы, а также полярным углом θ^{\pm} , для которого $\text{tg } \theta^{\pm} = \pm k/k_0$.

Будем считать, что примеси распределены в квантовой яме однородно, тогда после усреднения по положениям примесей электронная матрица фотогенерации может быть представлена (для поляризации σ^+) в виде

$$G_{\downarrow\mathbf{k}, \uparrow\mathbf{k}'}^+ = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \frac{eA_0 P_{cv}}{m_0 c} \right|^2 N \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \sum_{F=1}^4 \frac{2F+1}{24} \frac{2\pi}{3} \times [R_0^2(k_+) + R_2^2(k_+) - R_0(k_+)R_2(k_+)(3 \cos^2 \theta - 1)] \times \delta \left(\hbar\omega - E_g - E_F - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} - E_w \right), \quad (10)$$

$$G_{\downarrow\mathbf{k}, \downarrow\mathbf{k}'}^+ = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \frac{eA_0 P_{cv}}{m_0 c} \right|^2 N \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \sum_{F=1}^4 \frac{2F+1}{24} 2\pi \times [R_0^2(k_+) + R_2^2(k_+) + R_0(k_+)R_2(k_+)(3 \cos^2 \theta - 1)] \times \delta \left(\hbar\omega - E_g - E_F - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} - E_w \right), \quad (11)$$

где $\cos^2 \theta = k_0^2/(k^2 + k_0^2)$, N — концентрация заряженных акцепторов в квантовой яме; E_w — энергия дна электронной подзоны размерного квантования, отсчитываемая от дна зоны проводимости. Величины $R_{0,2}(k)$ для случая глубокого акцептора имеют вид

$$R_{0,2}(k) = C \left(\frac{1}{|E^*| + E_{hh}(k)} \pm \frac{1}{|E^*| + E_{lh}(k)} \right),$$

где $E_{hh}(k) = \hbar^2 k^2/2m_{hh}$, $E_{lh}(k) = \hbar^2 k^2/2m_{lh}$ — энергии в зоне тяжелых и легких дырок соответственно; m_{hh} , m_{lh} — соответствующие эффективные массы, C — нормировочная константа.

Отметим, что в квантовой яме электронная матрица фотогенерации диагональна по спиновым индексам, как и для случая возбуждения из зоны [16]. В случае возбуждения светом поляризации σ^- получим $G_{\uparrow\mathbf{k}, \uparrow\mathbf{k}'}^- = G_{\downarrow\mathbf{k}, \downarrow\mathbf{k}'}^+$, $G_{\downarrow\mathbf{k}, \downarrow\mathbf{k}'}^- = G_{\uparrow\mathbf{k}, \uparrow\mathbf{k}'}^+$.

Зная матрицу фотогенерации электронов, мы можем найти степень их ориентации в момент возбуждения

$$P = \frac{\text{Tr}[\sigma_z G]}{\text{Tr}G}, \quad (12)$$

где σ_i ($i = x, y, z$) — матрицы Паули.

Численный расчет частотной зависимости степени ориентации, использующий формулы (10)–(12), приведен на рис. 2. Следует отметить, что в случае возбуждения из состояния акцептора в квантовой яме степень ориентации превышает значение $P = 1/2$, известное для объемных полупроводников [8]. Это объясняется тем, что состояние акцептора в этом случае сформировано по большей части из состояний тяжелых дырок. Из рис. 2 видно, что степень ориентации всегда максимальна на краю возбуждения и убывает с ростом частоты. Это связано с тем, что при возбуждении электрона на дне подзоны направление вектора \mathbf{k}_{\pm} совпадает с осью z , и оптические переходы под действием σ^+ (σ^-) поляризованного света происходят с образованием дырки, сформированной в основном из состояний с $m = 3/2$ ($m = -3/2$). С увеличением энергии возбуждающего света у вектора \mathbf{k}_{\pm} появляется составляющая в плоскости $k_x k_y$, что приводит к подмешиванию состояний легких дырок с $m = \pm 1/2$ к тяжелым и соответственно к уменьшению степени ориентации.

