

ОТРИЦАТЕЛЬНО ЗАРЯЖЕННЫЕ ЭКСИТОНЫ В ПОЛУМАГНИТНЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ CdSe/ZnSe/ZnMnSe

А. С. Бричкин*, А. В. Черненко, Е. А. Чехович, П. С. Дорожкин, В. Д. Кулаковский

Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

С. В. Иванов, А. А. Торопов

Физико-технический институт им. Иоффе Российской академии наук
194021, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 26 декабря 2006 г.

Исследована фотолюминесценция индивидуальных квантовых точек CdSe/ZnSe/ZnMnSe с разной величиной $sp-d$ -обменного взаимодействия между ионами магнитной примеси и носителями заряда в магнитном поле до 12 Тл в геометрии Фарадея и Фойгта при 1.6 К. Величина взаимодействия регулируется путем изменения доли квадрата волновых функций носителей ($\eta_{e,h}$) в полумагнитном барьере с помощью вариации толщины немагнитного слоя ZnSe. Найдено, что уже при $\eta_{e,h} \sim 5\%$ обменное $sp-d$ -взаимодействие приводит к смене знака эффективного g -фактора дырки, а дальнейшее увеличение ведет к быстрому росту спинового расщепления электронов и дырок. При этом заметное уменьшение квантового выхода излучения из-за оже-рекомбинации экситонов с возбуждением ионов Mn начинается только при $\eta_{e,h} \sim 12\%$, а увеличение скорости спиновой релаксации дырок — при еще больших $\eta_{e,h}$. В сильном магнитном поле, перпендикулярном плоскости образца, выстраивание спинов Mn приводит к подавлению оже-рекомбинации только в возбужденном спиновом состоянии, что при малой скорости спиновой релаксации дырок ведет к неожиданному результату: доминированию в сильном магнитном поле излучения из возбужденного состояния трионов.

PACS: 75.75.+a, 75.50.Pp, 78.67.-n

1. ВВЕДЕНИЕ

Возможность спектроскопического анализа электронно-дырочных состояний в одиночных квантовых точках (КТ), достигнутая в последнее десятилетие, привела к качественному скачку в фундаментальных исследованиях этих объектов. Различные экситонные состояния (экситоны, биэкситоны, трионы) были тщательно проанализированы в КТ в немагнитных структурах $A^{II}B^{VI}$ и $A^{III}B^V$ с самоорганизованными КТ [1]. Исследования индивидуальных полумагнитных КТ пока немногочисленны и ограничены изучением основного состояния экситона в незаряженных КТ [2–5]. В то же время основное внимание в исследованиях экситонных состояний в КТ в последнее время привлекают возможности использования спиновой подсистемы эксито-

нов в КТ в различных областях спинтроники [6]. С этой точки зрения весьма интересными являются полумагнитные КТ, позволяющие реализовать большую спиновую поляризацию носителей в слабых магнитных полях благодаря $sp-d$ -обменному взаимодействию между носителями заряда и ионами магнитных примесей.

Оптические исследования полумагнитных КТ показали, что $sp-d$ -взаимодействие приводит к дополнительному уширению линий фотолюминесценции (ФЛ) из-за флуктуаций намагнитченности ионов магнитной примеси в области локализации носителя заряда [3]. Ширина линии экситонной ФЛ полумагнитных КТ в гетероструктурах CdSe/ZnMnSe в отсутствие магнитного поля достигает порядка 10 мэВ, что приводит к полному замыванию тонкой структуры спиновых состояний в КТ [3, 7, 8]. Кроме того, в полупроводниках с большой шириной запрещенной

*E-mail: brich@issp.ac.ru

зоны наличие магнитной примеси приводит к радикальному уменьшению сигнала ФЛ по сравнению с немагнитными образцами из-за процессов безызлучательной рекомбинации на магнитных ионах [9].

Для того чтобы уменьшить влияние этих эффектов на спектры ФЛ, нами были выбраны КТ в гетероструктурах CdSe/ZnSe/ZnMnSe, в которых между слоем КТ и полумагнитным барьером добавлен немагнитный слой ZnSe, увеличивающий расстояние между КТ и ионами марганца. Введение дополнительного слоя приводит к уменьшению доли волновой функции электронов и дырок в полумагнитном слое. Это приводит к уменьшению обменного $sp-d$ -взаимодействия и, следовательно, спинового расщепления в магнитном поле, а также к сужению линий ФЛ, уменьшению скоростей спиновой релаксации и безызлучательной оже-рекомбинации.

В данной работе представлены исследования двух образцов CdSe/ZnSe/ZnMnSe с разной долей квадрата волновых функций носителей ($\eta_{e,h}$) в магнитном барьере. Исследуются экситонные состояния в однократно заряженных полумагнитных КТ на основании анализа спектров ФЛ в магнитном поле, параллельном и перпендикулярном плоскости роста структуры. Образцы и методика эксперимента описываются в следующем разделе. В разд. 3 приведены спектры излучения заряженных КТ в магнитном поле и затем анализируются структура трионных состояний, конкуренция излучательного и безызлучательного механизмов рекомбинации и скорость спиновой релаксации при разных $\eta_{e,h}$.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Структуры CdSe/ZnSe/ZnMnSe были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке GaAs и представляют собой самоорганизующиеся КТ CdSe, окруженные с обеих сторон сначала немагнитным барьером ZnSe толщиной около 1.6 нм, а затем полумагнитным барьером $Zn_{0.89}Mn_{0.11}Se$. Номинальная толщина слоя CdSe составляет 2 моннослоя (около 0.6 нм).

Для магнитооптических исследований одиночных КТ поверхность образца была стравлена глубже слоя КТ везде, кроме столбиков размером от 150 до 300 нм в диаметре. В эксперименте исследовался сигнал ФЛ отдельных столбиков, которые располагались на расстоянии 150 мкм друг от друга. После детального анализа большого количества спектров отдельных столбиков был найден репрезента-

тивный набор линий индивидуальных КТ, который представлен в данной работе.

Исследования ФЛ проводились в оптическом криостате со сверхпроводящим магнитом, позволяющим получать магнитные поля до 12 Тл при температуре 1.6 К. Внешнее магнитное поле B было направлено либо вдоль оси роста структуры \mathbf{z} (геометрия Фарадея, $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$), либо перпендикулярно ей (геометрия Фойгта, $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$). Возбуждение ФЛ осуществлялось ультрафиолетовой линией Ag^+ -лазера ($\lambda = 355$ нм). Для записи спектров использовался одиночный монохроматор с решеткой 2400 штр./мм, сигнал детектировался ПЗС-камерой, охлаждаемой жидким азотом. Измерения времен жизни и спиновой релаксации были проведены с помощью фемтосекундного Ti:Sp-лазера с кристаллом удвоения. Разрешенные по времени спектры детектировались стрик-камерой с разрешением 20 пс.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Излучение экситонов из отрицательно заряженных КТ

В данной работе проводится анализ магнитооптических спектров излучения одиночных полумагнитных КТ, которые отвечают излучению экситонов в отрицательно заряженных КТ (трионов), содержащих один электрон. Наличие заряженных КТ обусловлено локализацией в них электронов с донорных центров в барьерном слое, концентрация которых составляет около 10^{14} – 10^{15} см $^{-3}$.

