

ПОЛУПРОВОДНИКОВЫЕ НАНОГЕТЕРОСТРУКТУРЫ ДЛЯ СПИНТРОНИКИ

УДК 538.958

МИКРОСЕКУНДНОЕ ВРЕМЯ ЖИЗНИ СПИНОВОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ ЭКСИТОНОВ В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ (In,Al)As/AlAs*

Т. С. Шамирзаев¹, D. Dunker², J. Debus², Д. Р. Яковлев^{2,3},
К. С. Журавлев¹, М. Bayer³

¹Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13

²Experimentelle Physik 2, Technische Universität Dortmund,
44221, Dortmund, Germany

³Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН,
194021, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, 26
E-mail: tim@isp.nsc.ru

Время спиновой релаксации экситонов в квантовых точках (In,Al)As/AlAs со структурой зон первого рода определялось посредством измерения динамики степени циркулярной поляризации фотолюминесценции, наведённой продольным магнитным полем B . Время спиновой релаксации τ_S возрастает с уменьшением магнитного поля пропорционально B^{-5} и равно ~ 40 нс в магнитном поле 6 Тл при температуре 1,8 К. При повышении температуры T в магнитном поле 7 Тл величина τ_S уменьшается пропорционально $T^{-1,1}$. Характер полевой и температурной зависимостей τ_S свидетельствует о спин-решёточном механизме релаксации спина экситонов с участием одного акустического фонона.

Ключевые слова: квантовые точки, экситон, спиновая релаксация.

Введение. В «объёмных» полупроводниках релаксация неравновесной ориентации спина квазичастиц (электронов, дырок, экситонов), свободно передвигающихся по зоне проводимости (валентной зоне), происходит в течение сотен пикосекунд за счёт рассеяния и/или прецессии спина между актами рассеяния [1]. В теоретических работах начала 2000-х годов было показано, что для квазичастиц, локализованных в квантовых точках (КТ), механизмы, определяющие спиновую релаксацию свободных квазичастиц, подавлены, а их спиновая релаксация определяется спин-орбитальным и сверхтонким взаимодействием [2, 3]. Согласно расчётам характерные времена спиновой релаксации T_1 локализованных в КТ носителей заряда и экситонов лежат при низких температурах в миллисекундном диапазоне [2, 3]. Многочисленные эксперименты подтвердили замедление характерных времён спиновой релаксации в КТ до десятков—сотен миллисекунд для электронов [4] и сотен микросекунд для тяжёлых дырок [5]. Для локализованных в КТ экситонов (в отличие от электронов и дырок) законченной картины спиновой релаксации к моменту начала работы не сложилось. Это связано, во-первых, с многообразием различных механизмов изменения ориентации спина при переходах между различными оптически активными и/или оптически неактивными состояниями экситона, во-вторых, и это основная причина, с малым (порядка 1 нс) временем жизни экситона в оптически актив-

*Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 13-02-00073), Немецкого физического общества DFG (Grant N YA65/3-5) и EU Seventh Framework Programme (Grant N 237252, Spin-optonics).

ном состоянии. Измерения динамики поляризации экситонной фотолюминесценции (ФЛ) в прямозонных КТ показали, что при низких температурах время жизни экситона много меньше, чем время его спиновой релаксации [6], поэтому спиновая релаксация экситонов изучалась главным образом теоретически. Многочисленные расчёты скорости спиновой релаксации экситонов с учётом различных процессов, таких как переходы между оптически активными и неактивными состояниями, оптически активными состояниями без участия оптически неактивных состояний и с учётом спин-орбитального взаимодействия, дают большой разброс времён спиновой релаксации — от сотен наносекунд до единиц миллисекунд.

В [7] нами было показано, что время жизни экситона в непрямозонных полупроводниковых КТ (In,Al)As/AlAs первого рода, где и электрон, и дырка локализованы внутри КТ, возрастает вплоть до сотен микросекунд и, следовательно, становится сравнимым с ожидаемым временем его спиновой релаксации.

В данной работе приводятся результаты прямых экспериментальных измерений времени спиновой релаксации долгоживущих экситонов в ансамбле непрямозонных КТ (In,Al)As/AlAs первого рода.