Проанализируем степень ориентации на краю возбуждения P_0 , т.е. при частоте возбуждения, удовлетворяющей условию $\hbar\omega = E_g + E_{F=1} + E_w$, когда возбуждение происходит на дно электронной подзоны ($k = 0$) и с образованием дырки в основном состоянии акцептора

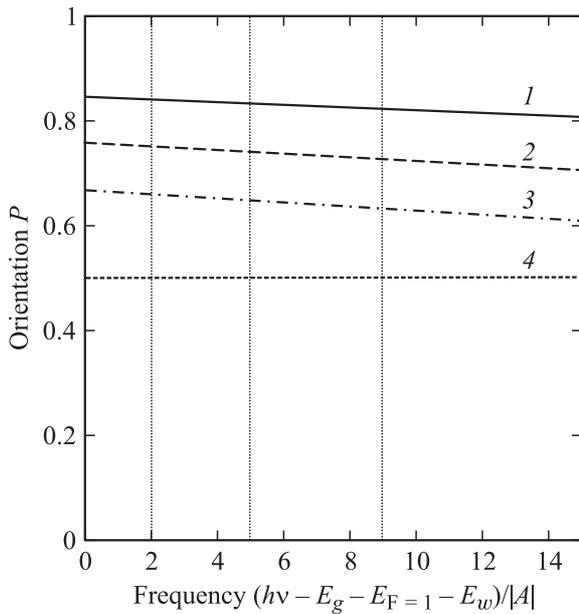


Рис. 2. Парциальная степень ориентации электронов в квантовой яме как функция частоты возбуждающего света при возбуждении дырки в состоянии $F = 1$. Кривые соответствуют различной ширине квантовой ямы (положению дна подзоны размерного квантования): 1 — $E_w = 200$, 2 — 100, 3 — 50 мэВ; 4 — объемный полупроводник. $|E^*| = 110$ мэВ, $|A| = 2$ мэВ. Вертикальные прямые соответствуют частотам, при которых начинается возбуждение состояний с $F = 2, 3, 4$. Парциальные кривые при возбуждении этих состояний сдвинуты вправо на 2, 5, 9 единиц соответственно относительно исходных кривых.

$F = 1$. В этом случае степень ориентации может быть записана в виде

$$P_0 = \frac{(|E^*| + \frac{m_c}{m_{lh}} E_w)^2 - 3(|E^*| + \frac{m_c}{m_{lh}} E_w)^2}{(|E^*| + \frac{m_c}{m_{lh}} E_w)^2 + 3(|E^*| + \frac{m_c}{m_{lh}} E_w)^2}. \quad (13)$$

Из (13) следует, что в широкой яме (мелкая подзона, $E_w \rightarrow 0$) $P_0 = 1/2$, в то время как в узких ямах ($E_w \rightarrow \infty$) величина P_0 ограничена значением $P_0^{\max} = [(m_{lh}/m_{hh})^2 - 3]/(m_{lh}/m_{hh})^2 + 3$. Максимальная степень ориентации $P_0 = 1$ может быть достигнута в пределе бесконечно малого отношения масс $m_{lh}/m_{hh} \rightarrow 0$. Кроме того, при использовании (13) следует помнить, что для реальных структур величина E_w ограничена высотой барьеров.

Оценки показывают, что для квантовых ям GaAs/AlGaAs (типичные значения масс $m_c = 0.067m_0$, $m_{hh} = 0.51m_0$, $m_{lh} = 0.085m_0$) при возбуждении с глубокого акцептора Mn (энергия ионизации 110 мэВ) и положении дна подзоны размерного квантования $E_w = 50$ мэВ степень ориентации при возбуждении составляет 0.67. В более узкой яме, где подзона размерного квантования лежит выше дна зоны проводимости на 100 мэВ, степень ориентации на краю возбуждения достигает уже 76%, при этом теоретический предел P_0^{\max}

составляет 98%. Однако следует отметить, что в узких ямах помимо ограничения на величину E_w встает также вопрос о применимости модели объемного акцептора.

