

03,09,12

Многозонная резонансная спектрометрия неупругого электронного рассеяния света и проявление сильного спин-орбитального взаимодействия в наноструктурах с квантовыми точками

© В.В. Топоров, Б.Х. Байрамов[¶]

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

[¶] E-mail: bairamov@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 23 марта 2023 г.

В окончательной редакции 4 апреля 2023 г.

Принята к публикации 4 апреля 2023 г.

Созданы высокочувствительные методы спектрометрии неупругого рассеяния света для детектирования отдельных фотонов в видимом и ближнем ИК-диапазонах спектра (0.4–1.35) μm . Выполнены прецизионные оптические измерения колебательных и электронных состояний наноструктур с квантовыми объектами, на примере квантово-размерных наногетероструктур (311)В *si*-GaAs/InAs с квантовыми точками InAs. Отличительной привлекательной особенностью таких структур с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 является наличие сильного спин-орбитального взаимодействия. При этом собственный момент дырок может эффективно взаимодействовать с электрическим полем падающей световой волны. Обнаружено, что такое взаимодействие вызывает интенсивную люминесценцию и неупругое рассеяние световой волны в ИК-области спектра 0.9–1.35 μm . В условиях резонансного возбуждения выявлена эффективная генерация неравновесной электрон-дырочной ($e-h$) плазмы с концентрациями $n = p = 1.0 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и $T_e = T_h = 25 \text{ K}$, в то время как температура решетки $T_L = 5.1 \text{ K}$. Обнаружены новые механизмы формирования аномально интенсивного интеграционного спектра мультиплексного неупругого рассеяния света довольно сложной формы, образуемой различными разделяемыми резонансными вкладками процессов квазиупругого рассеяния носителями заряда, рассеяния света акустическими плазмонами электрон-дырочной плазмы, а также неупругого внутри- и междуподзонного рассеяния света тяжелыми дырками. Установлено, что аномальное усиление интенсивности такого многозонного селективного резонансного рассеяния света более чем в 10^5 раз превышает интенсивность томсоновского рассеяния света на отдельных носителях заряда. Наблюдается согласие между оценочным расчетным и экспериментальным спектрами, причем большей частью для сложно интерпретируемой значительной ширины наблюдаемой линии рассеяния света. Показано, что новые механизмы различных вкладов образования рассеянного излучения фотонов являются важными диагностическими элементами, отчетливо проявляющимися в спектрах результирующего усиленного неупругого рассеяния света.

Ключевые слова: наноструктуры, квантовые объекты, резонансное рассеяние света носителями заряда, обменное взаимодействие, диагностика плазмы.

DOI: 10.21883/FTT.2023.05.55490.41

1. Введение

С точки зрения квантово-механических позиций процесс неупругого рассеяния света обусловлен переходом электронов атомов решетки из основного в возбужденное состояние, происходящее через промежуточные электронные состояния электрон-дырочных пар, под действием подающих на образец фотонов возбуждающего излучения. Соответственно, промежуточные электронные состояния играют основную роль, формируя квантовые пути, определяющие природу важных механизмов нерезонансного и резонансного поведения процессов рассеяния света, а также интерференции в возбуждающем и рассеянном каналах. В начале 1980-х годов в ФТИ им. А.Ф. Иоффе начались исследования нового типа неупругого резонансного рассеяния света. В отличие от традиционно исследуемого и обычно ин-

терпретируемого двухзонного механизма резонансного усиления интенсивности неупругого рассеяния света (см. например, [1–5]), было предсказано и открыто явление многозонного резонансного усиления интенсивности неупругого рассеяния света [6,7]. Вначале многозонный характер усиления был обоснован и экспериментально установлен для процесса неупругого резонансного рассеяния света Мандельштама–Бриллюэна акустическими фононами с волновыми векторами соответствующими точке Γ зоны Бриллюэна на примере кристаллов ZnSe, имеющих структуру цинковой обманки [6,7]. При этом, впервые был введен учет всех экситонных корреляций, как при внутри-, так и междуподзонных переходах между зоной проводимости Γ_6 , четырехкратно вырожденной валентной зоной Γ_8 и двукратно вырожденной зоной Γ_7 , отщепленной спин-орбитальным взаимодействием. К тому же, также впервые, в качестве

промежуточных виртуальных электронных состояний, вовлеченных в процессы рассеяния, рассматривались реальные экситонные состояния Ванье–Мотта, принадлежащие, как дискретным водородоподобным экситонным зонам, так и непрерывному спектру. Было выявлено, что полученные надежные и высокоточные экспериментальные данные зависимости интенсивности резонансного рассеяния света такими акустическими колебаниями решетки от энергии квантов возбуждающего излучения, полученные с высоким спектральным разрешением с помощью сканируемого многопроходного интерферометра Фабри–Перо, не достаточно хорошо описываются на основе широко используемой двухзонной модели рассеяния света, рассмотренной теоретически Лоудоном [1]. Затем, аналогичный подход и выводы, сделанные на основании работ [6,7] были расширены и подтверждены при подробном изучении процесса неупругого резонансного рассеяния света оптическими фононами, на примере кристаллов AgJ [8]. И в этом случае удалось четко установить [8], что полученные экспериментальные данные зависимости интенсивности неупругого резонансного рассеяния света оптическими колебаниями решетки от энергии квантов возбуждающего излучения также не достаточно хорошо описываются на основе двухзонной модели Лоудона [1]. При этом, теоретическая модель Лоудона не учитывает кулоновское взаимодействие промежуточными электронными состояниями. Позже их учет был осуществлен в работах Гангули и Бирмана [2] и Мартина [3]. Ими было учтено слабое экситон-фотонное взаимодействие и получено выражение для тензора неупругого (рамановского) резонансного рассеяния света, для механизмов деформационного потенциала и фрелиховского электрон-фононного взаимодействия. Аналогичные же расчеты были выполнены авторами работы [4] с использованием функций Грина. При этом во всех этих работах [1–5] принимался во внимание механизм неупругого резонансного рассеяния света с фундаментальным переходом только через одну валентную зону и одну зону проводимости. Такая модель резонансного рассеяния не учитывает кулоновского взаимодействия промежуточными электронными состояниями, рассматривая их как состояния несвязанной электрон-дырочной пары. Во введенной нами теории многозонного неупругого резонансного рассеяния света колебаниями решетки [6–8] в качестве промежуточных электронных состояний были подробно описаны не рассматривавшиеся ранее водородоподобные экситонные состояния, принадлежащие, как дискретным экситонным зонам, так и непрерывному спектру, а также высоколежащим валентным зонам [6–8].

