

УДК 537.9; 538.915; 538.958

## ВЛИЯНИЕ СПИНОВОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ ЭКСИТОНОВ НА ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР ГЕТЕРОСТРУКТУР GaAs/AlGaAs

Е. В. Кожемякина, К. С. Журавлев

*Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,  
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13  
E-mail: kozhemyakina@isp.nsc.ru*

Рассматриваются проблемы эволюции энергетического положения максимума линии фотолюминесценции свободных экситонов в высококачественных гетероструктурах GaAs/AlGaAs после оптического возбуждения короткими лазерными импульсами при высоких уровнях оптического возбуждения  $5 \cdot 10^{14}$ – $2 \cdot 10^{18}$  см<sup>-3</sup>. Обсуждается влияние экранирования кулоновского и межэкситонного обменного взаимодействий. Данные эффекты давали поправки к энергии уровня свободных экситонов разного знака, при этом второй эффект был чувствителен к степени ориентации спинов экситонов и проявлялся в расщеплении положений максимума энергии экситонов с проекциями углового момента +1 и -1. Величина расщепления пропорциональна плотности экситонов и степени их циркулярной поляризации и достигает 1,5 мэВ.

*Ключевые слова:* арсенид галлия, экситоны, нестационарная фотолюминесценция, формирование экситонов, обменное взаимодействие.

**Введение.** Известно, что при поглощении фотона в полупроводнике образуются электрон-дырочные пары, которые при достаточно низкой температуре газа носителей заряда связываются в экситоны. Высокие плотности оптического возбуждения меняют картину. При низкой температуре системы возможна конденсация Бозе — Эйнштейна [1]. Более высокая температура вызывает рост влияния экранирования кулоновского взаимодействия. Оно проявляется в сдвиге ширины запрещённой зоны и изменении энергии связи экситонов [2], а при очень высокой плотности оптического возбуждения приводит к переходу Мотта, т. е. формированию электрон-дырочной плазмы [3]. При этом растёт влияние обменных эффектов. Так, спиновое межэкситонное взаимодействие ведёт к тому, что при высокой плотности оптического возбуждения вблизи перехода Мотта экситоны уже не могут рассматриваться как бозоны, так как фермионы, принадлежащие разным экситонам, начинают чувствовать друг друга, что означает отталкивание согласно принципу Паули [4]. Этот эффект является достаточно слабым, однако может модифицировать энергетические уровни экситонов.

Цель данной работы — изучение влияния экранирования кулоновского и межэкситонного обменного взаимодействий на энергетические уровни свободных экситонов в относительно толстых (2,5 мкм) высокочистых слоях GaAs и тройных твёрдых растворах Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As с мольной долей алюминия  $x = 0,0015; 0,03; 0,054; 0,09; 0,15$ , выращенных на установке "Riber-32P" методом молекулярно-лучевой эпитаксии на полуизолирующих подложках GaAs с ориентацией (100). В качестве исходных материалов использовались Ga, Al и As с чистотой 8N, 6N, 7N соответственно. Подробно рост образцов описан в [5].

**Эксперимент.** Слои AlGaAs отделялись от подложки буферным слоем GaAs толщиной 0,2 мкм. Посередине буферного слоя была выращена короткопериодическая сверхрешётка, состоящая из 20 пар (AlAs)<sub>5</sub>(GaAs)<sub>2</sub>. Для уменьшения темпа рекомбинации в слоях AlGaAs на их поверхности и интерфейсе с буферным слоем были выращены широкозонные

слои толщиной 25 нм. Концентрация свободных носителей измерялась методом ван-дер-Пау и рассчитывалась из полученных данных с фактором Холла равным единице при комнатной температуре. Показано, что все образцы имели  $p$ -тип проводимости. Концентрация дырок уменьшалась с  $8 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  в GaAs до  $(1-5) \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  в AlGaAs. Наименьшая концентрация дырок наблюдалась в  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$  ( $10^{14} \text{ см}^{-3}$ ).