В случае объемного полупроводника матрица фотогенерации будет уже недиагональной, а интересующие нас диагональные элементы будут отличаться от (10), (11) тем, что вместо эффективных импульсов \mathbf{k}_{\pm} в выражения будут входить настоящие \mathbf{k} , а угол θ будет просто полярным углом вектора \mathbf{k} . В этом случае не будет выделенного направленного импульса (как в квантовой яме) и после суммирования по \mathbf{k} получим, что степень ориентации при возбуждении равна 1/2 и не зависит от частоты, так же как и при возбуждении из валентной зоны.

4. Спиновая и энергетическая релаксация

В предыдущем разделе была изучена спиновая ориентация электронов зоны проводимости при возбуждении циркулярно поляризованным светом из состояний заряженного акцептора Mn^- . Вследствие обменного взаимодействия основное состояние акцептора расщеплено на 4 уровня, различающихся величиной полного момента F . Это означает, что при поглощении света с определенной частотой в зоне проводимости возникают электроны с различными энергиями. Кроме того, в следующем разделе мы изучим поляризацию люминесценции при переходе электрона со дна зоны проводимости на акцептор, поэтому мы должны учесть релаксацию электронов на дно зоны.

Максимальный разброс энергий электронов $E_{F=4} - E_{F=1} = 9|A|$ в зоне проводимости в момент возбуждения (если частота излучения такова, что задействованы переходы с участием всех возможных состояний дырки на акцепторе, $F = 1, 2, 3, 4$) составляет около 18 мэВ (при $|A| = 2$ мэВ). Таким образом, даже при величине энергии возбуждения, превышающей энергию края примесного поглощения на величину порядка 20–30 мэВ, в ориентации будут задействованы все состояния акцептора, но при этом основным механизмом релаксации по энергии можно считать рассеяние на акустических фононах, поскольку энергия оптического фонона в полупроводниках $A^{III}V^V$ несколько больше, например для GaAs она составляет 36 мэВ.

Релаксацию фотовозбужденных электронов удобно описывать в рамках кинетического уравнения для спиновой матрицы плотности (см., например, [17])

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial E} \left(\frac{E}{\tau_e} \rho \right) + \frac{i}{\hbar} [H_{so}, \rho] + \frac{\rho}{\tau_R} + \frac{\rho - \langle \rho \rangle}{\tau_0} = G, \quad (14)$$

где τ_e — время энергетической релаксации, τ_R — время жизни электрона по отношению к рекомбинации (как излучательной, так и безызлучательной), τ_0 — время релаксации импульса, G — матрица фотогенерации электронов (10), (11). Здесь по сравнению с [17] мы добави-

ли второе слагаемое, учитывающее энергетическую релаксацию, используя уравнение Фоккера–Планка. При этом предполагается, что диффузионный член мал и основной вклад определяется спонтанным испусканием акустических фононов [18], и считается, что процесс энергетической релаксации не зависит от спина. Третье слагаемое описывает спиновую релаксацию за счет прецессии в эффективном магнитном поле, определяемом спиновым расщеплением электронной подзоны (механизм Дьяконова–Переля [19,20]). Четвертое слагаемое учитывает процессы рекомбинации. Последнее слагаемое в левой части соответствует изотропизации матрицы плотности за счет процессов упругого рассеяния. Мы предполагаем для простоты, что упругое рассеяние изотропно и τ_0 не зависит от энергии. Угловые скобки соответствуют усреднению по направлениям импульса. Гамильтониан H_{so} описывает спиновое расщепление электронной подзоны. В случае симметричной квантовой ямы основным вкладом в спиновое расщепление является так называемый линейный по импульсу вклад Дрессельхауза [20], связанный с отсутствием центра инверсии у объемного материала [21]. В этом случае для квантовых ям, выращенных в направлении [001], гамильтониан H_{so} имеет вид

$$H_{so} = \frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma} \Omega_{\mathbf{k}}, \quad \Omega_{\mathbf{k}} = \frac{2\beta}{\hbar} (-k_x, k_y, 0), \quad (15)$$

где $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ — вектор матриц Паули, β — константа спин-орбитального взаимодействия Дрессельхауза, определяющая величину спинового расщепления электронной подзоны в квантовой яме. Координатные оси выбраны вдоль основных кристаллографических направлений, $x \parallel [100]$, $y \parallel [010]$.