При локализации экситона в отрицательно заряженной точке два электрона образуют спиновой синглет, при этом остается только одна частица (дырка) с неспаренным спином. Как следствие, обменное расщепление триона в основном состоянии отсутствует. Поэтому в отсутствие магнитного поля в спектре наблюдается одиночная неполяризованная линия. В магнитном поле состояние триона расщепляется на дублет. На дублет расщепляется также и конечное состояние перехода — электрона в КТ. Максимальное число зеемановских компонент — 4.

Характерные спектры излучения экситонов в однократно отрицательно заряженных одиночных КТ в двух образцах CdSe/ZnSe/ZnMnSe с разной долей волновой функции электронов и дырок в полумагнитном слое (образцы № 1 и № 2) приведены на рис. 1. Так же, как и в спектрах немагнитных CdSe/ZnSe КТ [10, 11], в спектре излучения в нулевом магнитном поле наблюдается одиночная неполяризованная линия. Увеличение плотности возбуж-

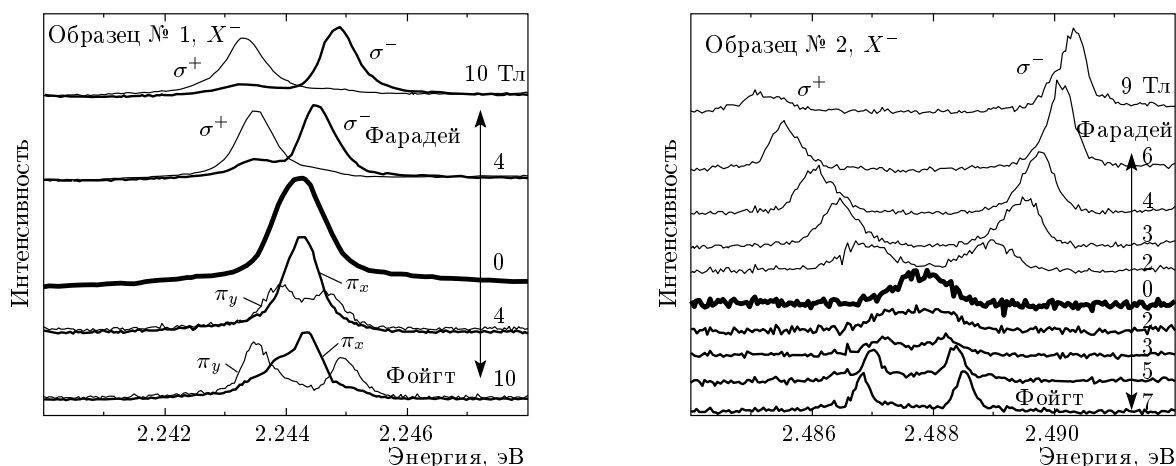


Рис. 1. Спектры ФЛ трионов, локализованных в КТ (образец № 1 и № 2) для образцов с разным проникновением волновой функции в полумангнитный барьер. Одиночная трионная линия в продольном магнитном поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ расщепляется на две циркулярно-поляризованные компоненты, причем в образце № 2 верхняя по энергии (σ^-) компонента доминирует в больших полях. В поперечном магнитном поле в образце № 1 наблюдаются все 4 зеемановских компоненты, а в образце № 2 из-за быстрой спиновой релаксации дырок — только две

дения вплоть до 300 Вт/см^2 не приводит к появлению дополнительных линий в спектре, что свидетельствует об отсутствии биэкситонных состояний даже при столь больших плотностях возбуждения. Такое поведение характерно для заряженных КТ, в которых при локализации первого экситона образуется состояние с $1s$ -электронной оболочкой, полностью заполненной двумя электронами, и следующий электрон может локализоваться только в возбужденном слабо связанном $2s(p)$ -состоянии. Вероятность такого процесса существенно ниже, чем вероятность захвата второго экситона в незаряженной КТ, где второй электрон попадает в глубоко лежащую $1s$ -оболочку.

В исследуемых квантовых точках CdSe/ZnSe/ZnMnSe , в отличие от немагнитных квантовых точек CdSe/ZnSe , ширина линий ФЛ достигает $0.8\text{--}1 \text{ мэВ}$. Уширение связано с флуктуациями полного магнитного момента [3]. Поскольку магнитная примесь находится на достаточном удалении от КТ, это уширение оказывается гораздо меньше, чем в КТ CdSe/ZnMnSe , исследованных ранее. Оценки показывают, что проникновение электронной и дырочной волновых функций в барьер в изучаемых КТ с толщиной слоя ZnSe 1.6 нм не превышает 10% , вследствие чего величина $sp-d$ -взаимодействия на порядок слабее, чем в полумангнитных КТ без слоя ZnSe . В результате ширина линии излучения в нулевом магнитном поле находится в пределах 0.8 мэВ .

Сравнение спектров излучения исследуемых КТ со спектрами немагнитных КТ в магнитном поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ показывает, что так же, как и в немагнитных КТ, в спектре излучения доминируют две циркулярно поляризованные (σ^+ и σ^-) компоненты. Однако поляризация зеемановских компонент заряженного экситона в изучаемых КТ противоположна наблюдающейся в немагнитных КТ [12, 13]. Следовательно, несмотря на небольшое проникновение волновых функций электрона и дырки в полумангнитный барьер, вклад в g -фактор от обменного $p-d$ -взаимодействия спинов электронов и дырок в КТ со спинами ионов Mn уже является доминирующим.

