

## Наблюдение эффектов обменного взаимодействия при оптической ориентации экситонов в AlGaAs

А. В. Ефанов, К. С. Журавлев<sup>1)</sup>, Т. С. Шамирзаев, В. Кельнер<sup>2)</sup>†, Х. Пашер<sup>2)</sup>†

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

†Physikalisches Institut, Universität, Bayreuth, F.R.G.

Поступила в редакцию 27 марта 2003 г.

Исследована экситонная люминесценция в слоях AlGaAs при межзонном возбуждении циркулярно-поляризованным светом. На кривых деполаризации люминесценции в поперечном магнитном поле (эффект Ханле) обнаружены пики, расположенные симметрично относительно точки  $H = 0$ . Показано, что эффект вызван пересечением уровней тонкой структуры в магнитном поле. Из сравнения теоретических и экспериментальных зависимостей определена величина обменного расщепления уровней объемного экситона, а также времена рекомбинации и спиновой релаксации.

PACS: 71.35.Ji, 72.25.Rb

В последнее время интенсивно изучаются эффекты тонкой структуры экситонных уровней в системах с пониженной размерностью [1, 2]. В таких системах величина обменного расщепления существенно возрастает по сравнению с объемным случаем за счет большего перекрытия волновых функций электрона и дырки. Это позволяет видеть различные проявления тонкой структуры при не слишком низких температурах. В настоящей работе подобные эффекты наблюдались на объемных экситонах в кристаллах  $Al_xGa_{1-x}As$  в условиях нерезонансного возбуждения с помощью циркулярно поляризованного света.

В работе исследовалось влияние поперечного магнитного поля на степень циркулярной поляризации экситонной люминесценции (эффект Ханле) в высокочистых образцах  $Al_xGa_{1-x}As$ . Слои выращивались на установке Riber-32P с помощью метода молекулярно-лучевой эпитаксии на полуизолирующих подложках GaAs с ориентацией (100). Содержание Al варьировалось в пределах  $0.09 < x < 0.295$ . Толщина слоев составляла 2.5 мкм. Для уменьшения поверхностной рекомбинации слои были покрыты буферными слоями AlAs толщиной 25 нм. Подробности метода выращивания описаны нами ранее [3].

Измерения проводились при температуре сверхтекучего гелия 1.6 К. Стационарная фотолюминесценция возбуждалась с помощью He-Ne-лазера с плотностью мощности порядка  $3 \text{ Вт/см}^2$ . Направление циркулярной поляризации переключалось с помощью электрооптического модулятора в диапазо-

не частот от 100 Гц до 100 кГц. Люминесценция регистрировалась в геометрии обратного рассеяния при фиксированном положении анализатора с помощью монохроматора с фокусным расстоянием 0.64 м. Монохроматор соединялся с двухканальным счетчиком фотонов, синхронизированным с модулятором.

На всех спектрах люминесценции преобладала линия свободного экситона [3]. Степень циркулярной поляризации люминесценции регистрировалась в максимуме линии. Кривые Ханле были измерены в образцах  $Al_xGa_{1-x}As$  с  $x = 0.09, 0.15$  и  $0.21$  (рис.1). В отсутствие магнитного поля степень циркулярной поляризации люминесценции всех образцов составляла величину порядка 8% (кривые для  $x = 0.09$  и  $x = 0.15$  сдвинуты по вертикали). При измерениях поляризация возбуждающего света переключалась с частотой 1 кГц. При указанных составах знак  $g$ -фактора электрона пролегал область как положительных, так и отрицательных значений.

Как видно из рис.1, кривые Ханле имеют сложную форму. Они представляют собой наложение двух контуров с ширинами, отличающимися приблизительно в 10 раз. При составе  $x = 0.15$  наблюдаются два дополнительных пика, расположенных симметрично относительно нулевого магнитного поля. Указанные пики не связаны с динамической поляризацией ядер, так как измерения на частоте 100 кГц не изменяют форму кривых. В образце с  $x = 0.21$  пики явно не выражены, а на их месте наблюдаются слабые отклонения от монотонного поведения кривых. В образце с  $x = 0.09$  вместо пиков видна широкая “подкладка”.