Поскольку в общем случае электронная матрица плотности может быть записана в виде

$$\rho^e = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} a + S_z & S_x - iS_y \\ S_x + iS_y & a - S_z \end{pmatrix}, \quad (16)$$

мы приходим к следующим уравнениям, описывающим релаксацию компонент спина и функции распределения (средней концентрации) фотовозбужденных электронов:

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{S}} - \frac{\partial}{\partial E} \left(\frac{E}{\tau_\varepsilon} \mathbf{S} \right) - \Omega_{\mathbf{k}} \times \mathbf{S} + \frac{\mathbf{S}}{\tau_R} + \frac{\mathbf{S} - \langle \mathbf{S} \rangle}{\tau_0} \\ = \sum_{F=1}^4 \mathbf{g}^F(E) \delta(E - E_0^F), \end{aligned} \quad (17)$$

$$\dot{a} - \frac{\partial}{\partial E} \left(\frac{E}{\tau_\varepsilon} a \right) + \frac{a}{\tau_R} + \frac{a - \langle a \rangle}{\tau_0} = \sum_{F=1}^4 g_0^F(E) \delta(E - E_0^F). \quad (18)$$

Здесь $E_0^F = \hbar\omega - E_g - E_F - E_w$ — энергия фотовозбужденных электронов, отсчитываемая от дна подзоны, при возбуждении дырки в состояние с моментом F ; величины $\mathbf{g}^F(E)$ и $g_0^F(E)$ определяют темп генерации спина

и электронной плотности соответственно с энергией E в момент рождения и при возбуждении дырки в состояние с моментом F . Эти величины связаны простыми соотношениями с матрицей фотогенерации G , определяемой формулами (10), (11), $\sum_{F=1}^4 g_0^F(E) \delta(E - E_0^F) = \text{Tr}G$

и $\sum_{F=1}^4 \mathbf{g}^F(E) \delta(E - E_0^F) = \text{Tr}[\boldsymbol{\sigma}G]$, при этом мы говорим только о зависимости от энергии, а не от вектора \mathbf{k} , поскольку в (10) и (11) зависимость от направления \mathbf{k} отсутствует.

При стационарной накачке в условиях равновесия $\dot{\mathbf{S}} = 0$ и $\dot{a} = 0$, тогда, решая уравнения (17) и (18) с граничными условиями $a(E_0 + 0) = 0$, $\mathbf{S}(E_0 + 0) = 0$ (что соответствует отсутствию диффузии в энергетическом пространстве и учету только спонтанного излучения акустических фононов в уравнении типа Фоккера–Планка), получим

$$S_x = \frac{2\tau_0\beta k_y}{\hbar} S_z, \quad S_y = \frac{2\tau_0\beta k_x}{\hbar} S_z, \quad (19)$$

$$\begin{aligned} S_z = \sum_{F=1}^4 \frac{g_z^F(E_0^F) \tau_\varepsilon(E)}{E} \Theta(E_0^F) \\ \times \exp \left(-\tau_0 \int_E^{E_0^F} \frac{d\varepsilon \Omega_{\mathbf{k}}^2 \tau_\varepsilon}{\varepsilon} - \int_E^{E_0^F} \frac{d\varepsilon \tau_\varepsilon}{\varepsilon \tau_R} \right) \end{aligned} \quad (20)$$

и

$$a = \sum_{F=1}^4 \frac{g_0^F(E_0^F) \tau_\varepsilon(E)}{E} \Theta(E_0^F) \exp \left(-\int_E^{E_0^F} \frac{d\varepsilon \tau_\varepsilon}{\varepsilon \tau_R} \right). \quad (21)$$

Здесь $\Theta(x)$ — единичная функция Хевисайда. При решении уравнений (17), (18) учитывалась следующая иерархия времен релаксации: $\tau_0 \ll \tau_\varepsilon, \tau_R$.