Во внешнем магнитном поле в геометрии Фойгта одиночная линия излучения триона, так же, как и в немагнитной КТ [10, 11], расщепляется на четыре компоненты, которые хорошо разрешаются в поляризационных измерениях. Линии имеют высокую, более 90% , степень линейной поляризации. Из серии измерений в геометрии Фойгта в магнитных полях от 0 до 10 Тл , проведенных для четырех различных направлений $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$, следует, что плоскость поляризации не зависит от направления магнитного поля и полностью определяется симметрией КТ (рис. 2). Внешние и внутренние компоненты линии поляризованы во взаимно перпендикулярных плоскостях, близких соответственно к кристаллографическим плоскостям (110) и $(\bar{1}\bar{1}0)$. При вращении магнитного поля изменяется только отноше-

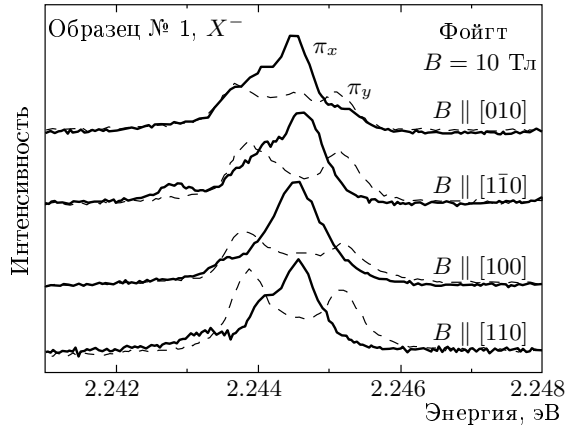


Рис. 2. Линия триона в КТ образца № 1, записанная в поле $B = 10$ Тл при $B \parallel [100]$, $[110]$, $[1\bar{1}0]$, $[110]$. Поляризация $\pi_x \parallel [110]$, $\pi_y \parallel [1\bar{1}0]$

ние интенсивностей внешних и внутренних компонент (рис. 2). Такое поведение аналогично наблюдавшемуся ранее в исследованиях трионов в немагнитных КТ [10]. Оно свидетельствует о существенной анизотропии потенциала в плоскости КТ, приводящей к смешиванию дырочных состояний с $j_z = 3/2$ с состояниями отщепленных легких дырок $j_z = 1/2$.

Из сравнения спектров излучения трионов в двух исследуемых образцах, приведенных на рис. 1, видно, что с ростом проникновения электронной и дырочной волновых функций в область барьера ZnMnSe наблюдается увеличение ширины линий, связанное с флуктуациями момента Mn. Сравнение интенсивностей излучения КТ при фиксированной плотности возбуждения показывает, что в образце № 2 квантовый выход излучения в нулевом магнитном поле оказывается значительно меньшим. Такое уменьшение квантового выхода характерно для экситонов в полумагнитных полупроводниках с шириной запрещенной зоны, превышающей энергию внутривалентного перехода в ионах Mn из основного состояния 6A_1 в нижнее возбужденное состояние 4T_1 ($E \sim 2.1$ эВ). Оно обусловлено эффективной безызлучательной оже-рекомбинацией экситонов с передачей энергии ионам Mn [9]. Ширина линии и величина зеемановского расщепления увеличиваются с ростом проникновения волновой функции электронов и дырок в полумагнитный слой. При этом вместо уменьшения интенсивности фиолетовой компоненты с ростом магнитного поля, ожидаемого вследствие спиновой релаксации дырки в основное состояние, в спектрах излучения, наоборот, наблюдается ее существенный рост (рис. 1б). В геометрии

же Фойгта интенсивности двух зеемановских компонент остаются одинаковыми во всех магнитных полях.

3.2. Зеемановское расщепление линий фотолюминесценции трионов

В отрицательно заряженном трионе X^- два электрона образуют спиновый синглет. Поэтому взаимодействие трионов X^- с магнитным полем определяется дыркой. В полумагнитных КТ симметрии D_{2d} оно описывается дырочным гамильтонианом вида

$$\hat{H}_{Bh} = \mu_B g_0 \left(\kappa \hat{\mathbf{j}} \cdot \mathbf{B} + q \sum_i j_i^3 B_i \right) + \frac{\beta}{3} |\psi_h(r)|^2 \hat{\mathbf{j}} \cdot \mathbf{M}, \quad (1)$$

где κ и q — константы, описывающие взаимодействие дырки с магнитным полем в немагнитных CdSe и ZnSe [14], μ_B — магнетон Бора, g_0 — g -фактор свободного электрона. Последний член в гамильтониане обусловлен обменным p - d -взаимодействием дырок с ионами марганца [15], где β — константа обменного взаимодействия, $\psi_h(r)$ — волновая функция дырки. Намагниченность \mathbf{M} единицы объема определяется формулой

$$\mathbf{M} = \frac{5}{2} x_{eff} N_0 g_{Mn} \mu_B B r_{5/2}(y) \frac{\mathbf{B}_\Sigma}{B_\Sigma}, \quad (2)$$

где N_0 — число элементарных ячеек в единице объема ZnMnSe, x_{eff} — эффективная концентрация марганца, $g_{Mn} = 2$ — g -фактор d -электронов в Mn, $B r_{5/2}(y)$ — функция Бриллюэна, $y = 5 g_{Mn} \mu_B B_\Sigma / (2 k_B T)$. Вектор $\mathbf{B}_\Sigma = \mathbf{B} + \mathbf{B}_{ex}^h$, где \mathbf{B}_{ex}^h — эффективное обменное поле дырки:

$$\mathbf{B}_{ex}^h = \frac{\beta}{2 \mu_B g} |\psi_h(r)|^2 \frac{\langle \hat{\mathbf{j}} \rangle}{|\langle \hat{\mathbf{j}} \rangle|}, \quad (3)$$

где $\langle \hat{\mathbf{j}} \rangle$ определяется коллективным действием внешнего магнитного поля и обменного взаимодействия ионов марганца с дыркой [9, 16].

Конечным состоянием процесса рекомбинации триона X^- является один электрон в КТ, взаимодействие которого с магнитным полем описывается гамильтонианом

$$\hat{H}_{Be} = g_e \mu_B \hat{\mathbf{s}} \cdot \mathbf{B} + \alpha |\psi_e(r)|^2 \hat{\mathbf{s}} \cdot \mathbf{M}, \quad (4)$$

где $\hat{\mathbf{s}}$ — оператор спина, g_e — g -фактор электрона в CdSe ($g_{e,\perp} \approx g_{e,\parallel} \approx g_e$ [14]), α — константа обменного s - d -взаимодействия электронов с ионами Mn, и

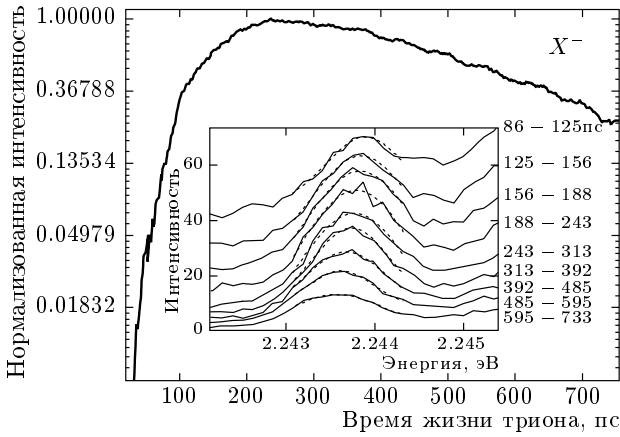


Рис. 3. Кинетика ФЛ триона X^- в образце № 1. Данные приведены в отсутствие магнитного поля, однако время жизни трионов (около 350 пс) практически не зависит от величины поля. На вставке показана эволюция спектра со временем, сигнал время-разрешенного эксперимента просуммирован по интервалам временной развертки, указанным справа от рисунка