Для объяснения полученных результатов использовалась следующая модель. Мы исходили из пред-

<sup>1)</sup>e-mail: zhur@thermo.isp.nsc.ru

<sup>2)</sup>W. Kellner, H. Pascher.

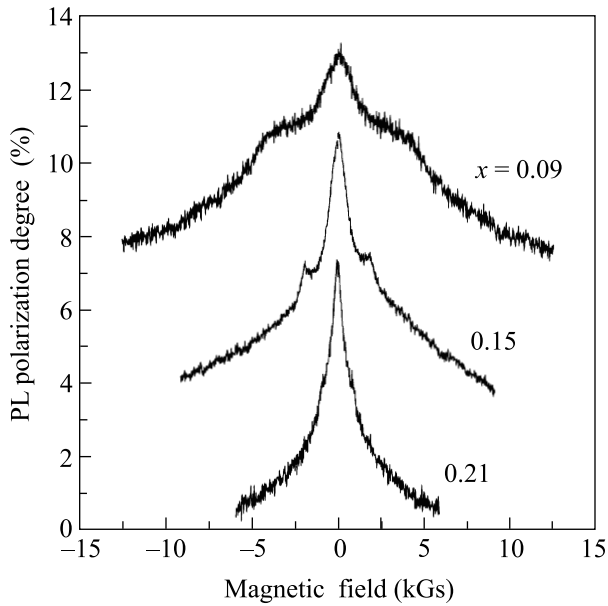


Рис.1. Зависимости степени циркулярной поляризации люминесценции  $P_c$  от магнитного поля в образцах  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с составами  $x = 0.09, 0.15, 0.21$  (графики при  $x = 0.09$  и  $x = 0.21$  сдвинуты по вертикали)

положения, что основная часть экситонов образуется по бимолекулярному механизму в результате связывания свободных электронов и дырок. В силу условий эксперимента интенсивности фотовозбуждения не могли быть достаточно слабыми. По этой причине процесс образования горячих экситонов по близнецовому механизму (линейный по интенсивности накачки) оказывался здесь менее эффективным. Предполагалось, что при низкой температуре люминесценция определяется связанными экситонами, сосредоточенными в области хвоста плотности состояний, обусловленного флуктуациями состава в неупорядоченном твердом растворе.

Картина формирования спектра люминесценции в неупорядоченном твердом растворе в общем случае достаточно сложна [4, 5]. В настоящей работе предполагается, что имеет место локализация центра массы экситонов во флуктуационных ямах. В этом случае внутренняя структура экситонной волновой функции может быть близкой к состоянию свободного экситона. В пользу предположения о слабости флуктуаций потенциала говорит малость ширины линии экситонной люминесценции, составляющей в эксперименте величину порядка 1 мЭВ.

В предлагаемой модели спиновая ориентация экситонов возникает в ходе двухкаскадного процесса. На первой стадии происходит рождение свободных электронов и дырок в результате прямого

межзонного оптического перехода. В зависимости от состава твердого раствора при фиксированной частоте накачки кинетическая энергия фотовозбужденных электронов в зоне проводимости попадает как в пассивную зону, так и в зону, превышающую ее на величину до десятка энергий оптических фононов. В этих условиях за время энергетической релаксации электроны сохраняют свою спиновую ориентацию. Фоторожденные дырки, напротив, ее полностью утрачивают.

На второй стадии каскада, более медленной, образуются экситоны. В наших образцах практически отсутствует канал безызлучательной рекомбинации [3]. По этой причине время жизни свободных носителей целиком определяется процессом их ухода в экситоны. За время связывания электронов и дырок в экситоны сами электроны не теряют своей спиновой ориентации.

В указанных выше предположениях динамика спина электронов  $\mathbf{S}_e$  описывается уравнением

$$\frac{d\mathbf{S}_e}{dt} = \boldsymbol{\Omega}_e \times \mathbf{S}_e - \frac{\mathbf{S}_e}{T_e} + \mathbf{s}_e G, \quad (1)$$

где  $G$  – интенсивность фотогенерации,  $\mathbf{s}_e$  – вектор среднего значения спина фотовозбужденного электрона,  $\boldsymbol{\Omega}_e = g_e \mu_B \mathbf{B} / \hbar$ ,  $\mu_B$  – магнетон Бора,  $g_e$  – гиромагнитное отношение. Время релаксации  $T_e$  определяется равенством  $T_e^{-1} = \tau_b^{-1} + \tau_{es}^{-1}$ , в котором  $\tau_b$  – время связывания в экситон,  $\tau_{es}$  – время электронной спиновой релаксации. Стационарное число электронов  $N_e$  в отсутствие процесса термической диссоциации экситонов дается равенством  $N_e = \tau_b G$ .