В последующие годы теория многозонного неупругого резонансного рассеяния света и развитие в [6–8] подходы были использованы и подтверждены в работах [9,10]. В этих работах с учетом подходов, разработанных в [6–8], были пересчитаны результаты ранее выполненных исследований резонансного рассеяния света для ряда наиболее важных полупроводников группы

A^3B^5 [9,10]. В последствии активное расширение областей использования теории многозонного резонансного рассеяния света также подтвердило его состоятельность и пригодность для многих основных групп полупроводниковых материалов — от объемных (например [9,10]) до низкоразмерных наноструктур (например, [11]). Недавно многозонное резонансное рассеяние света локализованными оптическими фононами обнаружено в структуре изолированных нанокристаллических квантовых точек $nc\text{-Si/SiO}_2$ [12]. Также недавно нами показано, что в кристаллах алмаза, легированных азотом, формирование большого числа электронных уровней может обуславливать яркое проявление механизма многозонного резонансного рассеяния света [13–15]. Были представлены результаты исследований резонансного рассеяния света на оптических фононах для случая ансамбля оптически активных NV-центров в кристаллах алмаза с азотозамещенной вакансией. Кристаллы алмаза с такими центрами привлекают значительный интерес в связи с перспективами их использования в квантовых технологиях. Полученные данные [13–15] указывают на обнаружение сильного усиления интенсивности неупругого резонансного рассеяния света оптическими фононами. На примере монокристалла алмаза, ориентированного по оси (100) с содержанием примесей азота $[N_s]^0 < 1 \text{ ppm}$ было установлено, что определяющую роль играют процессы резонанса с двумя электронными переходами для оптически активных примесных центров азота: (1) с бесфононными линиями для нейтрального NV₀-центра при 575.468 nm во входном канале рассеяния при возбуждении излучением лазера с длиной волны $\lambda_i = 532.070 \text{ nm}$ и (2) для отрицательно заряженного NV⁻-центра при 637.874 nm в выходном канале рассеяния при возбуждении излучением лазера с $\lambda_i = 632.817 \text{ nm}$. Судя по измеренным значениям интенсивностей рассеяния света оптическими фононами, с учетом инструментальных поправок на энергетическую зависимость чувствительности спектрометра, спектральную ширину щелей, на оптическое поглощение и $(1/\lambda_i)^4$ -зависимость интенсивности рассеянного света, при возбуждении спектра излучением лазера с длиной волны $\lambda_i = 532.070 \text{ nm}$ было обнаружено необычное увеличение интенсивности линий резонансного рассеяния света оптическими фононами в более чем в 2.5 раза. При этом, удалось показать, что больший вклад в механизм резонансного усиления интенсивности рассеяния, вносит NV₀-центр во входном канале рассеяния [13–15].

Недавно нами также обнаружено многозонное резонансное рассеяние света оптическими фононами в гомоэпитаксиальном наномасштабном слое $n\text{-GaP}$, толщиной 70 nm, выращенном на проводящей сильнолегированной подложке кристалла $n\text{-GaP}$, ориентированной по оси [001]. В результате показано, что при комнатной температуре в спектре резонансного рассеяния света такого нанослоя (001) $n\text{-GaP}$ в образце $n\text{-GaP}/n\text{-GaP}$ (001) в сравнении со спектром высокоомного кристаллического образца (001) $si\text{-GaP}$, удалось обнаружить две

достаточно узкие линии, приписанные колебаниям поперечных $\text{TO}(\Gamma)$ фононов и высокочастотным продольным связанным плазмон-фононным $\text{LO}(\Gamma)+$ колебаниям. При этом установлено, что спектральные параметры $\text{LO}(\Gamma)+$ колебаний в нанослое $n\text{-GaP}$, и в подложке (001) $n\text{-GaP}$ существенно отличаются между собой, а также и от спектральных параметров линии $\text{LO}(\Gamma)$ продольных оптических фононов. Анализ выявленных строгих количественных особенностей спектральных параметров позволил впервые получить ценную информацию для наномасштабного эпитаксиального слоя (001) $n\text{-GaP}$ о высоком совершенстве кристаллической структуры с меньшей плотностью дислокаций и других структурных дефектов. Разработанные нами ранее методы определения основных электрических параметров полупроводников — концентрации n и подвижности μ свободных носителей заряда по спектрам $\text{LO}(\Gamma)+$ колебаний [16,17], позволили бесконтактным и неразрушающим способом определить их локальные значения. Полученные значения оказались

$$n_{\text{hepi}} = (3.25 \pm 0.1) \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

и подвижности

$$\mu_{\text{hepi}} = (40.0 \pm 0.1) \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

для гомоэпитаксиального слоя (001) $n\text{-GaP}$ в сравнении с $n_{\text{subs}} = (2.52 \pm 0.1) \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и $\mu_{\text{subs}} = (51.0 \pm 0.1) \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ для подложки (001) $n\text{-GaP}$ образца $n\text{-GaP}/n\text{-GaP}$ (001) [18,19]. При этом необходимо отметить, что на пути создания приборных структур на основе перспективных гомоэпитаксиальных слоев наномасштабной толщины, выращенных на сильнолегированных подложках, имеются вполне очевидные непреодолимые сложности определения степени совершенства кристаллической атомной структуры традиционными методами рентгеноструктурного анализа и исследования их электрических свойств времязатратными методами. Последние требуют приготовления омических контактов и проведения электрических измерений проводимости и эффекта Холла. В диапазоне частот от 600 до 800 cm^{-1} были выявлены достаточно узкие полосы довольно интенсивных линий рассеяния света второго порядка, связанные с различными комбинациями решеточных колебаний [19]. Установлено, что такие полосы обусловлены суммарными комбинациями и обертонами поперечных и продольных оптических фононов, с волновыми векторами соответствующими точкам Σ , K , X , L и Γ зоны Бриллюэна кристалла GaP. В целом, показано, что для всех вновь обнаруженных линий рассеяние света для гомоэпитаксиального слоя $n\text{-GaP}$ носит резонансный характер и обусловлено проявлением эффектов сильного экситон-фононного взаимодействия. Установлено, что такие взаимодействия обусловлены присутствием примесей азота, выявленных нами по спектрам фотолюминесценции. Интересно, что их присутствие существенно модифицирует хорошо известный

реальный энергетический спектр непрямых экситонов. Из этих представлений следует, что такой процесс прямо сопровождается формированием квазипрямых экситонов, образованных локализованными состояниями наиболее близких пар атомов азота [18,19]. В настоящей работе представлены результаты исследований, полученные при дальнейшем усовершенствовании спектроскопической методики детектирования слабых световых потоков отдельных фотонов в видимом и ИК-диапазонах спектра 0.4–1.35 μm . Выполненные исследования демонстрируют, что в гетеронаноструктурах с квантовыми точками на примере InAs в структуре $(311)\text{B}$ $si\text{-GaAs}/\text{InAs}$, формирование большого числа электронных уровней квантованных экситонов может обуславливать наиболее ярко выраженное проявление активности новых фундаментально важных механизмов многозонного резонансного рассеяния света. Одной из наиболее привлекательных отличительных особенностей таких полупроводниковых материалов с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 является сильная спин-орбитальная связь. Благодаря такой связи собственный момент дырок может эффективно взаимодействовать с электрическим полем падающей световой волны и приводить к ее эффективному рассеянию. На примере ансамбля квантовых точек, сформированных в гетероэпитаксиальной системе $(311)\text{B}$ $si\text{-GaAs}/\text{InAs}$, показано, что такое взаимодействие может вызывать сильное рассеяние световой волны носителями заряда и приводить к новым механизмам резонансного усиления интенсивности неупругого рассеяния света со специфичной абсолютной величиной сечения рассеяния и необычной формой спектральной линии.