обменное поле в намагниченности определяется спином электрона:

$$\mathbf{V}_{ex}^e = \frac{a}{2\mu_B g} |\psi_e(r)|^2 \frac{\hat{s}}{|\langle \hat{s} \rangle|}.$$

Зеемановские сдвиги уровней электрона в магнитном поле равны

$$\Delta E_{1,2} = \pm \frac{1}{2} (g_e \mu_B B + G_e B r_{5/2}(y)), \quad (5)$$

где η_e — доля квадрата волновой функции электрона в барьере ZnMnSe,

$$G_e = \frac{5}{2} \eta_e \alpha N_0 x_{eff}, \quad (6)$$

$B r_{5/2}(y)$ — функция Бриллюэна.

Образование магнитного полярона должно приводить к ряду эффектов в спектре ФЛ: сужению линий ФЛ из-за подавления флуктуаций магнитного момента полярона внешним магнитным полем [3], фиолетовому сдвигу линии ФЛ основного состояния экситонов и трионов с ростом температуры [8], несимметричному расщеплению линий ФЛ триона в геометрии Фарадея, обусловленному обменным полем \mathbf{V}_{ex}^h [7], красному сдвигу линии время-разрешенной ФЛ электронно-дырочного комплекса из-за формирования магнитного полярона.

В исследованных КТ эти эффекты незначительны. На рис. 1 видно, что расщепление линий из-

лучения в геометрии Фарадея почти симметрично по отношению к энергии перехода в нулевом магнитном поле. Далее, на рис. 3 приведены время-разрешенные спектры ФЛ триона в образце № 1, записанные в нулевом магнитном поле, и зависимость интенсивности излучения от времени. Время жизни трионов, определенное из этой зависимости, составляет 350 пс. Красный сдвиг спектра ФЛ в течение времени жизни триона при этом не превышает 0.2 мэВ, что свидетельствует о том, что за время жизни магнитный полярон в исследуемых КТ не успевает сформироваться. Таким образом, влиянием обменного поля следует пренебречь, и величина намагниченности определяется только внешним магнитным полем.

При симметрии КТ, равной D_{2d} , поляризация зеемановских компонент в геометрии Фойгта не привязана к направлениям кристаллографических осей и полностью определяется направлением магнитного поля. На рис. 2 видно, что в эксперименте наблюдается противоположный результат: поляризация линий не зависит от направления магнитного поля. Аналогичное поведение наблюдалось ранее в немагнитных КТ CdSe/ZnSe [10, 11] и даже квантовых ямах [17]. В этих работах было показано, что такое поведение поляризации зеемановских компонент обусловлено смешиванием состояний тяжелых и легких дырок из-за понижения симметрии квантовых ям и КТ вследствие упругих деформаций в плоскости роста. Исследуемые в данной работе КТ выращены в аналогичных условиях, поэтому следует ожидать, что сильная анизотропия потенциала в плоскости вызвана теми же причинами.

Наличие упругих деформаций в плоскости КТ приводит к понижению симметрии одночастичного потенциала КТ и, соответственно, к появлению дополнительного анизотропного члена в гамильтониане для дырок [14]:

$$\hat{V} = b (\hat{j}_x^2 \varepsilon_{xx} + \hat{j}_y^2 \varepsilon_{yy}) + d/\sqrt{3} (\hat{j}_x \hat{j}_y + \hat{j}_y \hat{j}_x) \varepsilon_{xy}, \quad (7)$$

где ε_{ij} — компоненты тензора упругих деформаций, b и d — деформационные константы.

Очень слабая зависимость величины расщепления зеемановских компонент от направления магнитного поля в плоскости КТ CdSe (рис. 2) накладывает дополнительные условия на потенциал. Во-первых, вклад от кубического по j члена в гамильтониане (1) должен быть пренебрежимо мал по сравнению с линейным по j членом, т. е. $\kappa \gg q$ [14]. Во-вторых, в потенциале \hat{V} должны быть существенны только компоненты, приводящие к смешиванию состояний $j_z = 3/2$ и $j_z = -1/2$ и состояний

$j_z = -3/2$ и $j_z = 1/2$, т. е. собственными функциями гамильтониана деформации являются

$$\psi_h^\pm = |\pm 3/2\rangle - \frac{\gamma^\pm}{\Delta E_{lh-hh}} |\mp 1/2\rangle, \quad (8)$$

где

$$\gamma_+ = \langle 1/2 | \hat{V} | -3/2 \rangle, \quad \gamma_- = \langle 1/2 | \hat{V} | -3/2 \rangle^*,$$

$$\gamma^\pm = \gamma e^{\pm 2i\theta} = \frac{\sqrt{3}}{2} b (\varepsilon_{yy} - \varepsilon_{xx}) \pm i d \varepsilon_{xy},$$

ΔE_{lh-hh} — расщепление подзон легких и тяжелых дырок, 2θ — фаза матричного элемента [14]. В симметрии C_{2v} компоненты $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$, так что $lh-hh$ -смешивание определяется деформацией сдвига. При симметрии деформационного потенциала C_2 имеем $\varepsilon_{xx} \neq \varepsilon_{yy}$. В работах [10, 11] было найдено, что в КТ CdSe/ZnSe отношение $\gamma/\Delta E_{lh-hh}$ достигает значения 0.2–0.3. В нулевом поле дырочные состояния $|\psi_h^+\rangle$ и $|\psi_h^-\rangle$ образуют крамерсовский дублет. Магнитное поле приводит к его расщеплению. В КТ CdSe/ZnSe расщепление дырочных уровней в поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ с точностью до членов $(\gamma/\Delta E_{lh-hh})$ равно $\Delta E^0 = 3\mu_B g_{\parallel}^h B$, где $g_{\parallel}^h = g_0 \kappa$ [14].

Обменное p - d -взаимодействие дырок с ионами марганца приводит к дополнительному вкладу в расщепление дырочных уровней ΔE^m .

В поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ вектор $\langle \mathbf{j} \rangle \parallel \mathbf{M} \parallel \mathbf{B}$. В этом случае расщепление уровней ψ_h^\pm равно

$$\begin{aligned} \Delta E_{1,2} &= (\Delta E^0 + \Delta E^m) = \\ &= (3g_{\parallel}^h \mu_B B + G_h B r_{5/2}(y)), \end{aligned} \quad (9)$$

где

$$G_h = \frac{5}{2} \eta_h g_{Mn} \mu_B \beta N_0 x_{eff}, \quad (10)$$

η_h — доля квадрата волновой функции дырки в барьере ZnMnSe, $y = 5g_{Mn} \mu_B B / 2(k_B T)$. Отметим, что знаки G_e и G_h определяются знаками обменных констант α и β : $G_e > 0$, а $G_h < 0$.

В поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$ направления векторов \mathbf{M} и \mathbf{B} для триона могут не совпадать при образовании магнитного полярона, вследствие чего разложение энергий зеемановских компонент в ряд по B и $\gamma/\Delta E_{lh}$ сложнее, чем в случае $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$. Однако в силу малой величины волновой функции дырки в барьере ZnMnSe, как следует из аппроксимации экспериментальных зависимостей, уже в полях 1.5–2 Тл неколлинеарностью

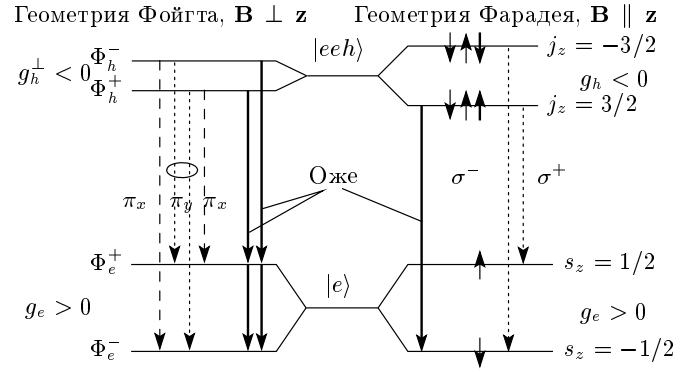


Рис. 4. Схема переходов в трионе X^- в магнитном поле в геометриях Фарадея и Фойгта. Штриховыми линиями отмечены разрешенные оптические переходы в различных поляризациях, а сплошными стрелками — разрешенные безызлучательные оже-переходы. Их порядок зависит от знаков и величин g -факторов

векторов \mathbf{M} и \mathbf{B} можно пренебречь. В этом случае также $\Delta E_{1,2} = \pm(\Delta E^0 + \Delta E^m)$, где

$$\begin{aligned} \Delta E^m &= G_h B r_{5/2}(y) \left(\frac{2\sqrt{3}\gamma}{\Delta E_{lh-hh}} \right), \\ \Delta E^0 &= \mu_B g_{\perp}^h B \left(\frac{2\sqrt{3}\gamma}{\Delta E_{lh-hh}} \right). \end{aligned} \quad (11)$$

Второй член в величине расщепления $\Delta E_{1,2}$ обязан своим появлением эффекту p - d -взаимодействия между спинами Mn и дырки, локализованной в КТ [3]; g -фактор дырки в поперечном магнитном поле равен $g_{\perp}^h = 2\sqrt{3}\gamma g_{\parallel}^h / \Delta E_{lh-hh}$ [10].

Так же как и в случае немагнитных КТ CdSe/ZnSe, собственными функциями гамильтониана \hat{H}_{Bh} являются состояния

$$\Phi_h^\pm = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\pm e^{-i\varphi_h/2} |\psi_h^+\rangle + e^{i\varphi_h/2} |\psi_h^-\rangle \right),$$

где $\varphi_h = \varphi + 2\theta$. Собственными функциями электрона в поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$ являются состояния $\Phi_e^\pm = |\pm 1/2\rangle_B$ с проекцией спина $\pm 1/2$ на направление поля \mathbf{B} .

Для идентификации наблюдаемых переходов в спектрах ФЛ КТ обратимся к схеме разрешенных оптических переходов в КТ CdSe/ZnSe, приведенной на рис. 4 с указанием их поляризации при измерении в геометрии Фарадея ($\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$) и в геометрии Фойгта ($\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$). В этой схеме учтено, что g -фактор электрона больше нуля и σ^- -переход имеет энергию больше, чем σ^+ -переход. Измеренные зависимости энергий переходов в магнитном поле в геометриях Фарадея и Фойгта для трионов в образцах № 1 и № 2

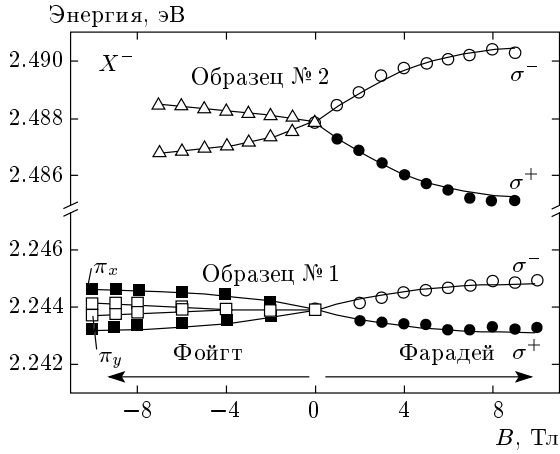


Рис. 5. Зеемановский сдвиг линий ФЛ триона в магнитном поле в геометриях Фойгта и Фарадея для двух образцов (№ 1 и № 2). Экспериментальные результаты — положение максимумов линии ФЛ (обозначены на рисунке символами), аппроксимируются подгоночными кривыми (сплошные линии) по формулам (12) и (13)

приведены на рис. 5. Аппроксимация зеемановского сдвига линий в геометрии Фарадея, показанная на рис. 5 сплошными линиями, осуществлялась с помощью выражения

$$E_{1,2} = E_0 \pm \frac{1}{2} \left[GBr(y) + (3g_{\parallel}^h - g_e)\mu_B B \right], \quad (12)$$

где

$$y = \frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2kT_{eff}}.$$

Подгоночными параметрами являлись коэффициент $G = G_h - G_e$ и T_{eff} — эффективная температура.

В геометрии Фойгта расщепления пар одинаково линейно-поляризованных $\Delta E_{1,2}$ и $\Delta E_{3,4}$ линий триона описываются выражениями

$$\begin{aligned} E_{1,2} &= E_0 \pm \frac{1}{2} \left[\left(G_h Br(y) + 3g_{\parallel}^h \mu_B B \right) a + \right. \\ &\quad \left. + (G_e Br(y) + g_e \mu_B B) \right], \\ E_{3,4} &= E_0 \pm \frac{1}{2} \left[\left(G_h Br(y) + 3g_{\parallel}^h \mu_B B \right) a - \right. \\ &\quad \left. - (G_e Br(y) + g_e \mu_B B) \right], \end{aligned} \quad (13)$$

где подгоночными параметрами являлись G_e , G_h , параметр

$$a = \frac{g_{\perp}^h}{3g_{\parallel}^h} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\gamma}{\Delta E_{lh-hh}},$$

пропорциональный $lh-hh$ -смешиванию, и эффективная температура T_{eff} .