Кинетику связанных экситонов мы описываем с помощью метода матрицы плотности [6]. Гамильтониан экситона в магнитном поле  $\mathbf{H}$  берется в виде

$$H = \frac{\Delta}{4} (\mathbf{J}^2 - 2) + \frac{1}{2} \mu_B (g_e \boldsymbol{\sigma} \mathbf{H} + 2g_h \mathbf{j} \mathbf{H}), \quad (2)$$

Здесь  $g_e$  и  $g_h$  –  $g$ -факторы электронов и дырок,  $\mathbf{j}$  – оператор момента дырки ( $j = 3/2$ ),  $\boldsymbol{\sigma}$  – матрицы Паули,  $\mathbf{J}$  – оператор полного момента экситона,  $\Delta$  – величина обменного расщепления между уровнями экситона с полными моментами  $J = 1, 2$ .

Уравнение для матрицы плотности экситона  $\rho$  имеет структуру

$$-\left(\frac{\partial \rho}{\partial t}\right)^r - \left(\frac{\partial \rho}{\partial t}\right)^s + \frac{i}{\hbar} [H, \rho] = \tilde{G}. \quad (3)$$

Первый член в левой части учитывает рекомбинацию. В нем вводятся два времени  $\tau_1$  и  $\tau_2$  для уровней с  $J = 1, 2$  и время недиагональной релаксации, определяемое равенством  $\tau_{12}^{-1} = (\tau_1^{-1} + \tau_2^{-1})/2$ . Аналогично работе [6], мы предполагаем, что спин экситона

релаксирует в основном за счет флуктуаций спина дырки. Соответственно, второе слагаемое в уравнении (3) характеризуется только одним временем  $\tau_s$ . В указанном подходе предполагается, что температура велика по сравнению величиной  $\Delta$ .

Матрица  $\tilde{G}$  в (3) описывает генерацию экситонов. В соответствие с принятой выше моделью она может быть взята в виде произведения матрицы плотности неполяризованных дырок на матрицу плотности электронов:

$$\tilde{G} = \frac{1}{8}G(1 + 2s\sigma). \quad (4)$$

Здесь  $\mathbf{s} = \mathbf{S}_e/N_e$  – вектор, численно равный среднему спину свободного электрона. В отличие от работы [6] нами учитывается поворот такого вектора в магнитном поле, определяемый уравнением (1).

На основании предложенной модели нами были проведены численные расчеты степени циркулярной поляризации люминесценции  $P_c$  в поперечном магнитном поле. Изначально предполагалось, что величина релаксационного уширения уровней  $\hbar/\tau$ , где  $\tau^{-1} \sim \tau_1^{-1} + \tau_s^{-1}$ , достаточно мала по сравнению с обменным расщеплением  $\Delta$ . В этом случае могут проявляться подробности тонкой структуры. Рассматривалось соотношение времен  $\tau_1 \sim \tau_s \ll \tau_2$ . Для спина фотовозбужденных электронов бралось максимально возможное значение  $s_e = -0.5$ .

На рис.2 представлены результаты расчетов для твердого раствора с  $x = 0.15$ . Начальная часть

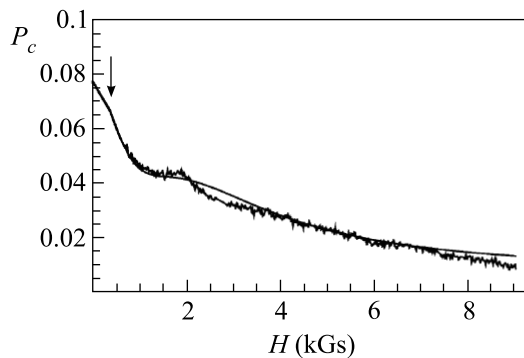


Рис.2. Экспериментальные и теоретические зависимости  $P_c(H)$  для  $x = 0.15$  (кривая с шумами – экспериментальная). Стрелкой отмечено место изменения наклона кривых

кривой, включая боковой пик, соответствует деполаризации экситона. Область сильного поля отвечает прецессии спина свободных электронов. Последнее обстоятельство выглядит не совсем обычно, так как времена жизни и спиновой релаксации свободных электронов обычно достаточно велики ( $> 1$  нс).