Условия эксперимента. Исследуемые структуры с КТ (In,Al)As/AlAs были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на полуизолирующих подложках GaAs с ориентацией (001). Структуры содержали от одного до десяти слоёв КТ, разделённых слоями AlAs толщиной 30 нм. Квантовые точки формировались в течение 40 с при температуре подложки 515 °С. Для предотвращения окисления слоёв AlAs структуры завершались защитным слоем GaAs толщиной 15 нм. Измерения стационарной и времяразрешённой ФЛ проводились при температурах 1,8–30 К. Стационарная ФЛ возбуждалась полупроводниковым лазером ($\hbar\omega = 3,06$ эВ) с плотностью мощности возбуждения 10 Вт/см². Времяразрешённая ФЛ возбуждалась импульсами третьей гармоники Nd:YVO₄-лазера ($\hbar\omega = 3,49$ эВ) длительностью 5 нс, частотой повторения 2 кГц и регистрировалась фотоэлектронным умножителем с фотокатодом GaAs, работающим в режиме времякоррелированного счёта фотонов. Плотность энергии возбуждающего лазерного излучения 100 нДж/см² соответствовала возбуждению $\sim 0,3$ электронно-дырочных пар на одну КТ за один импульс [8].

Спиновая релаксация экситонов изучалась посредством измерения динамики наведённой магнитным полем степени циркулярной поляризации ρ_c экситонной ФЛ. Эксперименты проводились в геометрии Фарадея в магнитных полях 6–10 Тл и температурах 1,8–30 К. Во избежание оптической ориентации экситонов ФЛ возбуждалась импульсами линейно поляризованного света. Степень циркулярной поляризации ФЛ определялась как $\rho_c = (I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$, где $I^{+/-}$ — интенсивности $\sigma^{+/-}$ -поляризованных компонент ФЛ. Для определения знака поляризации ρ_c проводилось контрольное измерение полумангнитной структуры с квантовыми ямами (Zn,Mn)Se/(Zn,Be)Se с известным знаком ρ_c [9].

Результаты и обсуждение. Спектр ФЛ структуры с КТ (In,Al)As/AlAs, измеренный при температуре $T = 1,8$ К, приведён на вставке к рис. 1. В спектре видна широкая полоса гауссовой формы, обозначенная на рисунке как QD, с положением максимума 1,83 эВ, связанная с рекомбинацией экситонов в КТ. Как было показано в [10, 11], энергетическое положение полосы ФЛ свидетельствует о том, что основное состояние электрона в исследуемых КТ принадлежит X-минимуму зоны проводимости (In,Al)As. Необходимость рассеяния квазиимпульса электрона в процессе излучательной рекомбинации приводит к длительным временам жизни экситонов, локализованных в таких КТ [8].

Динамика интенсивности неполяризованной ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs в различных магнитных полях (в геометрии Фарадея) после возбуждения импульсом лазерного излучения приведена на рис. 1. Измерения проводились в максимуме полосы ФЛ, как показано стрелкой на вставке. Из рисунка видно, что кривая затухания ФЛ $I(t)$ неэкспоненциальна, что

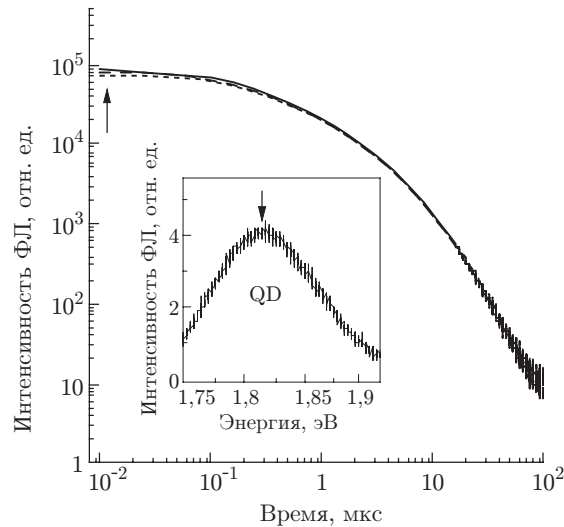


Рис. 1. Динамика неполяризованной ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs при температуре 1,8 К в продольных магнитных полях 0, 4 и 10 Тл; стрелкой обозначен момент окончания импульса лазерного излучения. Данные приведены в двойном логарифмическом масштабе, удобном для представления неэкспоненциальных кривых. На вставке показан спектр ФЛ структуры с КТ (In,Al)As/AlAs, измеренный при температуре 1,8 К; стрелкой обозначена энергия 1,83 эВ, на которой проводилось измерение динамики ФЛ