Низкая концентрация фоновых примесей в образцах подтверждалась следующим. Во-первых, ширина экситонных линий в исследовавшихся образцах не превышала теоретически предсказанных минимальных значений для тройного твёрдого раствора AlGaAs. Во-вторых, в спектрах фотолюминесценции (ФЛ) отношение интенсивностей линий свободных и связанных экситонов было очень высоким, линии связанных экситонов наименее выражены в  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$ . Третьим доказательством высокого качества образцов была линейная зависимость интегральной интенсивности ФЛ от плотности фотовозбуждения при её изменении в широком диапазоне [5].

Исследования поляризованной ФЛ проводились при температуре 4,2 К. Для оптического возбуждения использовался перестраиваемый титан-сапфировый лазер, работающий в импульсном режиме, длительность импульса 2 пс, частота следования импульсов 82 МГц. Энергия фотовозбуждения менялась от 1,54 до 1,85 эВ, плотность возбуждения — от 10 до 20 Вт/см<sup>2</sup> с помощью нейтральных фильтров. Линейно поляризованное излучение лазера проходило через четвертьволновую пластину, преобразуясь в циркулярно поляризованное. Направление циркулярной поляризации возбуждающего света переключалось вручную с частотой около одного переключения в течение 5 мин во избежание поляризации ядер. Этого было достаточно, так как исследования показали, что при используемых мощностях лазера время поляризации ядер составляет около 20 мин. Фотолюминесценция регистрировалась в геометрии обратного рассеяния. Рекомбинационное излучение пропусклось через вторую четвертьволновую пластину, переводящую циркулярно поляризованное излучение в линейное, и линейный поляризатор. Такая схема установки позволяла выделить поляризованную и деполаризованную компоненты ФЛ (т. е. измерить интенсивность ФЛ с тем же направлением циркулярной поляризации ( $\sigma^+$ ), что и у возбуждающего света ( $\sigma^+$ ), и интенсивность ФЛ с противоположным направлением циркулярной поляризации ( $\sigma^-$ )). Прошедшее через анализатор излучение регистрировалось с помощью спектрометра и стрик-камеры "Hamamatsu C4742", обеспечивающей разрешение по времени; в качестве детектора использовалась ПЗС-камера. Эксперимент описан в [6].

**Экспериментальные результаты и обсуждение.** Кинетика положения максимума линий ФЛ свободных экситонов в образцах GaAs и  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$  показана на рис. 1. В начальный момент времени максимум ФЛ наблюдался на энергии, соответствующей экситонному переходу. Затем положение максимума ФЛ смещалось в сторону низких энергий, а через некоторое время максимум ФЛ опять начинал двигаться в сторону высоких энергий. Величина сдвига росла с повышением плотности оптического возбуждения. Сдвиг в сторону меньших энергий можно объяснить экранированием кулоновского взаимодействия электрон-дырочными парами, которое начинает ощущаться при плотностях электрон-дырочных пар выше  $10^{16} \text{ см}^{-3}$ . Однако тогда остаётся непонятным, почему максимальная величина сдвига достигалась не сразу, а через время 300 пс и более. Возможно, подобное поведение обусловлено влиянием экситонного экранирования или ван-дер-ваальсова притяжения. Величина сдвига зависела от проекции углового момента экситонов: для кроссполаризованной компоненты ФЛ (компоненты  $\sigma^-/\sigma^+$ , т. е. имеющей знак циркулярной поляризации, противоположный тому, что был у возбуждающего света) отклонение от начального положения было сильнее.