2. Методика эксперимента

Экспериментально исследован ансамбль квантовых точек сформированный в гетероэпитаксиальной системе $(311)\text{B}$ $si\text{-GaAs}/\text{InAs}$. Он создан на основе спонтанного распада на когерентные островки сильно напряженного ультратонкого слоя InAs, выращенного на поверхности (311) GaAs. Для исследований использовались специально нелегированные наноструктуры ансамбля самоорганизованных квантовых точек. Выращивание таких нанослоев InAs осуществлялось на поверхности GaAs хорошо воспроизводимым методом молекулярно-пучковой эпитаксии на полуизолирующих подложках $si\text{-GaAs}$. Подбирались подложки проявляющие n -тип проводимости и ориентированные по плоскости $(311)\text{B}$. Прямое формирование островков квантовых точек InAs реализовывалось в соответствии с механизмом Странского–Крастанова. При этом сама активная область такой квантоворазмерной наноструктуры образовывалась из 10 рядов квантовых точек InAs. Они непосредственно создавались в результате последовательного осаждения слоев InAs, толщина которых составляла 1.8 монослоя. Такие монослои InAs были разде-

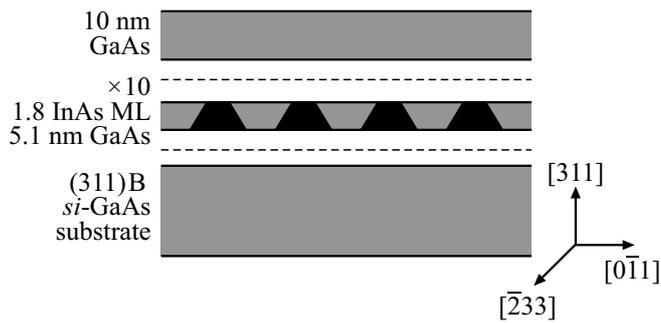


Рис. 1. Схематическое изображение ансамбля квантовых точек, сформированных в гетероэпитаксиальной системе (311)В *si*-GaAs/InAs.

лены слоями GaAs, толщина которых составляла 5.1 нм. В результате размеры квантовых точек в виде усеченного конуса составляли примерно 12 и 6 нм. Схема изучаемой структуры квантовых точек, сформированных в гетероэпитаксиальной системе (311)В *si*-GaAs/InAs представлена на рис. 1.

Прямое мониторингирование микроскопических механизмов перехода от двумерного однородного к формированию пространственно-упорядоченной трехмерной неоднородной ростовой моды слоев InAs отслеживалось в режиме реального времени по изменению характерной картины дифракции быстрых электронов в отражении от поверхности растущих слоев. Оптические исследования таких наноструктур выполнены с помощью развитой нами высокочувствительной методики спектроскопии детектирования единичных фотонов в ИК-диапазоне спектра 0.9–1.35 μm . Спектры неупругого рассеяния света в ближней ИК-области возбуждались с использованием высокостабильных твердотельных одномодовых лазеров непрерывного действия с активной средой на кристалле иттрий-алюминиевого граната, легированного неодимом, с длиной волны $\lambda_i = 1064 \text{ nm}$ (полуширина линии) 0.0004 nm (переход ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{11/2}$) и с $\lambda_i = 1318.70 \text{ nm}$ (переход ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{13/2}$). Использовалась геометрия рассеяния на прямой угол со скользящим лучом по поверхности образца параллельной плоскости (311)В, при параллельных $[z(yu) - z]$ — далее сокращенно (НН) и скрещенных $[z(yx) - z]$ (НУ) поляризациях падающего (первый индекс в круглых скобках) и рассеянного (второй индекс в круглых скобках) света; первый индекс перед (за) круглой скобкой указывает направление падающего (рассеянного) света, соответственно, а ось y соответствует направлению $[\bar{2}33]$ и ось x направлению $[0\bar{1}1]$. Для анализа спектрального состава рассеянного света использовался усовершенствованный светосильный двойной дифракционный спектрометр. Инструментальное разрешение $R = 3 \text{ cm}^{-1}$. Исследуемый образец размещался на медном хладопроводе металлического криостата. При этом, использовался специально встроенный калиброванный германиевый диод работающий в режиме датчика температуры. Измерения

спектров были выполнены при гелиевых температурах. Температура образца контролировалась с точностью до $\pm 0.1 \text{ K}$. Использовались плотности сфокусированного возбуждающего ИК-излучения на образце в диапазоне $P = (0.2 - 5.0) \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, что не вызывало заметного локального нагрева образца. Непрерывный контроль температуры образца осуществлялся одновременной регистрацией и определением частоты линий решеточных колебаний, соответствующих рассеянию света поперечными ТО(Г) и продольными ЛО(Г) оптическими фононами из подложки *si*-GaAs и линии излучения неоновой спектральной лампы. Помимо этого осуществлялась регистрация обнаруженных Стоксовых и анти-Стоксовых компонент спектра квазиупругого электронного рассеяния света центрированного на нулевой частоте, с анализом отношения их абсолютных интенсивностей. Осуществление прецизионной спектроскопической методики регистрации фотонов позволяет также реализовать важный прямой контроль и учет различных всевозможных внешних факторов, влияющих на процесс рассеяния света, в том числе и нежелательных. Например, совершенно незначительных флуктуаций мощности возбуждающих лазеров, температуры, давления и т.д.

3. Экспериментальные результаты исследований и их обсуждение

Экспериментальное осуществление прецизионного детектирования единичных фотонов, в ИК-диапазоне 0.9–1.35 μm позволяет выполнять высокоточные измерения колебательных и электронных состояний наноструктур с квантовыми объектами на примере квантовых точек в гетеронаноструктурах (311)В *si*-GaAs/InAs. Как уже отмечалось выше, основная отличительная особенность таких кубических полупроводников с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 определяется сильной спин-орбитальной связью. Благодаря этому собственный момент дырок может эффективно взаимодействовать с электрическим полем падающей волны. Такое взаимодействие может вызывать эффективное рассеяние световой волны возбуждающего лазерного излучения и приводить к обнаружению новых механизмов рассеяния света.