типично для структур с КТ (In,Al)As/AlAs [8, 10], а её форма при изменении напряжённости магнитного поля не изменяется. Неэкспоненциальность кривой затухания ФЛ ансамбля КТ обусловлена дисперсией времён жизни экситонов, излучающих на одной длине волны, но локализованных в КТ разного размера и состава с различной гладкостью локализовывающего экситон потенциала, который определяется толщиной слоя твёрдого раствора на гетерогранице КТ — матрица [8]. В работе [8] мы показали, что неэкспоненциальная кинетика затухания неполяризованной экситонной ФЛ в КТ (In,Al)As/AlAs хорошо описывается выражением

$$I(t) = \int G(\tau) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau \quad (1)$$

с феноменологическим распределением времён жизни экситонов по ансамблю квантовых точек $G(\tau) = (A/\tau^\gamma) \exp(-\tau_0/\tau)$, где нормировочная константа A , а также параметр γ и параметр τ_0 , характеризующий максимум распределения времён жизни экситонов в КТ, определяются посредством подгонки экспериментальной кривой $I(t)$ выражением (1). Наилучшее совпадение расчётной кривой с приведёнными на рис. 1 экспериментальными зависимостями имеет место при значениях параметров $\tau_0 = 5,2$ мкс и $\gamma = 3,4$.

Постоянство формы неполяризованной кривой затухания ФЛ при изменении напряжённости продольного магнитного поля свидетельствует о том, что время жизни экситона в КТ от магнитного поля не зависит.

В продольном магнитном поле ФЛ нейтральных экситонов в КТ (In,Al)As/AlAs циркулярно поляризована. Динамика ФЛ нейтральных экситонов в различных циркулярных поляризациях, измеренная в максимуме спектра ФЛ в продольном магнитном поле 7 Тл после нерезонансного возбуждения коротким (5 нс) импульсом линейно поляризованного света, показана на рис. 2. С течением времени интенсивность σ^- -поляризованной ФЛ затухает значительно быстрее, чем интенсивность σ^+ -поляризованной ФЛ. Знак циркулярной

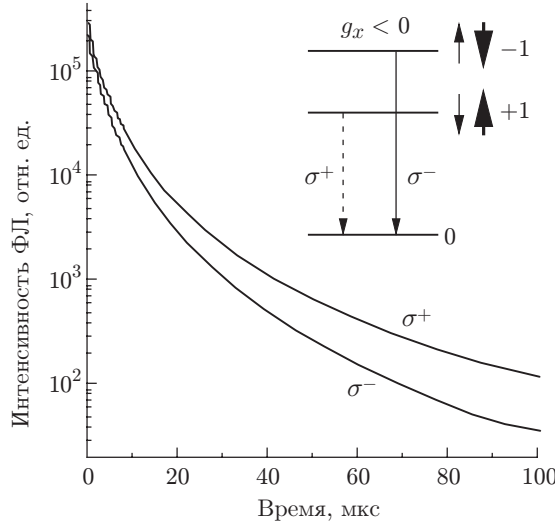


Рис. 2. Динамика ФЛ нейтральных экситонов в КТ (In,Al)As/AlAs в максимуме полосы QD (1,83 эВ, см. рис. 1) в различных поляризациях в магнитном поле 7 Тл (геометрия Фарадея) и $T = 1,8$ К. На вставке показана последовательность энергетических уровней начального и конечного состояния с различными проекциями спина (указаны цифрами) для нейтральной КТ в продольном магнитном поле при отрицательном значении g -фактора нейтрального экситона. Проекции спина электрона и дырки, составляющих экситон, показаны тонкой и толстой стрелками соответственно; длинные стрелки — разрешённые оптические переходы

поляризации ФЛ экситона в КТ (In,Al)As/AlAs определяется знаком продольного экситонного g -фактора, который для КТ, излучающих в области спектра 1,83 эВ, отрицателен [12]. Последовательность энергетических уровней для начального состояния нейтрального экситона с различными проекциями спина в продольном магнитном поле, разрешённые правилами отбора оптические переходы и поляризация испускаемых фотонов для отрицательного продольного g -фактора приведены на вставке к рис. 2.