Поскольку рассматриваемые фотовозбужденные электроны обладают относительно небольшой энергией (около 30 мэВ вблизи дна электронной подзоны), в дальнейшем пренебрежем зависимостью τ_ε и τ_R от энергии, тогда выражения (20), (21) преобразуются к виду

$$\begin{aligned} S_z = \sum_{F=1}^4 \frac{g_z^F(E_0^F) \tau_\varepsilon \Theta(E_0^F)}{E} \left(\frac{E}{E_0^F} \right)^{\tau_\varepsilon/\tau_R} \\ \times \exp \left(\frac{\tau_\varepsilon}{\tau_s(E)} - \frac{\tau_\varepsilon}{\tau_s(E_0^F)} \right), \end{aligned} \quad (22)$$

$$a = \sum_{F=1}^4 \frac{g_0^F(E_0^F) \tau_\varepsilon \Theta(E_0^F)}{E} \left(\frac{E}{E_0^F} \right)^{\tau_\varepsilon/\tau_R}, \quad (23)$$

где $\tau_s(E) = (8\beta^2 m_c \tau_0 E / \hbar^4)^{-1}$ — время спиновой релаксации электронов с энергией E .

Такого вида выражения легко интерпретировать. В случае $\tau_\varepsilon/\tau_R > 1$ при $E = 0$ получаем $S_z = 0$, $a = 0$,

т. е. на дне зоны нет носителей, что связано с их быстрой рекомбинацией. В противоположном случае $\tau_\varepsilon/\tau_R \leq 1$ обе величины расходятся при $E \rightarrow 0$, поскольку в этом случае электроны не успевают рекомбинировать и при стационарной накачке неограниченно накапливаются на дне зоны. Такого рода расходимости можно избежать, если принять во внимание уменьшение темпа генерации по мере накопления электронов в зоне. В нашем случае это соответствует учету конечности числа заряженных акцепторов. В действительности нас будут интересовать не сами эти величины, а их отношение — степень ориентации термализованных электронов, $P_t = S_z/a$. Эта величина уже конечна и, например, для случая Mn^0 при частотах, соответствующих возбуждению основного состояния $F = 1$ или для немагнитного акцептора симметрии Γ_8 , равна

$$P_t(E = 0) = P(E_0^1) \exp\left(-\frac{\tau_\varepsilon}{\tau_s(E_0^1)}\right). \quad (24)$$

Этот результат совпадает с общим результатом работы [18] при условии, что τ_ε не зависит от энергии.

Для асимметричных квантовых ям основным оказывается, как правило, другой вклад в спиновое расщепление зоны проводимости, известный как расщепление Рашбы [22]. В этом случае частота прецессии в эффективном магнитном поле имеет вид

$$\Omega_k = \frac{2\alpha}{\hbar} (k_y, -k_x, 0), \quad (25)$$

где α — константа спин-орбитального взаимодействия Рашбы. При этом картина спиновой релаксации качественно не меняется, а в приведенных формулах достаточно сделать замену $\beta \rightarrow \alpha$, $k_x \leftrightarrow -k_y$. Однако следует отметить, что, когда оба вклада в спиновое расщепление зоны проводимости становятся одного порядка, картина спиновой релаксации усложняется [23].

В случае объемного полупроводника спиновое расщепление зоны проводимости пропорционально k^3 [21], и для степени ориентации термализованных электронов следует ожидать такого же результата, как и при межзонном возбуждении [8,19]. Однако следует учесть, что в зоне проводимости могут возбуждаться электроны с различными энергиями из-за обменного расщепления состояния акцептора Mn^0 аналогично тому, как мы сделали это для квантовой ямы.