На рис. 2 показаны типичные спектры ФЛ, имеющей направление циркулярной поляризации, совпадающее с возбуждающим светом ( $\sigma^+/\sigma^+$ ) и противоположное ( $\sigma^-/\sigma^+$ ), нормированные на интенсивность в максимуме спектра ФЛ. Кроссполаризованная компо-

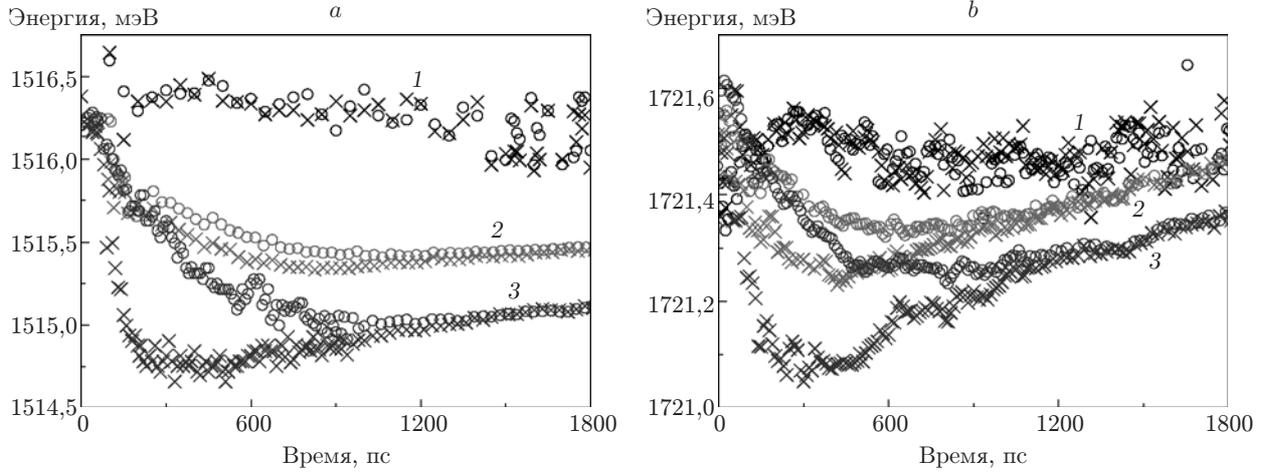


Рис. 1. Кинетика положения максимума пика ФЛ: *a* — в GaAs при энергии оптического возбуждения 1,595 эВ (80 мэВ выше энергии ФЛ свободного экситона) и плотностях возбуждения  $5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  (1),  $2,5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  (2),  $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  (3); *b* — в  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$  при энергии оптического возбуждения 1,746 эВ (15 мэВ выше энергии ФЛ свободного экситона) и плотностях возбуждения  $8,4 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  (1),  $1,1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (2),  $3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (3). Кружками показаны положения максимума линии ФЛ для компоненты, поляризованной так же, как возбуждающий свет лазера, крестиками — для кроссполяризованной компоненты

нента ФЛ ( $\sigma^-/\sigma^+$ ) лежала в спектре ниже по энергии, чем сополяризованная компонента ( $\sigma^+/\sigma^+$ ). Спиновое расщепление приводило к неоднородной поляризации линии ФЛ экситонов по спектру (высокоэнергетическое крыло было поляризовано сильнее), максимальная степень циркулярной поляризации достигала 30 %.

Эффект спинового расщепления линии свободных экситонов впервые наблюдается в трёхмерных структурах. До этого сообщалось, что он был замечен лишь в двумерных системах [7, 8]. Кинетика величины спинового расщепления (разницы между положениями максимумов линий со- и кроссполяризованной компонент ФЛ) в образцах GaAs и AlGaAs показана на рис. 3. Как можно видеть из рисунка, величина расщепления изменялась во времени немонотонно в отличие от поведения, наблюдавшегося в квантовых ямах (экспоненциальный спад). Согласно теории [4] при большой плотности экситонов значительную роль играет взаимодействие фермионов одного типа (двух электронов и двух дырок с одинаковой проекцией момента импульса), принадлежащих разным экситонам. В соответствии с принципом Паули два фермиона не могут занимать одно квантовое состояние, поэтому экситоны, состоящие из одинаковых фермионов, будут отталкиваться друг от друга. Такое взаимодействие даёт положительную поправку к энергии экситонов, пропорциональную плотности экситонов с одинаковыми проекциями момента, т. е. равную  $AX_+$  для экситонов с проекцией момента +1 и  $AX_-$  для экситонов с проекцией момента -1, где  $A$  — некоторая константа,  $X_+$  и  $X_-$  — плотности экситонов с проекциями момента +1 и -1. Если экситоны поляризованы по спину, т. е. плотности экситонов с проекциями момента +1 и -1 неодинаковы, то эти поправки будут разными, и возникнет спиновое расщепление, величина которого пропорциональна разности концентраций экситонов с проекциями спина +1 и -1, или степени поляризации экситонов и их плотности:

$$\Delta = 3,4E_b(X_+ - X_-)a_0^3 = 3,4E_b\rho X, \quad (1)$$

где  $E_b$  и  $a_0$  — энергия связи и боровский радиус экситона;  $X$  — суммарная плотность экситонов;  $\rho$  — степень поляризации спинов экситонов:  $\rho = (X_+ - X_-)/X$ .

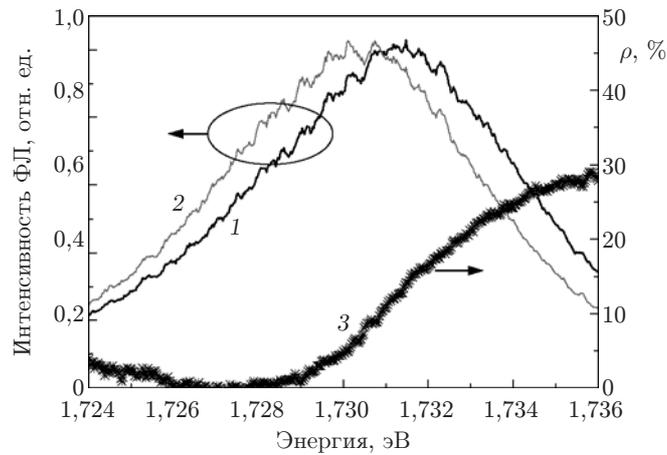


Рис. 2. Спектры нестационарной ФЛ, нормированные на единицу: поляризованный ( $\sigma^+/\sigma^+$ ) (кривая 1), деполаризованный ( $\sigma^-/\sigma^+$ ) (2) и степень циркулярной поляризации ФЛ по спектру (3). Измерения проводились через 200 пс после оптического возбуждения в  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$ . Энергия возбуждения 1,763 эВ (32 мэВ выше энергии ФЛ свободного экситона). Плотность оптического возбуждения  $8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . Спиновое расщепление приводит к неоднородной циркулярной поляризации линии ФЛ по спектру

Кинетика степени циркулярной поляризации ФЛ экситонов в наших образцах была монотонной и экспоненциально спадала со временем [6], из чего следует, что и степень поляризации экситонов  $\rho$  монотонна, поэтому единственно возможное объяснение наблюдаемой в эксперименте кинетики величины расщепления — немонотонность кинетики плотности экситонов  $X$ . Возрастание величины расщепления в первые несколько сот пикосекунд после фотовозбуждения может отражать нарастание концентрации экситонов (процесс их формирования). Измеряя величину спинового расщепления, можно получить величину межэкситонного взаимодействия и одновременно произведение плотности экситонов и степени их циркулярной поляризации. Таким образом, измерение кинетики величины расщепления даёт информацию о полной концентрации экситонов (не только экситонов с