При аппроксимации были использованы значения g -факторов электронов и дырок в немагнитных КТ CdSe $3g_h - g_e = 1.56$, $g_e = 1.1$, найденные ранее в работах [12, 18].

Необходимо отметить, что параметр G_h , отвечающий вкладу от обменного $p-d$ -взаимодействия, является отрицательным и существенно превышает немагнитный вклад даже в случае меньшего влияния магнитной примеси (образец № 1), поэтому первое слагаемое в квадратных скобках в формуле (9), соответствующее дырочному вкладу в сдвиг линий в геометрии Фойгта, оказывается отрицательным.

Зеемановские расщепления в обеих геометриях аппроксимировались при одинаковых параметрах G_e , G_h , T_{eff} . При этом значения G_e были получены из расщепления в геометрии Фойгта линий, отвечающих переходам из одного дырочного состояния, например Φ_h^+ , в различные электронные Φ_e^{\pm} , а $G = G_h - G_e$ — из расщепления зеемановских компонент в геометрии Фарадея. Для образца № 1 аппроксимация дает следующие значения: $G_h = -2.8$ мэВ, $G_e = 0.4$ мэВ, $a = 0.2$ и $T_{eff} = 7$ К. Дублетная структура линии излучения триона в геометрии Фойгта в образце № 2 обусловлена опустошением верхнего уровня вследствие быстрой спиновой релаксацией дырки. Поэтому расщепление компонент в геометрии Фойгта связано с расщеплением электронного уровня в конечном состоянии. Из аппроксимации для образца № 2 были найдены следующие значения параметров: $G_h = -5.7$ мэВ, $G_e = 1.4$ мэВ, $a = 0.3$, $T_{eff} = 6$ К.

В немагнитных КТ в геометрии Фойгта следствием деформационного $lh-hh$ -смешивания является почти стопроцентная линейная поляризация линий излучения триона вдоль осей симметрии потенциала КТ [10]. Вероятности переходов $\pi_x-I_{1,2}$ и $\pi_y-I_{3,4}$ поляризованных компонент в спектре равны:

$$\begin{aligned} I_{1,2} &= |\langle \Phi_h^{\mp} | \mathbf{e} \cdot \mathbf{d} | \Phi_e^{\pm} \rangle|^2 = \\ &= \left(1 - \frac{k\gamma}{\Delta E_{lh-hh}} \right)^2 \cos^2(\phi - \theta), \\ I_{3,4} &= |\langle \Phi_h^{\pm} | \mathbf{e} \cdot \mathbf{d} | \Phi_e^{\pm} \rangle|^2 = \\ &= \left(1 + \frac{k\gamma}{\Delta E_{lh-hh}} \right)^2 \sin^2(\phi - \theta), \end{aligned} \quad (14)$$

где ϕ — угол поляризации излучения, \mathbf{e} — единичный вектор вдоль направления электрического поля, \mathbf{d} — дипольный момент, $k^2 = 1/3$ — отношение сил осцилляторов электронно-дырочной рекомбинации с участием соответственно легкой и тяжелой дырок. Учет обменного $sp-d$ -взаимодействия не изме-

няет этих выражений до тех пор, пока зеемановское расщепление заметно меньше E_{lh-hh} .

Величины эффективных g -факторов при $B = 0$ характеризуют влияние $sp-d$ -взаимодействия ионов Mn с электрона и дырками. Из анализа энергий переходов в трионе на рис. 4, 5 следует, что расщепление компонент в геометрии Фойгта в образце №1 описывается двумя g -факторами, равными 1.2 ± 0.2 и 2.4 ± 0.2 . Учитывая, что в немагнитных КТ CdSe/ZnSe $g_e \approx 1.1$, а обменное взаимодействие с ионами Mn дает большой положительный вклад в g -фактор, мы приписываем значение 2.4 ± 0.2 g -фактору электрона $g_{eff}^e = \Delta E_{1,2}^e / \mu_B B$. Таким образом, g -фактору дырки в поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$ отвечает $g_1^h = \Delta E_{1,2}^h / \mu_B B = 1.2 \pm 0.2$.

В геометрии Фарадея из аппроксимации расщепления σ^+ - и σ^- -компонент следует, что $g_{eff}^e - 3g_{eff}^h = 6.0 \pm 0.3$. Принимая во внимание найденное выше значение эффективного электронного g -фактора $g_{eff}^e = 2.4 \pm 0.2$ и последовательность σ^+ - и σ^- -компонент в спектре, находим, что $3g_{eff}^h = \Delta E_{1,2}^h / \mu_B B = -3.6 \pm 0.3$. В образце №2 с большим проникновением волновых функций (рис. 1б) расщепление σ^+ - и σ^- -компонент отвечает разности $g_{eff}^e - 3g_{eff}^h = 19 \pm 0.4$, эффективный электронный g -фактор из аппроксимации в геометрии Фойгта $g_{eff}^e = 5.2 \pm 0.3$. Отсюда следует, что $3g_{eff}^h = 13.8 \pm 0.3$. Вычитая из найденных значений эффективных g -факторов электронов и дырок их значения в немагнитных КТ, находим, что вклады от обменного взаимодействия электронов и дырок с ионами Mn равны соответственно $g_{eff}^e - g_e = 1.3$ и $3g_{eff}^h - 3g_h = -6.1$ для образца №1 и $g_{eff}^e - g_e = 4.1$ и $3g_{eff}^h - 3g_h = -16.4$ для образца №2.

Таким образом, отношение вкладов в g -факторы дырок g_{eff}^h и электронов g_{eff}^e в исследуемых КТ составляет около 4 : 1, что совпадает с их отношением в объемном ZnMnSe [15], т. е. доля волновых функций электрона и дырки, находящейся в удаленном барьере ZnMnSe, одинакова. Величина проникновения квадрата волновой функции носителей в удаленный барьер ZnMnSe ($\eta_{e,h}$) может быть оценена из значений подгоночных параметров $G = G_h - G_e$, поскольку согласно формулам (6) и (10) величина $\eta \propto G$. Для КТ в образцах №1 и №2 величины G равны соответственно -3.2 мэВ и -7.1 мэВ. Ранее [3] было найдено, что в КТ CdSe/ZnMnSe без промежуточного барьера ZnSe с примерно такой же эффективной концентрацией магнитной примеси $G = -30 \div 34$ мэВ. В КТ CdSe/ZnMnSe доля квадрата волновой функции в полумагнитном барьере

легко оценивается из расчетов: $\eta_{e,h} \sim 50\%$. Таким образом, в исследованных образцах $\eta_{e,h}$ составляет примерно 5 % (образец №1) и 12 % (образец №2).