Динамика степени циркулярной поляризации ФЛ нейтральных экситонов в различных магнитных полях показана на рис. 3. В магнитном поле 10 Тл этот параметр возрастает до насыщения, которое наступает при $P_c^{\text{sat}} = 0,8$ за несколько микросекунд. При уменьшении напряжённости магнитного поля время нарастания степени циркулярной поляризации ФЛ увеличивается, а значение ρ_c , при котором она выходит на насыщение, уменьшается. В магнитных полях с напряжённостью 7 и 6 Тл степень циркулярной поляризации ФЛ не успевает выйти на насыщение за время наблюдения (90 мкс), а высокий уровень шума не позволяет достоверно определить динамику степени циркулярной поляризации ФЛ нейтральных экситонов на более длинных временах.

Поскольку количество излучаемых ансамблем КТ фотонов с поляризацией σ^- (σ^+) пропорционально заселённости нижних (верхних) состояний экситона с меньшей (большей) энергией в магнитном поле, динамика степени циркулярной поляризации ФЛ определяется динамикой заселённости этих состояний. Возбуждение линейно поляризованным светом не привносит угловой момент в электронную подсистему. Следовательно, мы можем полагать, что расщеплённые продольным магнитным полем состояния экситонов с различными проекциями спина в начальный момент времени после импульса возбуждения заселяются одинаково.

При больших величинах зеемановского расщепления $\Delta E = \mu g_X^{\parallel} B$ (по сравнению с термической энергией $k_B T$), таких что $\Delta E > k_B T$, одинаковая заселённость экситонных

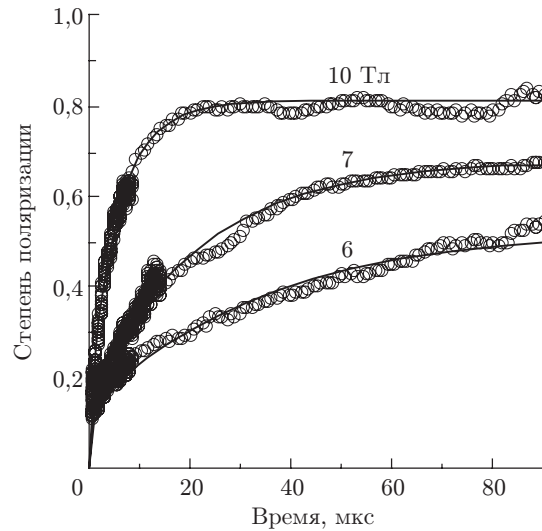


Рис. 3. Динамика степени циркулярной поляризации ФЛ структур с КТ (In,Al)/AlAs в максимуме полосы QD (1,83 эВ) в продольных магнитных полях при $T = 1,8$ К (кружки — эксперимент, сплошные кривые рассчитаны по формуле (3) с различными подгоночными параметрами τ_S)

состояний с различными проекциями спина (и, следовательно, различными энергиями) соответствует термодинамически неравновесному распределению [13]. С течением времени процессы, изменяющие энергию и проекцию спина экситона, т. е. процессы спиновой релаксации, стремятся привести заселённости экситонных состояний в соответствие с равновесным (больцмановским) распределением.

Динамику изменения заселённости расщеплённых магнитным полем состояний с различной проекцией спина экситонов (с временем жизни τ) в ансамбле КТ можно описать в рамках двухуровневой модели посредством решения системы дифференциальных уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dn_{\uparrow}}{dt} &= C_{\uparrow} - \frac{n_{\uparrow}}{\tau} - \frac{n_{\uparrow}}{\tau_S} + \frac{n_{\downarrow}}{\tau_S} \exp\left[-\frac{\Delta E}{k_B T}\right]; \\ \frac{dn_{\downarrow}}{dt} &= C_{\downarrow} - \frac{n_{\downarrow}}{\tau} + \frac{n_{\uparrow}}{\tau_S} - \frac{n_{\downarrow}}{\tau_S} \exp\left[-\frac{\Delta E}{k_B T}\right], \end{aligned} \quad (2)$$

где $C_{\uparrow} = C_{\downarrow}$ — скорости генерации; n_{\uparrow} и n_{\downarrow} — концентрации экситонов в состояниях с проекцией спина на ось КТ ± 1 ; τ_S — время спиновой релаксации экситона.

Интенсивность ФЛ с поляризацией $\sigma^{+/-}$ пропорциональна $n_{\uparrow/\downarrow}$, поэтому время спиновой релаксации экситона можно найти путём описания экспериментально определённой динамики степени циркулярной поляризации ФЛ функцией

$$\rho_c(t, \tau, \tau_S) = \frac{n_{\downarrow}(t, \tau, \tau_S) - n_{\uparrow}(t, \tau, \tau_S)}{n_{\downarrow}(t, \tau, \tau_S) + n_{\uparrow}(t, \tau, \tau_S)}, \quad (3)$$

взяв τ_S в качестве подгоночного параметра.