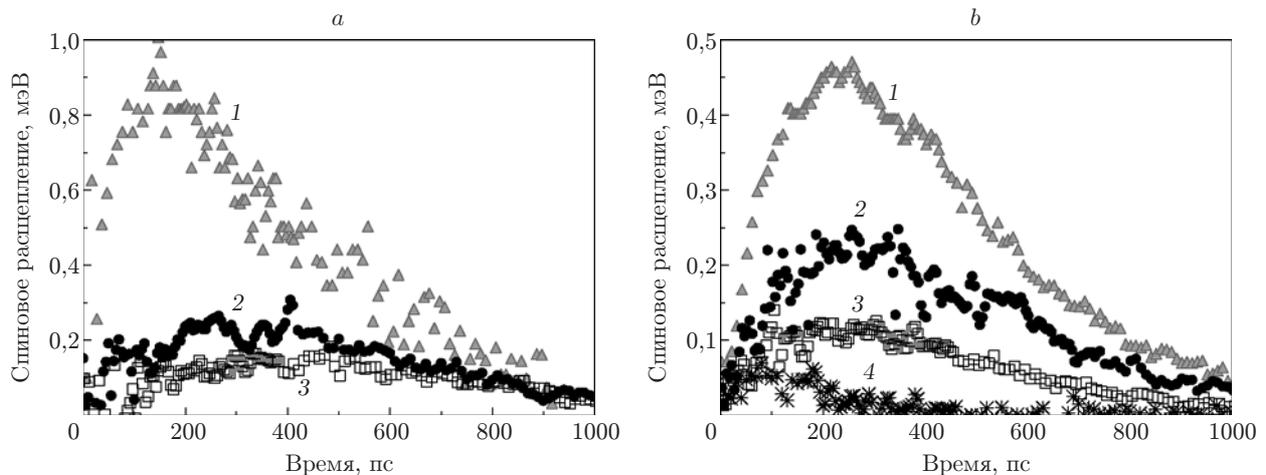


Рис. 3. Кинетика величины спинового расщепления в зависимости от интенсивности фотовозбуждения: *a* — в GaAs при энергии возбуждения 1,595 эВ (80 мэВ выше энергии свободного экситона)  $1,0 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  (1),  $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (2),  $1,3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (3); *b* — в  $\text{Al}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{As}$  при энергии возбуждения 1,781 эВ (50 мэВ выше энергии свободного экситона)  $1,1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  (1),  $8,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (2),  $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  (3),  $7,5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  (4)

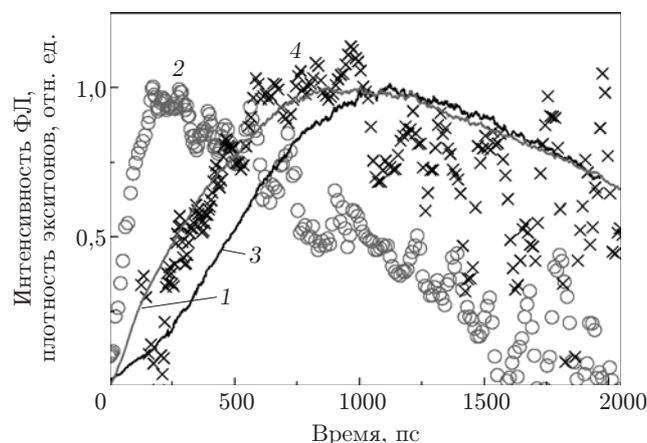


Рис. 4. Кинетика интенсивности ФЛ (1, 3) и плотности экситонов (2, 4) для образца GaAs. Энергия возбуждения 1,595 эВ (80 мэВ выше энергии свободного экситона). Плотность возбуждения: 1, 2 —  $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ; 3, 4 —  $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$

волновыми векторами  $\mathbf{K} \approx 0$ ) в динамике, т. е. позволяет наблюдать за процессом формирования экситонов.