3.3. Оже-рекомбинация и спиновая релаксация

Добавление Mn в полупроводники ведет к ускорению спиновой релаксации электронов и дырок, вследствие чего в магнитном поле наблюдается излучение только из основного состояния [3, 7]. Кроме того, в КТ CdSe с шириной запрещенной зоны, превышающей энергию внутривещного перехода в Mn из состояния 6A_1 в состояние 4T_1 , равную около 2.1 эВ, добавление марганца приводит к существенному уменьшению времени жизни экситонных состояний вследствие эффективной безызлучательной оже-рекомбинации экситонов с возбуждением электронов Mn [9]. Скорость оже-рекомбинации зависит от концентрации марганца, величин волновых функций электрона и дырки на атоме Mn и спинов электрона, дырки и ионов Mn. Как было получено в измерениях время-разрешенной ФЛ на массиве КТ в $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$ с $x \sim 0.1$, время оже-рекомбинации при $B = 0$ оказывается меньше, чем 10 пс.

Для измерения времени жизни заряженных экситонов в КТ CdSe/ZnSe/ZnMnSe с малой (порядка 5 %) долей электронных волновых функций в полумагнитном барьере (рис. 1а) была исследована кинетика излучения при импульсном пикосекундном возбуждении (рис. 3). Затухание линии ФЛ трионов имеет экспоненциальный характер с временем $\tau \sim 350$ пс и почти не изменяется в магнитном поле как для основного, так и для возбужденного состояний. Найденное время жизни трионов близко к их времени жизни в немагнитных КТ (порядка 500 пс) [19]. Таким образом, в КТ с $\eta_{e,h} \sim 5\%$ обменное взаимодействие спинов электронов и дырок со спинами ионов Mn еще не приводит ни к заметной безызлучательной оже-рекомбинации, ни к заметному изменению скорости спиновой релаксации, хотя при этом обменный вклад в g -фактор дырок уже превышает его величину в немагнитных КТ.

При увеличении доли волновой функции электронов и дырок в полумагнитном барьере ситуация заметно изменяется. Для образца №2 (рис. 1б) квантовый выход излучения из заряженных КТ в нулевом магнитном поле почти на порядок величины меньше, чем для образца №1. Следовательно, в образце №2 безызлучательный канал

оже-рекомбинации экситонов становится доминирующим. Включение магнитного поля ведет к нетривиальному поведению интенсивности излучения из основного и возбужденного электронно-дырочных состояний в КТ. Так, в трионе (рис. 1) с $g_{eff}^e > 0$, $g_{eff}^h < 0$ переходу из основного спинового состояния с $j_z = 3/2$ отвечает низкоэнергетическая σ^+ -компонента. Поэтому естественно ожидать, что при наличии спиновой релаксации дырок интенсивность этой компоненты будет расти с полем, а фиолетовой σ^- -компоненты, отвечающей переходу из возбужденного спинового состояния, — уменьшаться. Однако на рис. 1б видно, что в магнитном поле интенсивность σ^+ -компоненты почти не изменяется, в то время как интенсивность фиолетовой σ^- -компоненты растет с увеличением поля.

Такое поведение спектра излучения в магнитном поле связано с различием времен оже-рекомбинации с возбуждением иона Mn из состояния 1A_6 ($s_{Mn} = 5/2$) в возбужденное состояние 4T_1 ($s_{Mn} = 3/2$) для трионов с $J_z = 3/2, -3/2$, вытекающим из требования сохранения при оже-рекомбинации проекции полного спина системы трион + ион марганца $S_z = s_{Mn,z} + s_z$. Здесь $s_{Mn,z}$ — проекция спина иона Mn, а s_z — спин дырки. Действительно, в силу слабого спин-орбитального взаимодействия начальное и конечное состояния иона марганца в кристаллическом поле характеризуются спином и его проекцией при условии, что магнитное поле достаточно для выстраивания спинов Mn ($g_{Mn}\mu_B B > kT$). Орбитальный момент электронов d -оболочки и его проекция перестают быть хорошими квантовыми числами под действием кристаллического поля. С другой стороны, в сильном магнитном поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ состояния тяжелой дырки наряду с определенной проекцией момента $j_z = \pm 3/2$ характеризуются и определенной проекцией спина s_z (для легкой дырки $|\pm 1/2$) это утверждение уже неверно). Поскольку центральное кулоновское взаимодействие между электронами валентной зоны и d -электронами марганца не смешивает состояний с разными S_z , правила отбора для оже-рекомбинации электронно-дырочных комплексов в КТ определяются равенством S_z в начальном и конечном состояниях. Заметим, что оже-рекомбинация возможна только благодаря p - d -взаимодействию локализованных электронов d -оболочки Mn с делокализованными электронами валентной зоны, так как в этом случае кулоновские интегралы оже-перехода не равны нулю благодаря подмешиванию нечетных состояний валентной зоны к четным состояниям $3d^5$ -оболочки Mn [9].

Рассмотрение правил отбора для оже-рекомбина-

ции показывает, что в магнитном поле, достаточном для выстраивания спинов Mn, оже-рекомбинация дырки в основном состоянии триона ($j_z = 3/2$) разрешена для перехода в основное состояние электрона в КТ с $s_z = -1/2$, поскольку такой переход удовлетворяет закону сохранения суммы проекций спина иона Mn $s_{Mn,z}$ и спинов электронов и дырок в КТ. Действительно, в этом случае в исходном состоянии спин Mn $s_{Mn,z} = -5/2$, в трионе с $j_z = 3/2$ полный спин электронов равен нулю, спин дырки в состоянии $j_z = 3/2$ равен $s_z = 1/2$, и, следовательно, в трионе $s_{trion,z} = 1/2$, а полная сумма проекций $S_z = -2$. В конечном состоянии оже-перехода марганца находится в возбужденном состоянии $^4T_1(3/2)$. Проекция спина Mn в этом состоянии $s_{Mn,z}(^4T_1) \geq -3/2$, поэтому единственным разрешенным переходом является переход в состояние с проекцией спина электрона КТ $s_z = -1/2$ и проекцией спина марганца $s_{Mn,z} = -3/2$. Для триона в возбужденном спиновом состоянии $j_z = -3/2$, проекция спина триона $s_{trion,z} = -1/2$, сумма $S_z = s_{trion,z} + s_{Mn,z} = -3$, в то время как в конечном состоянии минимальное значение $S_z = -2$. Как следствие, оже-переходы из возбужденного спинового состояния триона оказываются запрещенными, а на квантовый выход излучения из этого состояния влияет только спиновая релаксация дырок в трионе.