В спектре фотолуминесценции наноструктуры с квантовыми точками InAs, сформированными в системе (311)В *si*-GaAs/InAs, полученном с использованием непрерывного излучения He–Ne лазера с длиной волны возбуждающего излучения лазера $\lambda_i = 632.817 \text{ nm}$ ранее нами была обнаружена линия основного электронного перехода экситона при $E_{ex} = 1.1690 \pm 0.0032 \text{ eV}$ (при $T = 77 \text{ K}$) с полушириной (полной шириной на половине высоты) линии равной $41.58 \pm 0.08 \text{ eV}$ [20].

В настоящей работе в спектре фотолуминесценции, зарегистрированном при $T = 5.2 \text{ K}$, приведенном на рис. 2, максимум линии с высокой интенсивностью соответствует энергии основного состояния экситона

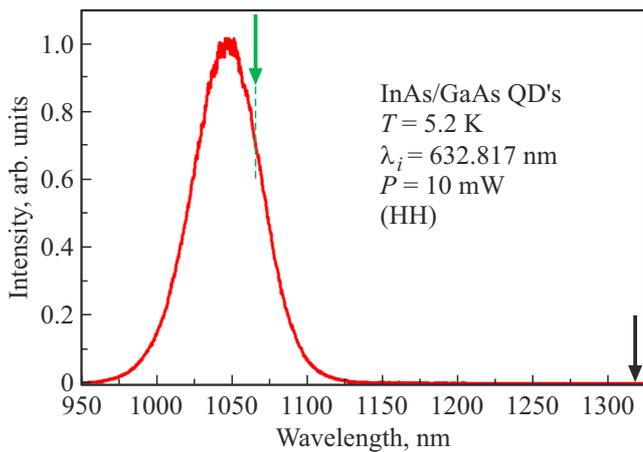


Рис. 2. Спектр фотолюминесценции квантовых точек InAs, сформированных в наноструктуре (311)В *si*-GaAs/InAs.

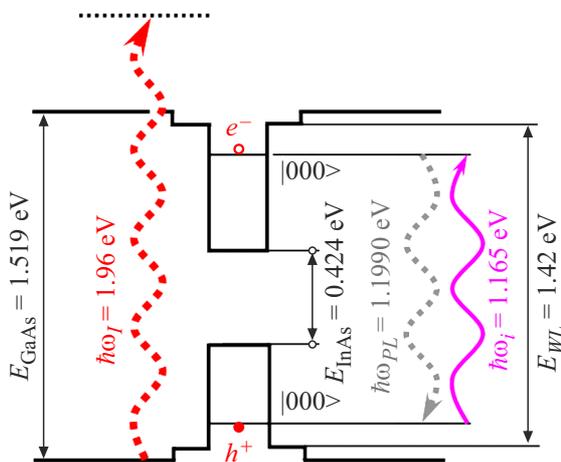


Рис. 3. Диаграмма дискретных энергетических уровней размерного квантования и переходов между ними для квантовых точек InAs, сформированных в системе (311)В *si*-GaAs/InAs при температуре образца $T_L = 5.2$ К. Селективное резонансное возбуждение с частотой $\hbar\omega_i = 1.1650$ эВ ($\lambda_i = 1064.15$ нм) показано сплошной волнистой стрелкой.

$E_{ex} = 1.1990 \pm 0.0021$ эВ (1033.86 нм) с рекордной полусириной линии равной 40.15 ± 0.06 меВ. Положения длин волн возбуждающего излучения лазеров при селективном резонансном с $\lambda_i = 1064.15$ и нерезонансном возбуждении с $\lambda_i = 1318.70$ нм указаны красной и черной стрелками, соответственно.

Таким образом, появляется возможность использовать непрерывное излучение неодимового лазера с $\lambda_i = 1064.15$ нм для резонансного фотовозбуждения экситонов в квантовых точках InAs и излучения лазера с $\lambda_i = 1318.70$ нм для нерезонансного.

Схематическая диаграмма дискретных энергетических уровней размерного квантования и излучательных переходов фотовозбужденных носителей при их эмиссии из КТ InAs в основное состояние экситона

($1s_e$ -состояния электрона и $1s_h$ -состояния дырки) в матрице GaAs, сформированных в гетеро-эпитаксиальной системе (311)В *si*-GaAs/InAs при температуре образца $T_L = 5.2$ К приведена на рис. 3. Здесь пунктирными волнистыми стрелками указаны частоты возбуждающего излучения He–Ne лазера с $\hbar\omega_i = 1.96$ эВ ($\lambda_i = 632.817$) нм и максимума линии фотолюминесценции с $\hbar\omega_{PL} = 1.1990$ эВ (1033.86 нм), соответствующей экситону.

Первые эксперименты, выполненные при резонансном возбуждении этого образца с длиной волны возбуждающего излучения лазера $\lambda_i = 1064$ нм (энергия квантов $\hbar\omega_i = 1.165$ эВ) при непосредственном возбуждении из слоя для исследуемой структуры при температуре $T_L = 5.1$ К, по сравнению со спектрами рассеяния света первого порядка поперечными $TO(\Gamma)$ фононами при 271.4 cm^{-1} и продольными оптическими $LO(\Gamma)$ фононами при 294.4 cm^{-1} полученными для подложки *si*-GaAs (при тех же экспериментальных условиях) выявили,