5. Поляризация люминесценции термализованных носителей

В данном разделе будет рассмотрена излучательная рекомбинация электронов со дна зоны проводимости с дырками на акцепторе Mn^0 и изучена степень циркулярной поляризации этого излучения. Мы предполагаем, что к моменту рекомбинации дырки уже потеряли свой спин, и рекомбинация происходит с участием основного состояния акцептора $F = 1$. Кроме того, следует

напомнить, что в частично скомпенсированных образцах p -типа рекомбинация может идти через акцепторы Mn^0 , не принимавшие участия в возбуждении, а потому изначально неполяризованные.

Степень циркулярной поляризации рекомбинационного излучения

$$\mathcal{P} = \frac{(d^+)^2 - (d^-)^2}{(d^+)^2 + (d^-)^2} \quad (26)$$

определяется компонентами поляризационного тензора [24]

$$(d^\pm)^2 = \sum_{\alpha, \alpha', v, i} \langle v | H_{e-ph}^\pm | \alpha \rangle_i \langle v | H_{e-ph}^\pm | \alpha' \rangle_i^* \rho_{\alpha\alpha'}, \quad (27)$$

где индекс α обозначает набор квантовых чисел $s, \mathbf{k}, F = 1, m_1$, характеризующий состояние электрона и дырки. Поскольку мы считали электроны и дырки релаксирующими независимо, то $\rho_{\alpha\alpha'} = \rho_{ss'}^e \rho_{m_1 m_1'}^h$, где $\rho_{ss'}^e$ — электронная матрица плотности непосредственно перед рекомбинацией. Дырочная матрица плотности имеет вид $\rho_{m_1 m_1'}^h = \frac{1}{3} \delta_{m_1 m_1'}$, так как мы считаем дырки неполяризованными. Множитель $1/3$ соответствует равной вероятности заселения состояний дырки с $m_F = 0, \pm 1$ основного состояния $F = 1$. Согласно (19), (20), для электронов на дне подзоны ($k \rightarrow 0$) матрица плотности содержит только диагональные элементы.

Тогда, воспользовавшись (26), (27), (4) и явным видом матричных элементов, получим для степени циркулярной поляризации люминесценции простое выражение

$$\mathcal{P} = \mp P_0 P_t. \quad (28)$$

Формула (28) дает степень поляризации при наблюдении люминесценции в направлении обратном направлению возбуждения, как это обычно бывает в эксперименте (знак $- (+)$ соответствует возбуждению светом поляризации $\sigma^+ (\sigma^-)$). При наблюдении люминесценции в произвольном направлении в (28) следует добавить дополнительный множитель $-\cos \eta$, где η — угол между направлением возбуждения и наблюдения люминесценции.

Как видно из (28), на краю возбуждения степень поляризации люминесценции равна квадрату степени ориентации электронов P_0 и может в достаточно узких квантовых ямах превышать 70%. Зависимость степени циркулярной поляризации люминесценции от частоты возбуждающего излучения показана на рис. 3. Из рисунка видно, что с ростом частоты возбуждающего излучения света степень циркулярной поляризации люминесценции убывает, что обусловлено частичной потерей спиновой ориентации при термализации электронов на дно зоны. Однако при частотах возбуждения, соответствующих включению переходов с образованием дырки на Mn^0 в возбужденных состояниях, происходит резкое увеличение поляризации фотолюминесценции.