Температурная зависимость $P_c^{\text{sat}}(T)$ для нейтрального экситона приведена на вставке к рис. 4. Подгонка этой зависимости выражением $\sim \tanh[\mu_B g_X^{\parallel} B / (2k_B T)]$ позволяет вычислить значение продольного g -фактора экситона $|g_X^{\parallel}| = 0,70 \pm 0,05$ [1].

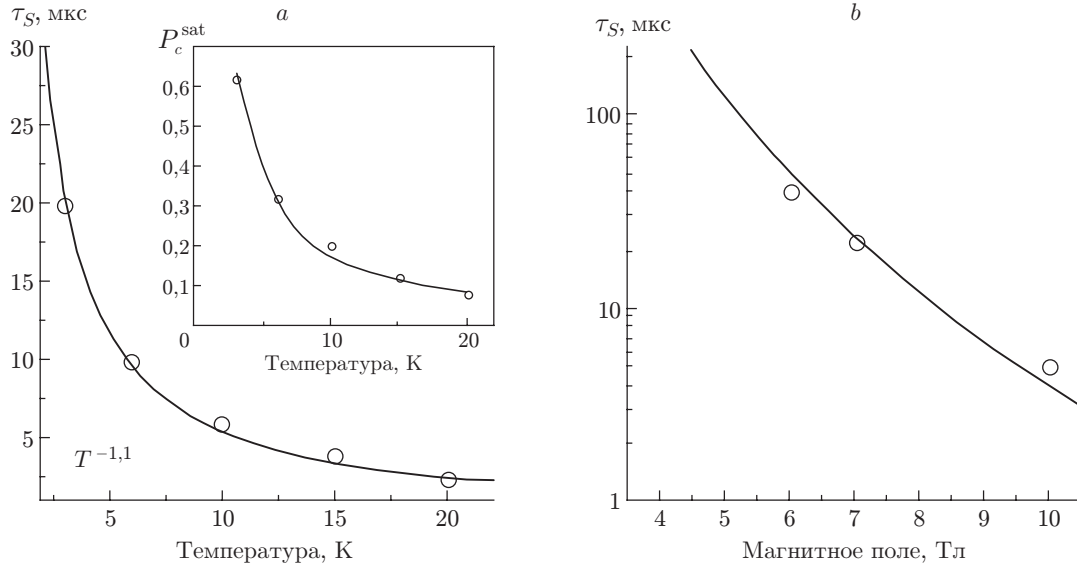


Рис. 4. Зависимости времени спиновой релаксации нейтральных экситонов в КТ (In,Al)As/AlAs: от температуры (а) и магнитного поля (b). Кружки — аппроксимация экспериментальных данных формулой (3); сплошные кривые — результаты описания $\tau_S(B)$ и $\tau_S(T)$ степенными функциями. На вставке приведены значения P_c^{sat} , измеренные при различных температурах в магнитном поле 7 Тл; сплошная кривая — результат подгонки полученной зависимости выражением $\tanh[\mu_B g_X^{\parallel} B / (2k_B T)]$

Характер полевой и температурной зависимостей времени спиновой релаксации двухуровневой системы однозначно определяется механизмом спиновой релаксации. Приводимые в литературе теоретические расчёты показывают, что:

1. Полевая зависимость времени спиновой релаксации имеет следующий вид: 1) $\tau_S(B) \sim B^{-3}$ для однофононного процесса с передачей проекции углового момента ядерным спинам за счёт сверхтонкого взаимодействия; 2) $\tau_S(B) \sim B^{-2}$ для двухфононного процесса; 3) $\tau_S(B) \sim B^{-5}$ для однофононного процесса при смешивании состояний с различными проекциями спина за счёт спин-орбитального взаимодействия [3, 14].

2. Температурная зависимость времени спиновой релаксации для всех однофононных процессов описывается выражением $\tau_S(T) \sim T^{-1}$ [3, 14]. Для двухфононного процесса расчёты дают степенную зависимость $\tau_S(T) \sim T^{-2}$.

Таким образом, в целях определения доминирующего механизма спиновой релаксации нейтральных экситонов необходимо провести измерения полевой и температурной зависимостей времени спиновой релаксации.