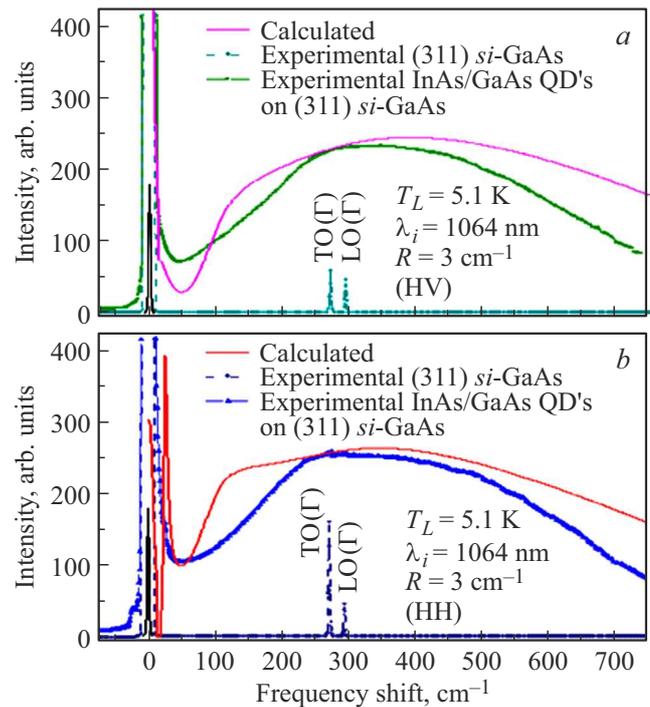


Рис. 4. Спектры неупругого рассеяния света, обнаруженные в гетеронаноструктурах с квантовыми точками InAs в структуре (311)В *si*-GaAs/InAs в диапазоне сдвига частот от -75 до 750 cm^{-1} при их селективном резонансном возбуждении с длиной волны $\lambda_i = 1064$ нм. Геометрия рассеяния на прямой угол со скользящим лучом по поверхности образца параллельной плоскости (311)В, при (а) скрещенных (HV) и при (б) параллельных (HH) поляризациях. Сплошная (красная) линия — результат расчетов для рассеяния света на фотовозбужденных дырках в полупроводниках с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 (см. текст далее). Штриховая линия — спектр рассеяния света первого порядка поперечными $TO(\Gamma)$ и продольными $LO(\Gamma)$ оптическими фононами, полученный при тех же экспериментальных условиях для подложки *si*-GaAs.

как это хорошо видно из спектра, представленного на рис. 4, что наряду с интенсивной низкочастотной частью спектра в диапазоне частот примерно до 50 cm^{-1} , наблюдается доминирующая довольно широкая полоса. Такая полоса сложным образом простирается до области сдвига частот более чем 750 cm^{-1} . Низкочастотная часть наблюдаемого спектра примерно, от -20 до 20 cm^{-1} , находится в обычно экспериментально труднодоступной области частот, непосредственно примыкающей к интенсивной возбуждающей линии лазера. Она убедительно демонстрирует обнаружение довольно интенсивного крыла центрированного на нулевой частоте спектра квазиупругого рассеяния света отдельными носителями заряда. Спектр такого рассеяния имеет лоренцевскую форму.

Для удобства рассмотрения, низкочастотные спектры квазиупругого рассеяния света в диапазоне ча-

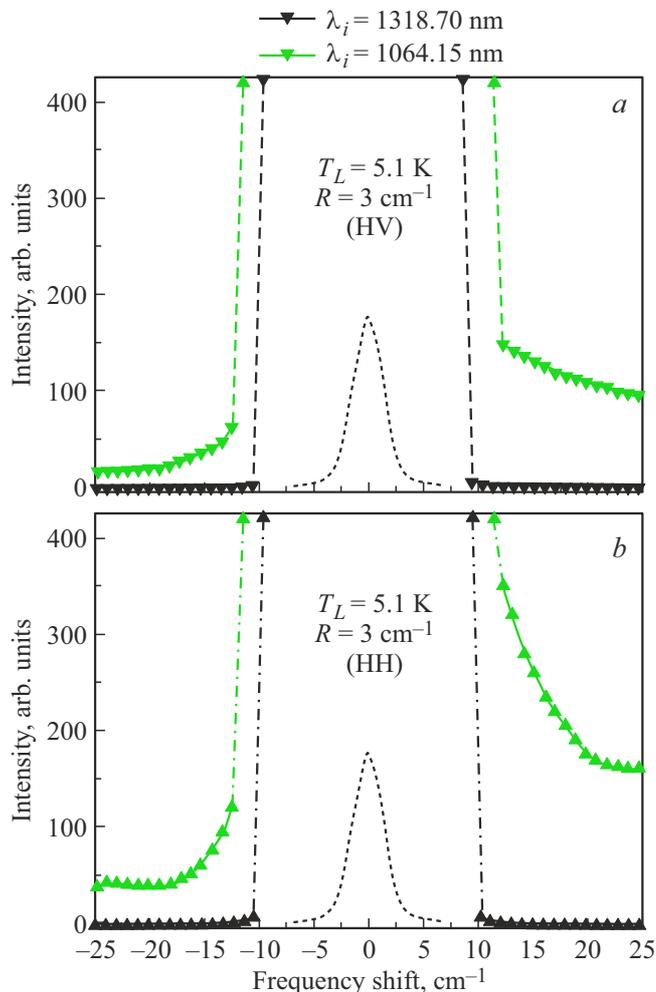


Рис. 5. Низкотемпературные спектры квазиупругого рассеяния света носителями заряда в структурах квантовых точек InAs, сформированных в системе (311)В *si*-GaAs/InAs, обнаруженные при селективном резонансном возбуждении с длиной волны излучения лазера $\lambda_i = 1064.15 \text{ nm}$ и при нерезонансном возбуждении с длиной волны излучения лазера $\lambda_i = 1318.70 \text{ nm}$.

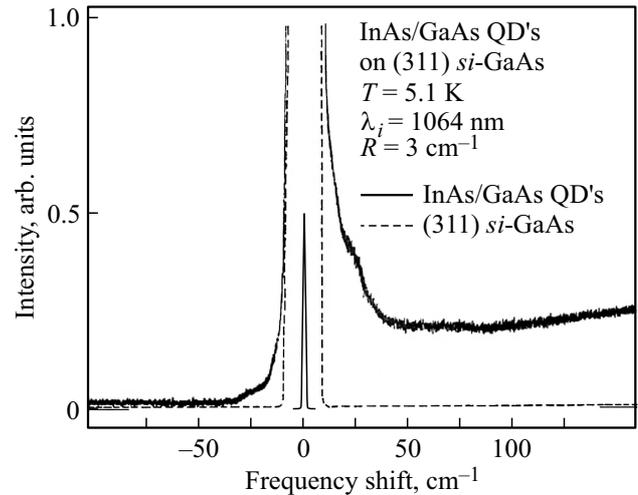


Рис. 6. Сравнение низкотемпературных экспериментальных спектров квазиупругого рассеяния света носителями заряда, в структурах с квантовыми точками InAs сформированными в системе (311)В *si*-GaAs/InAs и подложки (311)В *si*-GaAs (штриховая линия).

стот от -25 до 25 cm^{-1} в ближней ИК-области спектра при температуре образца $T_L = 5.1 \text{ K}$, обнаруженные при селективном резонансном возбуждении с длиной волны излучения лазера $\lambda_i = 1064.15 \text{ nm}$ и при нерезонансном возбуждении с длиной волны излучения лазера $\lambda_i = 1318.70 \text{ nm}$ представлены на рис. 5. Здесь представлена та же геометрия рассеяния на прямой угол со скользящим лучом по поверхности образца параллельной плоскости (311)В, при скрещенных (HV) и параллельных (HH) поляризациях падающего и рассеянного света, где экспериментальные точки представлены, треугольниками — светлыми (зелеными) для $\lambda_i = 1064.15 \text{ nm}$ и темными (черными) для $\lambda_i = 1318.70 \text{ nm}$.