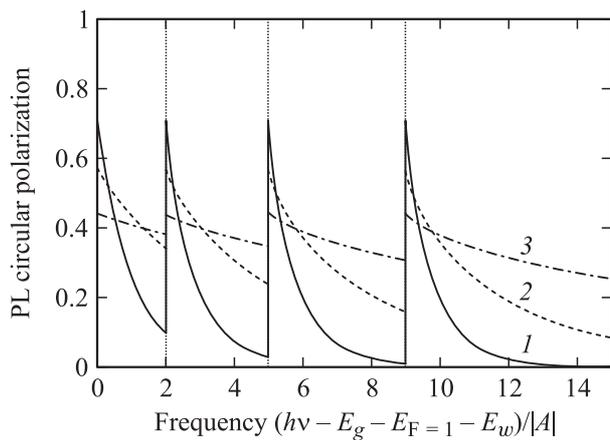


Рис. 3. Степень круговой поляризации люминесценции из квантовой ямы в зависимости от частоты возбуждения при рекомбинации электрона со дна двумерной подзоны и дырки в основном состоянии акцептора. Кривые соответствуют различной ширине квантовой ямы: 1 — $E_w = 200$ мэВ, $\beta = 39.0$ мэВ · Å; 2 — $E_w = 100$ мэВ, $\beta = 19.5$ мэВ · Å; 3 — $E_w = 50$ мэВ, $\beta = 9.8$ мэВ · Å. $|E^*| = 110$ мэВ, $|A| = 2$ мэВ, $\tau_e = 4 \cdot 10^{-12}$ с, $\tau_R = 5 \cdot 10^{-12}$ с, $\tau_0 = 5 \cdot 10^{-13}$ с. Вертикальные прямые соответствуют частотам, при которых начинается возбуждение состояний с $F = 2, 3, 4$.

Константа линейного по k спин-орбитального взаимодействия Дрессельхауза [20] возрастает с уменьшением ширины квантовой ямы (пропорциональна величине E_w). В соответствии с этим в узких квантовых ямах уменьшается время спиновой релаксации. Таким образом, несмотря на то что в узких квантовых ямах при возбуждении генерируется большой средний спин, степень циркулярной поляризации люминесценции может оказаться меньше. Особенно хорошо это видно в области высоких частот возбуждения (рис. 3). При численных расчетах использовались значения параметра β , соответствующие недавним экспериментальным данным [25].

Аналогично для асимметричных квантовых ям, где преобладает вклад Рашбы [22], величина спинового расщепления больше для узких квантовых ям, а значит, время спиновой релаксации короче и качественно следует ожидать похожих результатов.

В соответствии со сказанным в предыдущих разделах о степени ориентации электронов в объемном полупроводнике, степень циркулярной поляризации люминесценции в этом случае будет ограничена величиной $\mathcal{P} = 1/4$, аналогично случаю межзонных переходов вблизи края поглощения [8].

6. Заключение

Рассмотрена теория оптической ориентации электронов зоны проводимости при возбуждении циркулярно поляризованным светом из состояния заряженного акцептора в объемных полупроводниках $A^{III}B^V$ и квантовых ямах на их основе. Показано, что в объемных

полупроводниках степень спиновой ориентации электронов при возбуждении ограничена значениями $1/2$, как и при возбуждении зона–зона. В квантовых ямах степень ориентации превышает указанную величину и ограничена только конечной шириной квантовой ямы и конечностью отношения эффективных масс легкой и тяжелой дырки. Для квантовых ям GaAs/AlGaAs степень ориентации может достигать величины 85%. Такой рост степени ориентации обусловлен увеличением вклада тяжелых дырок в состояние дырки на акцепторе в квантовой яме, но расщепления уровня при этом не происходит. В зависимости от частоты возбуждающего света степень ориентации максимальна на краю возбуждения и незначительно убывает с ростом частоты. Показано, что степень циркулярной поляризации фотолюминесценции при рекомбинации электрона со дна зоны и дырки в основном состоянии акцептора в случае объемного полупроводника ограничена величиной $1/4$ (аналогично возбуждению из зоны), а для квантовой ямы возрастает и на краю возбуждения для реальных структур GaAl/AlGaAs может превышать 70%.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 12-02-90809-мол_рф_нр, 11-02-00348-а, 11-02-00699-а), Министерства образования и науки РФ (проект 2.2676.2011 по государственному заданию вузам) и Совета по грантам президента Российской Федерации для поддержки молодых российских ученых и ведущих научных школ (грант НШ-5442.2012.2).