Для нахождения полевой и температурной зависимостей времени спиновой релаксации нейтрального экситона мы аппроксимировали экспериментально полученные динамики $\rho_c(B)$ и $\rho_c(T)$ расчётными зависимостями, описываемыми выражением (2) с использованием τ_S в качестве свободного параметра. Зеемановское расщепление экситонных уровней можно записать как $\Delta E_Z = \mu_B g_X^{\parallel} B$, где μ_B — магнетон Бора, а g_X^{\parallel} — продольный g -фактор экситона. Максимальное значение времени спиновой релаксации нейтрального экситона составляет 40 мкс в магнитном поле 6 Тл при температуре 1,8 К. Полевая и температурная зависимости времени спиновой релаксации нейтрального экситона хорошо аппроксимируются степенными функциями $\tau_S(B) \sim B^{-5}$ и $\tau_S(T) \sim T^{-1,1}$. Следовательно, доминирующим механизмом спиновой релаксации для нейтральных экситонов в КТ является спин-решётчатая релаксация с участием одного акустического фона.

Заключение. В данной работе в результате проведённых исследований показано, что доминирующим механизмом спиновой релаксации локализованных в КТ экситонов является спин-решёточная релаксация с участием одного акустического фонона. Определено время спиновой релаксации экситонов в КТ (In,Al)As/AlAs в различных продольных магнитных полях и при различных температурах. Максимальное значение времени спиновой релаксации экситона при температуре 1,8 К в магнитном поле 6 Тл равно 40 мкс.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Оптическая ориентация.** Современные проблемы науки о конденсированных средах /Под ред. Б. П. Захарчени, Ф. Майера. Л.: Наука, 1989. 408 с.
2. **Khaetskii A. V., Nazarov Yu. V.** Spin relaxation in semiconductor quantum dots // Phys. Rev. B. 2000. **61**, N 19. P. 12639–12642.
3. **Khaetskii A. V., Nazarov Yu. V.** Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots // Phys. Rev. B. 2001. **64**, N 12. 125316.
4. **Oulton R., Greilich A., Verbin S. Yu. et al.** Subsecond spin relaxation times in quantum dots at zero applied magnetic field due to a strong electron-nuclear interaction // Phys. Rev. Lett. 2007. **98**, N 10. 107401.
5. **Heiss D., Schaeck S., Huebl H. et al.** Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots // Phys. Rev. B. 2007. **76**, N 24. 241306.
6. **Paillard M., Marie X., Renucci P. et al.** Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots // Phys. Rev. Lett. 2001. **86**, N 8. P. 1634–1637.
7. **Шамирзаев Т. С., Гишинский А. М., Бакаров А. К. и др.** Миллисекундная кинетика фотолюминесценции в системе прямозонных квантовых точек InAs в матрице AlAs // Письма в ЖЭТФ. 2003. **77**, № 7. С. 459–463.
8. **Shamirzaev T. S., Debus J., Abramkin D. S. et al.** Exciton recombination dynamics in an ensemble of (In,Al)As/AlAs quantum dots with indirect band-gap and type-I band alignment // Phys. Rev. B. 2011. **84**, N 15. 155318.
9. **Keller D., Yakovlev D. R., König B. et al.** Heating of the magnetic ion system in (Zn, Mn)Se/(Zn, Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation // Phys. Rev. B. 2002. **65**, N 3. 035313.
10. **Shamirzaev T. S., Nenashev A. V., Gutakovskii A. K. et al.** Atomic and energy structure of InAs/AlAs quantum dots // Phys. Rev. B. 2008. **78**, N 8. 085323.
11. **Shamirzaev T. S., Nenashev A. V., Zhuravlev K. S.** Coexistence of direct and indirect band structures in arrays of InAs/AlAs quantum dots // Appl. Phys. Lett. 2008. **92**, N 21. 213101.
12. **Debus J., Dunker D., Sapega V. F. et al.** Spin-flip raman scattering in type-I quantum dots with direct and indirect band structure // The Second International Summer School on Spin-Optronics. St. Petersburg, July, 10–14, 2012. P. 43.
13. **Dunker D., Shamirzaev T. S., Debus J. et al.** Spin relaxation of negatively charged excitons in (In,Al)As/AlAs quantum dots with indirect band gap and type-I band alignment // Appl. Phys. Lett. 2012. **101**, N 14. 142108.
14. **Trif M., Simon P., Loss D.** Relaxation of hole spins in quantum dots via two-phonon processes // Phys. Rev. Lett. 2009. **103**, N 10. 106601.