Из сказанного выше следует, что соотношение интенсивностей основного и возбужденного состояний триона в КТ определяется соотношением трех времен: времени излучательной рекомбинации τ_r , времени оже-рекомбинации τ_{Auger} и времени спиновой релаксации дырок τ_s . В частности, относительный рост заселения возбужденного состояния происходит при $\tau_{Auger} < \tau_s/2$. Таким образом, из эксперимента следует, что добавление марганца в барьер КТ CdSe в поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ оказывает существенно большее влияние на скорость оже-рекомбинации, чем на скорость спиновой релаксации дырок. Малая скорость спиновой релаксации дырок в поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ обусловлена тем, что она требует изменения $\Delta j_z = 3$. В поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$, смешивающем состояния дырок с $j_z = 3/2, -3/2$, наличие ионов Mn, наоборот, ведет к быстрой спиновой релаксации дырок уже при $\eta_{e,h} \sim 12\%$. В то же время, смешивание дырочных состояний с $j_z = 3/2, -3/2$ в поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$ приводит к тому, что выстраивание спинов Mn в сильном магнитном поле оставляет разрешенной безызлучательную оже-рекомбинацию и в нижнем, и в верхнем спиновом состояниях триона. Как следствие, в геометрии Фойгта в спектре излучения наблюдаются переходы только из основного состояния триона.

4. ВЫВОДЫ

Низкотемпературные исследования спектров ФЛ индивидуальных КТ CdSe/ZnSe/ZnMnSe с относительно малой величиной обменного $sp-d$ -взаимодействия между ионами магнитной примеси и носителями заряда в КТ в магнитном поле до 12 Тл, ориентированном как вдоль, так и поперек плоскости роста структуры, позволили наблюдать, разрешить спектрально и идентифицировать зеемановские компоненты в спектрах излучения отрицательно заряженных экситонов. Величина обменного взаимодействия регулировалась путем изменения доли волновых функций носителей ($\eta_{e,h}$) в полумагнитном барьере с помощью вариации толщины немагнитного барьера ZnSe. Проанализирован эффект взаимодействия носителей заряда с ионами Mn в отсутствие поля и в магнитном поле при различных ориентациях поля относительно осей КТ на энергетическую структуру уровней трионов, скорость их оже-рекомбинации с возбуждением ионов Mn и скорость спиновой релаксации.

Найдено, что вплоть до $\eta_{e,h} \sim 5\%$ скорости спиновой релаксации и безызлучательной оже-рекомбинации трионов в КТ CdSe/ZnSe/ZnMnSe остаются меньше времени излучательной рекомбинации. При этом эффективный g -фактор дырки в магнитном поле, перпендикулярном плоскости КТ, уже меняет знак и достигает значения $3g_{eff}^h = -3.6 \pm 0.3$. Дальнейшее увеличение $\eta_{e,h}$ до 12% ведет к существенному уменьшению квантового выхода излучения трионов как в нулевом поле, так и в поле, параллельном плоскости КТ из-за роста скорости оже-рекомбинации с возбуждением электронов Mn. В геометрии Фарадея магнитное поле приводит к возгоранию излучения из возбужденного состояния трионов ($j_z = -3/2$), в то время как интенсивность излучения из основного состояния остается низкой. Показано, что такое неожиданное поведение излучения трионов при $\mathbf{B} \parallel \mathbf{z}$ обусловлено двумя факторами: запретом оже-рекомбинации из состояний триона с $j_z = -3/2$ и малой эффективностью спиновой релаксации дырок в трионе, требующей изменения $\Delta j_z = 3$. В поле $\mathbf{B} \perp \mathbf{z}$, смешивающем состояния дырок с $j_z = 3/2, -3/2$, наличие ионов Mn ведет к быстрой спиновой релаксации дырок уже при $\eta_{e,h} \sim 12\%$.

Авторы выражают благодарность А. В. Кудину, К. В. Кавокину, Ю. Г. Кусраеву, А. А. Максимова и Е. Л. Ивченко за плодотворное обсуждение работы. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ.

ЛИТЕРАТУРА

1. B. Patton, W. Langbein, and U. Woggon, Phys. Rev. B **68**, 125316 (2003).
2. A. Hundt, J. Puls, and F. Henneberger, Phys. Rev. B **69**, 121309 (2004).
3. P. S. Dorozhkin, A. V. Chernenko, V. D. Kulakovskii, A. S. Brichkin et al., Phys. Rev. B **68**, 195313 (2003).
4. P. S. Dorozhkin, V. D. Kulakovskii, A. V. Chernenko, A. S. Brichkin et al., Appl. Phys. Lett. **86**, 062507 (2005).
5. P. S. Dorozhkin, A. S. Brichkin, V. D. Kulakovskii, A. V. Chernenko et al., Phys. Stat. Sol. (a) **202**, 2609 (2005).
6. D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computations*, Springer-Verlag, Berlin (2002).
7. A. A. Maksimov, G. Bacher, A. McDonald et al., Phys. Rev. B **62**, R7767 (2000).
8. G. Bacher, A. A. Maksimov, H. Schoemig et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 127201 (2002).
9. A. V. Chernenko, P. S. Dorozhkin, V. D. Kulakovskii, A. S. Brichkin et al., Phys. Rev. B **72**, 045302 (2005).
10. A. V. Kudinov, I. A. Akimov, Yu. G. Kusraev, and F. Henneberger, Phys. Rev. B **70**, 241305R (2004).
11. Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault et al., Phys. Stat. Sol. (b) **243**, 3912 (2006).
12. V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1780 (1999).
13. J. Puls, M. Rabe, H.-J. Wuensche, and F. Henneberger, Phys. Rev. B **60**, R16303 (1999).
14. E. L. Ivchenko and G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures: Symmetry and Optical Phenomena*, Springer-Verlag, New York (1995).
15. J. K. Furdyna, J. Appl. Phys. **64**, R29 (1988).
16. I. A. Merkulov and K. V. Kavokin, Phys. Rev. B **52**, 1751 (1995).
17. Yu. G. Kusrayev, A. V. Koudinov, I. G. Aksyanov et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 3176 (1999).
18. J. A. Gupta, D. D. Awschalom, A. L. Efros, and A. V. Rodina, Phys. Rev. B **66**, 125307 (2002).
19. T. Flissikowski, I. A. Akimov, A. Hundt, and F. Henneberger, Phys. Rev. B **68**, 161309R (2003).