Список литературы

- [1] *Оптическая ориентация*, под ред. Ф. Майера, Б.П. Захарчени (Л., Наука, 1989).
- [2] *Spin Physics in Semiconductors*, ed. by M.I. Dyakonov (Springer, Berlin, 2008).
- [3] Yu. Kusrayev, G. Landwehr (Guest eds). *Semicond. Sci. Technol.*, **23** (11), 110300 (2008). Special issue on optical orientation.
- [4] Г.Л. Бир, Г.Е. Пикус. *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках* (М., Наука, 1972).
- [5] D.M. Eagles. *J. Phys. Chem. Solids*, **16**, 76 (1960).
- [6] M. Berciu, R. Chakarvorty, Y.Y. Zhou, M.T. Alam, K. Traudt, R. Jakiela, A. Barcz, T. Wojtowicz, X. Liu, J.K. Furdyna, M. Dobrowolska. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 247202 (2009).
- [7] M. Bozkurt, V.A. Grant, J.M. Ulloa, R.P. Campion, C.T. Foxon, E. Marega, G.J. Salamo, P.M. Koenraad. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 042108 (2010).
- [8] М.И. Дьяконов, В.И. Перель. *ЖЭТФ*, **60**, 1954 (1971).
- [9] М.И. Дьяконов, В.И. Перель. *ФТП*, **7**, 2335 (1973).
- [10] Н.С. Аверкиев, А.А. Гуткин, Е.Б. Осипов, М.А. Решиков. *ФТТ*, **30**, 765 (1988).
- [11] V.F. Sapega, T. Ruf, M. Cardona. *Phys. Status Solidi B*, **226**, 339 (2001).
- [12] Ю.М. Демков, В.Н. Островский. *Метод потенциалов нулевого радиуса в атомной физике* (Л., Изд-во ЛГУ, 1975).
- [13] G. Lucovsky. *Solid State Commun.*, **3**, 299 (1965).
- [14] В.И. Перель, И.Н. Ясиевич. *ЖЭТФ*, **82**, 237 (1982).

- [15] A.M. Monakhov, K.S. Romanov, I.E. Panaiotti, N.S. Averkiev. *Solid State Commun.*, **140**, 422 (2006).
- [16] И.А. Меркулов, В.И. Перель, М.Е. Портной. *ЖЭТФ*, **99**, 1202 (1991).
- [17] Е.Л. Ивченко, Ю.Б. Лянда-Геллер, Г.Е. Пикус. *ЖЭТФ*, **98**, 989 (1990).
- [18] В.Н. Абакумов, В.И. Перель, И.Н. Яссиевич. *Безузлучательная рекомбинация в полупроводниках* (СПб., Изд-во ПИЯФ РАН, 1997).
- [19] М.И. Дьяконов, В.И. Перель. *ФТТ*, **13**, 3581 (1971).
- [20] М.И. Дьяконов, В.Ю. Качоровский. *ФТП*, **20**, 178 (1986).
- [21] G. Dresselhaus. *Phys. Rev.*, **100**, 580 (1955).
- [22] Ю.А. Бычков, Э.И. Рашба. *Письма ЖЭТФ*, **39**, 66 (1984).
- [23] N.S. Averkiev, L.E. Golub, M. Willander. *J. Phys.: Condens. Matter*, **14**, R271 (2002).
- [24] E.L. Ivchenko, G.E. Pikus. *Superlattices and Other Heterostructures. Symmetry and Optical Phynomena* (Springer, Berlin, 1997).
- [25] M.P. Walser, U. Siegenthaler, V. Lechner, D. Schuh, S.D. Ganichev, W. Wegscheider, G. Salis. *Phys. Rev. B*, **86**, 195309 (2012).

Редактор Т.А. Полянская

Optical orientation of electrons in compensated semiconductors

I.A. Kokurin*⁺, P.V. Petrov*, N.S. Averkiev*

* Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

⁺ Ogarev Mordovia State University,
430005 Saransk, Russia

Abstract The theory of the carrier optical orientation in compensated A^{III}B^V semiconductors and quantum wells is presented in the case of electron excitation from charged acceptor Mn⁻ state to conduction band. It is show that in GaAs/AlGaAs quantum well the electron spin orientation degree can reach 85%. Herewith the orientation degree increasing is not related to level splitting due to size quantization, but it occurs from heavy hole contribution increasing to acceptor state near defect center. It is shown that circular polarization degree of the photoluminescence, at recombination of electron from band bottom and the hole in acceptor ground state, can exceed 70%.