Однако здесь следует сделать оговорку, так как формула (1) выводилась для случая экситонов с  $\mathbf{K} \approx 0$ . Спиновое расщепление наблюдалось как для случая холодных, так и для горячих экситонов. Поэтому можно ожидать, что и во второй ситуации величина расщепления будет пропорциональна плотности всех экситонов, а не только экситонов, которые успели остыть и опуститься на дно зоны. Подтверждением этому может быть следующее рассуждение. На рис. 4 показаны кинетика интенсивности ФЛ и плотности экситонов, рассчитанной по формуле (1). Если бы спиновое расщепление отражало популяцию экситонов вблизи дна зоны, то эти кривые могли совпадать. Наблюдение максимума плотности экситонов раньше максимума ФЛ означает, что первая кривая, действительно, чувствительна к полной плотности экситонов, поскольку кинетика интенсивности ФЛ отражает не только формирование, но и процесс остывания экситонов [9]. Измерение величины спинового расщепления экситонных уровней оказывается чувствительным к плотности экситонов с кинетической энергией отличной от нуля. Времена, характеризующие формирование экситонов, определённые из двухэкспоненциального описания кинетики плотности экситонов, лежали в диапазоне 50–600 пс (в зависимости от образца, энергии и плотности оптического возбуждения), процедура описана в [6]. Полученные значения по порядку величины хорошо согласуются с теорией [10] и наиболее новыми результатами [11].

**Заключение.** Впервые в объёмных образцах обнаружены спиновое расщепление уровней энергии свободных экситонов, возникающее вследствие межэкситонного обменного взаимодействия, а также немонотонный характер кинетики спинового расщепления (рост в первые несколько сотен пикосекунд после возбуждения и затем экспоненциальное падение). Такое поведение отличается от наблюдавшегося до этого в двумерных системах монотонного экспоненциального падения величины расщепления. Показано, что первоначальное нарастание величины спинового расщепления отражает процесс формирования экситонов, и это может служить основой нового метода регистрации плотности экситонов. С помощью данного метода были определены характерные времена нарастания плотности экситонов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Blatt J. H., Boer K. W., Brandt W. Bose-Einstein condensation of excitons // Phys. Rev. 1962. **126**, N 5. P. 1691–1692.

2. **Haug H., Koch S. W.** Semiconductor laser theory with many-body effects // Phys. Rev. B. 1989. **39**, N 4. P. 1887–1898.
3. **Amo A., Martin M. D., Vina L. et al.** Interplay of exciton and electron-hole plasma recombination on the photoluminescence dynamics in bulk GaAs // Phys. Rev. B. 2006. **73**, N 3. 035205.
4. **Fernandez-Rossier J., Tejedor C., Munoz L., Vina L.** Polarized interacting exciton gas in quantum wells and bulk semiconductors // Phys. Rev. B. 1996. **54**, N 16. P. 11582–11591.
5. **Zhuravlev K. S., Toropov A. I., Shamirzaev T. S., Bakarov A. K.** Photoluminescence of high-quality AlGaAs layers grown by molecular-beam epitaxy // Appl. Phys. Lett. 2000. **76**, N 9. P. 1131–1133.
6. **Kozhemyakina E. V., Zhuravlev K. S., Amo A. et al.** Observation of the zero-magnetic-field exciton spin splitting in high-quality bulk GaAs and AlGaAs // Appl. Phys. Lett. 2009. **95**, N 6. 182107.
7. **Amand T., Marie X., Baylac B. et al.** Enhanced exciton blue shift in spin polarized dense exciton system in quantum wells // Phys. Lett. A. 1994. **193**, N 1. P. 105–110.
8. **Sun Z., Xu Z. Y., Ji Y. et al.** Exciton spin splitting in ultrathin InAs layers // Appl. Phys. Lett. 2007. **90**, N 7. 071907.
9. **Damen T. C., Shah J., Oberli D. Y. et al.** Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells // Phys. Rev. B. 1990. **42**, N 12. P. 7434–7438.
10. **Piermarocchi C., Tassone F., Savona V. et al.** Exciton formation rates in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells // Phys. Rev. B. 1997. **55**, N 3. P. 1333–1336.
11. **Szczytko J., Kappei L., Berney J. et al.** Determination of the exciton formation in quantum wells from time-resolved interband luminescence // Phys. Rev. Lett. 2004. **93**, N 13. 137401.

*Поступила в редакцию 2 июля 2013 г.*

---