На рис. 6 приведены низкотемпературные экспериментальные спектры квазиупругого рассеяния света носителями заряда и неупругого рассеяния света в структурах с квантовыми точками InAs сформированными в гетероэпитаксиальной системе (311)В *si*-GaAs/InAs, обнаруженные при селективном резонансном возбуждении с длиной волны излучения лазера $\lambda_i = 1064.15 \text{ nm}$ в диапазоне частот от -50 до 150 cm^{-1} при температуре образца $T_L = 5.1 \text{ K}$ (сплошная линия) и подложки (311)В *si*-GaAs (штриховая линия). Использовалась геометрия рассеяния на прямой угол со скользящим лучом по поверхности образца параллельной плоскости (311)В, при параллельных (HH) поляризациях падающего и рассеянного света. Эти спектры на рис. 6 получены при одних и тех же экспериментальных условиях (температура, уровень возбуждения, поляризация, спектральное разрешение и т.д.). Такое непосредственное сравнение спектров, представленных на рис. 6 прямо указывает на обнаружение их существенных

различий. Примечательно, что в низкотемпературном спектре исследуемого образца неожиданно обнаруживаются четко выраженные структуры при 25 cm^{-1} как в стоксовой, так и в анти-стоксовой областях. Причем такая особенность проявляется только в (НН) спектрах. Мы также установили, что абсолютные интенсивности и формы этих спектров очень чувствительны к плотности и температуре свободных носителей. На основе анализа наших недавних интерпретаций, которые были первоначально разработаны для объемных n -InP [14,15] и p -GaAs [6–8], а также в полном согласии с правилами отбора (будет рассмотрено далее) экспериментальное наблюдение такой спектральной особенности можно приписать колебаниям акустических плазмонов фотовозбужденной плазмы. Прямое наблюдение таких акустических плазмонов двухкомпонентной электрон-дырочной плазмы непосредственно демонстрирует создание в них коллективных возбуждений. При этом выявлено, что структуры акустических плазмонов наблюдаются только в низкотемпературных спектрах. Возможно, это связано с тем, что фотовозбужденные электроны и дырки могут быть фотоионизированы, создавая экситонное облако двухкомпонентной проводящей электрон-дырочной плазмы ($e-h$) в GaAs-матрице. Очевидно, что коллективные возбуждения и двухкомпонентная плазма могут существовать только в матрице GaAs с встроенными квантовыми точками InAs. Таким образом, обнаруженные в условиях резонансного возбуждения спектры акустических плазмонов позволили выявить эффективную генерацию неравновесной электрон-дырочной плазмы с концентрациями $n = p = 1.0 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и температурой $T_e = T_h = 25 \text{ K}$, в то время как температура решетки $T_L = 5.1 \text{ K}$.

Выше отмечалось, что благодаря сильной спин-орбитальной связи в структурах с квантовыми точками InAs, сформированными в гетероэпитаксиальной системе (311)В si -GaAs/InAs с вырожденными валентными зонами, при селективном резонансном возбуждении могут быть обнаружены и другие новые механизмы рассеяния света. При этом собственный момент дырок может эффективно взаимодействовать с электрическим полем падающей волны, приводя к процессам неупругого внутри- и междуподзонного рассеяния света тяжелыми дырками.

Далее покажем, что, обнаруженные новые механизмы могут давать вклады в формирование интеграционного спектра мультиплексного неупругого рассеяния света сложной формы. Из спектров, приведенных на рис. 4, хорошо видно, что такие спектры сложной формы могут формироваться благодаря наложению интенсивных разделяемых резонансных вкладов. Эти вклады, обусловленные, как уже рассмотренными процессами квазиупругого рассеяния и рассеяния акустическими плазмонами электрон-дырочной плазмы, так и процессами нового типа неупругого рассеяния света, локализованы в широком диапазоне сдвига частот, простирающихся от -25 до более чем 750 cm^{-1} . Рассматриваемые здесь эффекты

спин-орбитального взаимодействия малы для электронов в полупроводниках типа GaAs, InAs, где в зоне проводимости спин-орбитальная связь слабая. Однако они могут быть значительными для дырок в полупроводниковых материалах с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 [21–23]. Для дырок выполняется условие $m_T^* > m_L^*$. При этом число легких дырок массы m_L^* и, соответственно, их вклад в процесс неупругого рассеяния света пренебрежимо мал и, следовательно, определяющий вклад вносят тяжелые дырки. Для концентрации дырок $N \ll (m_T^* \Delta)^{3/2} / \hbar^3$, $\omega_i \ll E_g / \hbar$, Δ — энергия спин-орбитального расщепления валентной зоны, m_T^* — эффективная масса тяжелых дырок, $E_g = E_{g\Gamma}$ — прямая ширина запрещенной зоны полупроводника в точке Γ зоны Бриллюэна (для InAs $E_{g\Gamma} = 0.417 \text{ eV}$), гамильтониан определяющий неупругое рассеяние света в диапазоне частот $\omega = \omega_i - \omega_s \ll \Delta / \hbar$ можно записать в виде

$$H_{\text{int}} = e^2 / 2mc^2 \mathbf{A}_i \mathbf{A}_k \mu_{ik}(\mathbf{J}). \quad (1)$$

Здесь m — масса свободного электрона, \mathbf{A} — векторный потенциал излучения, $\mu_{ik}(\mathbf{J})$ — определяется матрицами операторов \mathbf{J}_i проекции собственного момента дырки как

$$\mu_{ik}(\mathbf{J}) = \gamma_1 \delta_{ik} \mathbf{1} - 2/3 \gamma_2 (3J_i^2 - \mathbf{J}^2) \delta_{ik} - \gamma_3 (1 - \delta_{ik})(\mathbf{J}_i \mathbf{J}_k + \mathbf{J}_k \mathbf{J}_i). \quad (2)$$

Здесь $\mathbf{1}$ — единичный оператор, γ_1, γ_2 , и γ_3 — параметры гамильтониана Латтинжера, определяемого матрицами операторов \mathbf{J}_i проекции собственного момента дырки $\mu_{ik}(\mathbf{J})$, где \mathbf{p} — квазиимпульс. Обнаруженные спектры неупругого рассеяния света, локализованные в широком диапазоне сдвига частот и простирающиеся до более чем 750 cm^{-1} могут быть обусловлены процессами внутри- и междуподзонных переходов тяжелых дырок, которые могут наблюдаться в ближней ИК-области. Обнаружение таких закономерностей потребовало экспериментальной реализации острого резонансного возбуждения спектров в ближней ИК-области. Отметим, что подходы к построению теории междуподзонного рассеяния света валентными зонами в полупроводниках впервые были рассмотрены в работе Ивченко и Аронова [24].