Напротив, именно центральный пик, скорее, следовало бы связывать с электронами. На самом деле здесь существенную роль играет малость  $g$ -фактора электрона:  $g_e \approx 0.1$  при  $x = 0.15$  [7]. В оценку характерной ширины лоренцевского хвоста  $\delta H$  входит произведение  $g_e \mu_B T_e \delta H / \hbar \sim 1$  и, таким образом, большая величина  $T_e$  частично компенсируется малостью  $g_e$ .

Возрастание поляризации люминесценции при конечном поле мы связываем со сближением или пересечением (в зависимости от знака фактора  $g_e$ ) определенной группы экситонных уровней. На рис.3 построены соответствующие кривые в случае  $x =$

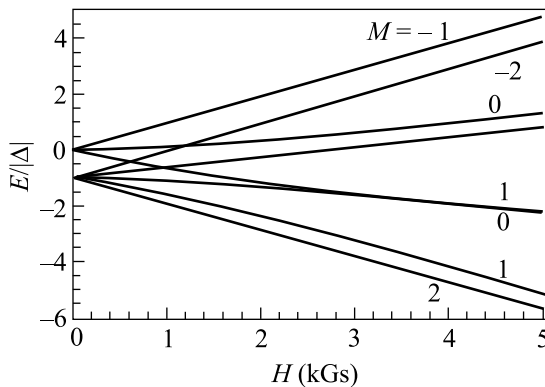


Рис.3. Расщепление уровней экситона в магнитном поле. Графики построены для  $g_e = 0.1$  и  $g_h = -2$  и  $\Delta = -18$  мкэВ

$= 0.15$ . Спектр гамильтониана (2) находится в аналитическом виде. Его уровни классифицируются по проекции полного момента  $M$  на магнитное поле. Из рисунка видно, что в области пика оказывается близкой пара уровней с  $M = 0$  и  $M = 1$ , происходящих, соответственно, из состояний с полными моментами  $J = 2$  и  $J = 1$  в нулевом магнитном поле. При определенных условиях вклад указанных уровней в степень поляризации люминесценции становится основным.

Механизм такого явления может быть пояснен в простейшем случае, когда времена рекомбинации равны, то есть  $\tau_1 = \tau_2 = \tau$ . Решение уравнения на матрицу плотности в этом случае может быть выписано в явном виде. Элементы матрицы плотности, вычисленные по точным волновым функциям уровней гамильтониана (2) с энергиями  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$ , пропорциональны  $\rho_{12} \sim [i(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \hbar/T]^{-1}$ , где  $T^{-1} = \tau^{-1} + \tau_s^{-1}$ . Эти величины вычисляются в базисе состояний с определенной проекцией момента экситона на магнитное поле. По этой причине диагональные по номеру уровня элементы матрицы плотности не дают вклада в циркулярную поляризацию люминесценции в направлении, перпендикулярном маг-

нитному полю. Поляризация люминесценции определяется как раз недиагональными элементами, величина которых зависит от расстояния между уровнями  $\Delta\varepsilon = |\varepsilon_1 - \varepsilon_2|$ . Если для некоторой пары уровней это расстояние получается меньшим, чем параметр  $\hbar/T$ , а все остальные уровни оказываются удаленными друг от друга на гораздо большее расстояние, то вклад последних в поляризацию оказывается малым по параметру  $\hbar/\Delta\varepsilon T \ll 1$ .

Расчет показывает, что при фиксированной ориентации спина свободных электронов  $S_e$  должен появляться широкий боковой пик. Большая протяженность такого пика обусловлена малостью  $g$ -фактора электрона. Учет поворота спина свободных электронов в магнитном поле значительно уменьшает ширину пика. Однако скорость спада поляризации получается все же более медленной, чем на экспериментальных кривых. Более быстрый спад поляризации по сравнению с расчетным мог бы быть связан с процессами ускорения релаксации при большом расщеплении уровней, не учитываемыми в предлагаемой модели.