Для дальнейшего обсуждения и обобщения обнаруженных новых экспериментальных данных с необычно большой величиной сечения и формой спектра неупругого рассеяния света, а также для подтверждения выявленных новых механизмов рассеяния можно попытаться учесть основные определяющие вклады в сечение неупругого рассеяния интеграционного спектра мультиплексного процесса неупругого рассеяния света сложной формы, образуемого различными разделяемыми резонансными вкладками. Такие вклады могут возникать благодаря особенностям зонной структуры исследуемых квантовых точек InAs в системе (311)В si -GaAs/InAs. Нами найдено, что для всего этого оказывается необходимым и достаточным представить полное выражение для сечения рассеяния света в виде алгебраической

суммы сечений рассеяния света трех слагаемых для следующих рассмотренных механизмов:

1. квазиупругого рассеяния света фотовозбужденными носителями заряда,
2. рассеяния света акустическими плазмонами электрон-дырочной плазмы,
3. неупругого внутри- и междуподзонного рассеяния света тяжелыми дырками.

Тогда полное выражение для сечения рассеяния света для кубической точечной группы симметрии с учетом каждого из перечисленных механизмов рассеяния света, можно, соответственно, записать в следующем виде [21–29]:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\Sigma}{d\omega d\Omega} = & r_0^2 \frac{3n}{2\varepsilon_{Fh}} \frac{\hbar\omega}{(1 - \exp(\frac{\hbar\omega}{T}))} \left\{ \frac{9\gamma_3^2}{8} \left[1 - \left(\frac{\omega}{qV_F} \right)^2 \right]^2 \right. \\ & + \frac{(\mathbf{e}_I \mathbf{e}_S)^2}{L(\omega/qV_F)} + \frac{1}{8} \sqrt{\frac{\hbar\omega}{\gamma_2\varepsilon_{Fh}}} \\ & \times \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \left\{ \frac{f\left(\hbar\omega \frac{\gamma_1 - 2\gamma_2 g(\theta, \phi)}{4\gamma_2 g(\theta, \phi)}\right) - f\left(\hbar\omega \frac{\gamma_1 + 2\gamma_2 g(\theta, \phi)}{4\gamma_2 g(\theta, \phi)}\right)}{\sqrt{g(\theta, \phi)}} \right\} \\ & \times \left[\gamma_3^2 P(\theta, \phi) I_{\Gamma_{25}}(\mathbf{e}_I, \mathbf{e}_S) + \gamma_2^2 Q(\mathbf{e}_I, \mathbf{e}_S) \right] \sin\theta d\theta d\phi \\ & - \left. \frac{(qr_{FTl})^2 m_e}{\pi m_h} (\mathbf{e}_I \mathbf{e}_S)^2 \operatorname{Im} \varepsilon^{-1}(q, \omega) \right\}. \quad (3) \end{aligned}$$

Здесь $r_0 = e^2/mc^2$ — классический радиус электрона, Ω — телесный угол, $\gamma_1 = 20$, $\gamma_2 = 8.5$ и $\gamma_3 = 9.2$ [28], ε_{Fh} — энергия Ферми для дырки, $\mathbf{e}_I, \mathbf{e}_S$ — вектора поляризации для падающего и рассеянного света, $\omega = \omega_I - \omega_S \ll \Delta/\hbar$ — стоксовое смещение частоты, а Δ — энергия спин-орбитального расщепления валентной зоны $\Delta = 0.39$ eV [30], $\mathbf{q} = \mathbf{k}_I - \mathbf{q}_S$ — волновой вектор, переданный светом электронной системе при рассеянии, $f(\varepsilon)$ — функция распределения Ферми, m_h — эффективная масса тяжелых дырок, $L(x) = (\pi x)^2 + 4(1 - x \operatorname{Arth}x)^2$, (Arth — hyperbolic tangent function), зависящие от угла функции $g(\theta, \phi)$, $P(\theta, \phi)$ и $Q(\theta, \phi)$ и зависящие от поляризации функции $I_{\Gamma_{25}}(\mathbf{e}_I, \mathbf{e}_S)$ и $I_{\Gamma_{12}}(\mathbf{e}_I, \mathbf{e}_S)$ можно найти в обзорах [22,23]. Эти функции описывают два независимых так называемых $I_{\Gamma_{25}}$ и $I_{\Gamma_{12}}$ спектра для $\mathbf{e}_I = (1\bar{1}0)/\sqrt{2}$, $\mathbf{e}_S = (110)/\sqrt{2}$, и для (100) , $\mathbf{e}_S = (010)$ соответственно.

В результирующем выражении (3) с учетом кулоновского взаимодействия между электронами и дырками, когда промежуточными состояниями будут дискретные экситонные состояния, каждое из слагаемых для указанных механизмов рассеяния света должно содержать

резонансный множитель [5,7,9,21,22]:

$$R_{ex} = \hbar\omega_i / [E_{ex}^2 - (\hbar\omega_i)^2] [(E_{ex}^2 + \Delta)^2 - (\hbar\omega_i)^2], \quad (4)$$

где Δ — энергия спин-орбитального расщепления валентной зоны. Такой множитель в условиях острого резонанса $\hbar\omega_i \sim E_{ex}$ может приводить к большому наблюдаемому усилению интенсивности для каждого рассматриваемого механизма рассеяния с учетом внутри- и междуподзонных переходов между зоной проводимости Γ_6 , четырехкратно вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 и двукратно вырожденной зоной Γ_7 , отщепленной спин-орбитальным взаимодействием. При этом интегральная интенсивность такого обнаруженного процесса рассеяния оказалась аномально усиленной — более чем в 10^5 раз превышающей интенсивность томсоновского рассеяния на носителях заряда, также отчетливо обнаруживаемого в наблюдаемых спектрах.

Сравнение полученных экспериментальных данных для формы линии интеграционного спектра мультиплексного неупругого рассеяния света сформированной благодаря наложению интенсивных разделяемых резонансных вкладов с оценочными расчетными спектрами, приведенными на рис. 4, Штриховыми линиями, показывает хорошее согласие, причем большей частью для сложно интерпретируемой значительной ширины наблюдаемой линии неупругого рассеяния света.

4. Заключение

В настоящей работе показано, что на основе созданных высокочувствительных методов лазерной спектроскопии неупругого рассеяния света для детектирования отдельных фотонов в видимом и ИК-диапазоне спектра (0.9–1.35 μm) удастся выполнить прецизионные оптические исследования колебательных и электронных состояний наноструктур с квантовыми объектами, на примере кантовых точек в гетеронаноструктурах (311)B *si*-GaAs/InAs. Показано, что отличительная особенность таких структур с вырожденной валентной зоной симметрии Γ_8 определяется сильным спин-орбитальным взаимодействием, когда собственный момент дырок может эффективно взаимодействовать с электрическим полем падающей волны. Экспериментально установлено, что такое взаимодействие вызывает рассеяние световой волны и приводит к новым ранее не наблюдавшимся механизмам рассеяния света. В условиях реализации резонансного возбуждения в ИК-области выявлена интенсивная генерация неравновесной электрон-дырочной плазмы с концентрациями $n = p = 1.0 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и температурой $T_e = T_h = 25$ К, в то время как температура решетки $T_L = 5.1$ К. Выявлены новые механизмы формирования аномально интенсивного интеграционного спектра мультиплексного неупругого рассеяния света сложной формы. Показано, что такая форма спектра может образоваться благодаря проявлениям различных резонансных вкладов процессов квазиупругого электрон-

ного рассеяния и рассеяния акустическими плазмонами электрон-дырочной плазмы, а также неупругого внутри- и междуподзонного рассеяния света тяжелыми дырками в ближней ИК-области. Выявлено, что аномальное резонансное усиление интенсивности такого рассеяния более чем в 10^5 раз превышает интенсивность томсоновского рассеяния на носителях заряда для объемного материала. Установлено, что наблюдается согласие между расчетным и экспериментальным спектрами, причем большей частью для сложно интерпретируемой формы и значительной ширины обнаруженной спектральной линии неупругого рассеяния света.

В целом полученные результаты уникальных фотофизических свойств твердотельной многокомпонентной плазмы квантовых точек InAs в матрице GaAs показывают, что установленные новые резонансные механизмы различных вкладов образования рассеянного излучения фотонов являются важными диагностическими элементами, отчетливо проявляющимися в спектрах результирующего неупругого электронного рассеяния света. Такие результаты открывают новые возможности для реализации возможных оптических схем управления спиновыми состояниями к широкому кругу новых экспериментов и технологических приложений. Они представляют интерес для развития важных перспективных направлений полупроводниковой спинтроники, квантовой оптики и метрологии, поскольку значительно повышают аналитические возможности оптической спектроскопии. Они также важны для создания элементной базы квантово-информационных технологий и представляют интерес и для решения таких приоритетных фундаментальных и прикладных задач современной физики, как разработка особо контрастных источников однофотонного ИК-излучения и разработка новых подходов к спектроскопической диагностике плазмы.

Благодарности

Авторы выражают искреннюю признательность В.А. Войтенко за многочисленные полезные обсуждения полученных результатов и проведенных оценок формы спектральных линий.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

- [1] R. Loudon. Proc. R. Soc. A **275**, 218 (1963).
- [2] A.K. Ganguly, J.L. Birman. Phys. Rev. **162**, 806 (1967).
- [3] R.M. Martin. Phys. Rev. B **4**, 3676 (1971).
- [4] R. Zeyher, T. Chiu-Sen, J.L. Birman. Phys. Rev. B **4**, 1725 (1974).
- [5] Light Scattering in Solids. Topics in Applied Physics / Ed. M. Cardona, G. Guntherodt. Springer, Berlin, Heidelberg, N.Y. (1974). 543 p.
- [6] B.H. Bairamov, A.V. Gol'tsev, E. Karaiamaki, R. Laikho, T. Levola, V.V. Toporov. Sov. Phys. Solid State **25**, 739 (1983).
- [7] E. Karajamaki, R. Laiho, T. Levola, B.H. Bairamov, A.B. Gol'tsev, V.V. Toporov. Phys. Rev. B **29**, 4508 (1984).
- [8] B.H. Bairamov, N.V. Lichkova, A.B. Gol'tsev, V.D. Timofeev, V.V. Toporov. Sov. Phys. Solid State **29**, 244 (1987). [Fiz. Tverd. Tela, **29**, 754 (1987)].
- [9] A. Cantarero, C. Trallero-Giner, M. Cardona. Phys. Rev. B **39**, 8388 (1989).
- [10] C. Trallero-Giner, K. Syassen. Phys. Status Solidi B **247**, 182 (2010).
- [11] R.P. Miranda, M.I. Vasilevskiy, C. Trallero-Giner. Phys. Rev. B **74**, 115317 (2006).
- [12] Ф.Б. Байрамов, В.В. Топоров, Е.Д. Полоскин, Б.Х. Байрамов, С. Röder, C. Sprung, C. Bohmhammel, G. Seidel, G. Irmer, A. Lashkul, E. Lahderanta, Y.W. Song. ФТП **47**, 607 (2013).
- [13] B.H. Bairamov, V.V. Toporov, F.B. Bayramov, A.D. Bouravleuv, J.T. Holmi, H. Lipsanen, V.P. Popov, I.N. Kuprianov, Yu.N. Pal'anol, D. Braukmann, J. Debus, D.R. Yakovlev, M. Bayer. Sibir. Phys. J. **13**, 3, 73 (2018).
- [14] Б.Х. Байрамов, В.В. Топоров Ф.Б. Байрамов. ФТП **53**, 85 (2019).
- [15] B.H. Bairamov, V.V. Toporov, F.B. Bayramov. Semicond. **53**, 16, 2129 (2019).
- [16] B.H. Bairamov, A. Heinrich, G. Irmer, V.V. Toporov, E. Ziegler. Phys. Status Solidi B **119**, 227 (1983).
- [17] G. Irmer, V.V. Toporov, B.H. Bairamov, J. Monecke. Phys. Status Solidi B **119**, 595 (1983).
- [18] Б.Х. Байрамов, В.В. Топоров, Ф.Б. Байрамов. ФТТ **63**, 1, 80 (2021).
- [19] Б.Х. Байрамов. ФТТ **63**, 2, 213 (2021).
- [20] Y.A. Kuznetsova, F.B. Bayramov, V.V. Toporov, B.H. Bairamov, A.P. Glinushkin, V.Yu. Rud. IOP Conf. Ser.: Earth Environ. Sci. 1096 012032 (2022).
- [21] В.А. Войтенко. ФТТ **26**, 1002 (1984).
- [22] В.А. Войтенко. ФТТ **28**, 3091 (1986).
- [23] B.H. Bairamov, I.P. Ipatova, V.A. Voitenko. Phys.Rep. **229**, 5, 221 (1993).
- [24] А.Г. Аронов, Е.Л. Ивченко ЖЭТФ **57**, 247 (1969).
- [25] Б.Х. Байрамов, В.А.Войтенко, И.П. Ипатова. УФН **163**, 5, 67 (1993).
- [26] В.А. Войтенко. Письма в ЖЭТФ **61**, 91 (1995).
- [27] B.H. Bairamov, I.P. Ipatova, V.A. Voitenko, V.K. Negoduykov, V.V. Toporov. Phys. Rev. B **50**, 20, 14923 (1994).
- [28] B.H. Bairamov, V.A. Voitenko, V.V. Toporov, B.P. Zakharchenya, M. Henini, A.J. Kent. Nanotechnology **11**, 4, 314 (2000).
- [29] V.A. Voitenko. Private Commun.
- [30] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. J. Appl. Phys. **89**, 11, 5815 (2001).

Редактор Ю.Э. Кумаев