Сравнение экспериментальных и теоретических зависимостей для образца с  $x = 0.15$  дает величину  $\Delta \approx 18$  мкэВ, согласующуюся с известными данными для короткодействующей части обменного расщепления в объемном экситоне [8]. Времена рекомбинации экситона получаются равными  $\tau_1 = 50$  пс и  $\tau_2 = 4$  нс, время спиновой релаксации  $\tau_s = 60$  пс. В области центрального пика кривой Ханле наблюдается характерный излом в поле, определяемом оценкой  $g\hbar\mu_B H\tau_s/\hbar \sim 1$  (на рис.2 он отмечен стрелкой). Изменение наклона кривой здесь соответствует переходу между двумя приближенными асимптотиками, рассмотренными в работе [6] в случае большого обменного расщепления экситонных уровней  $\Delta \gg \hbar/T$  и  $\tau_1 < \tau_s \ll \tau_2$ . Расчет с помощью приближенных формул [6] хорошо описывает кривые Ханле в слабом поле.

Времена релаксации электронов оказываются равными  $\tau_b = 0.9$  нс и  $\tau_{es} = 2.1$  нс. Найденная величина времени жизни электронов  $\tau_b$  согласуется с тем, что в эксперименте реализуется случай не слишком низкой плотности электрон-дырочных пар. Именно для него в данных образцах обычно наблюдается долговременная кинетика затухания экситонной люминесценции.

Отметим, что измеряемое время спиновой релаксации, по-видимому, может характеризовать процес-

сы энергетической релаксации экситонов в области ниже края подвижности. В этой области идет конкуренция между процессами излучательной рекомбинации и скольжения вниз по энергии за счет туннелирования экситонов между локализованными состояниями с участием фононов [5]. При неупругом туннелировании неизбежно происходит спиновая релаксация дырки, обусловленная спин-орбитальным взаимодействием в валентной зоне.

В образце с  $x = 0.09$  величина  $g_e = -0.07$ . Наилучшее согласие с экспериментальными кривыми получается при  $\Delta = 15$  мкэВ и временах релаксации  $\tau_1 = 30$  пс и  $\tau_s = 50$  пс. В этом случае из-за малости  $g$ -фактора электрона и более короткого времени жизни экситона структура с боковым пиком размывается в широкую "подкладку" под центральным пиком. В образце с  $x = 0.21$  величина  $g_e = 0,2$ . Хорошее согласие получается при  $\Delta = 8$  мкэВ,  $\tau_1 = 60$  пс и  $\tau_s = 110$  пс. При данном значении  $g$ -фактора область пересечения упоминавшейся выше группы уровней лежит в слабом поле, где уже сказывается вклад всех остальных зеemanовских уровней. Причина большого разброса в величине  $\Delta$  в данных образцах не ясна и требует подробного изучения.

В заключение можно отметить, что в данной работе методом оптической ориентации наблюдались проявления тонкой структуры объемного экситона в материалах типа GaAs и была независимо измерена величина обменного расщепления.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 01-02-16967).

1. С. В. Гупалов, Е. Л. Ивченко, ФТТ **42**, 1976 (2000).
2. E. Blackwood, M. J. Snelling, and R. T. Harley, Phys. Rev. **B50**, 1426 (1994).
3. K. S. Zhuravlev, A. I. Toropov, T. S. Shamirzaev, and A. K. Bakarov, Appl. Phys. Lett. **76**, 1137 (2000).
4. А. А. Клочихин, С. А. Пермогоров, А. Н. Резницкий, ФТТ **39**, 1170 (1997).
5. L. E. Golub, S. V. Ivanov, E. L. Ivchenko et al., Phys. Stat. Sol.(b) **205**, 203 (1998).
6. Г. Е. Пикус, Г. Л. Бир, ЖЭТФ **67**, 788 (1974).
7. C. Weisbuch and C. Hermann, Phys. Rev. **B15**, 816 (1977).
8. W. Ekardt, K. Löscher, and D. Bimberg, Phys. Rev. **B20**, 3303 (1979).