

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе
Российской академии наук

на правах рукописи

Некрасов Сергей Васильевич

**ОПТИЧЕСКАЯ ОРИЕНТАЦИЯ СПИНОВ В
ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ InP/(In,Ga)P
И (In,Al)As/AlAs**

Специальность:

01.04.07 – физика конденсированного состояния

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

научный руководитель:

доктор физико-математических наук

Ю.Г. Кусраев

Санкт-Петербург

2021

Оглавление

Введение	5
1 Методика эксперимента	10
1.1 Экспериментальная установка 1 для стационарных исследований фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P и (In,Al)As/AlAs	11
1.2 Экспериментальная установка 2 для исследования динамики фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P	13
1.3 Экспериментальная установка 3 для исследования импульсно возбуждаемой фотолюминесценции квантовых точек (In,Al)As/AlAs	14
1.4 Образцы	16
1.4.1 Квантовые точки InP/(In,Ga)P	16
1.4.2 Квантовые точки (In,Al)As/AlAs	18
2 Динамика отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P	20
2.1 Введение	20
2.2 Модели отрицательной циркулярной поляризации, представленные в литературе	24
2.2.1 Модель 1. Большие квантовые точки	24
2.2.2 Модель 2. Нерезонансное возбуждение фотолюминесценции в маленьких квантовых точках	27
2.2.3 Модель 3. Квазирезонансное возбуждение фотолюминесценции в маленьких квантовых точках	28
2.2.4 Модель 4. Маленькие квантовые точки с двумя резидентными электронами	30

2.2.5 Выводы	31
2.3 Вводные стационарные исследования отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции	32
2.4 Динамика интенсивности и отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции	35
2.5 Динамика отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции в магнитном поле в геометрии Фойхта	37
2.5.1 Моделирование спиновой динамики ансамбля отрицательно заряженных экситонов в основном состоянии	38
2.5.2 Вклад спиновой ориентации электронов в поляризацию фотолюминесценции отрицательно заряженных экситонов	40
2.5.3 Влияние ядерного поля на деполаризацию фотолюминесценции	42
2.6 Промежуточные итоги главы 2	43
3 Спиновые биения в динамике поляризации фотолюминесценции заряженных экситонов в квантовых точках InP/(In,Ga)P при наличии ядерного квадрупольного взаимодействия	45
3.1 Введение	45
3.2 Экспериментальные результаты. Зависимость циркулярной поляризации фотолюминесценции от магнитного поля	47
3.3 Обсуждение	51
3.3.1 Вклады в фотолюминесценцию положительно и отрицательно заряженных экситонов. Интерпретация экспериментальных результатов	51
3.3.2 Влияние ядерного квадрупольного взаимодействия на спиновую систему ядер и электронов	53
3.3.3 Количественное описание динамики поляризации фотолюминесценции заряженных экситонов в отсутствие динамической поляризации ядер	54
3.4 Промежуточные итоги главы 3	57

4	Тонкая структура экситонных уровней в прямозонных и непрямозонных в k-пространстве квантовых точек (In,Al)As/AlAs	59
4.1	Введение	59
4.2	Спектральное разделение прямозонных и непрямозонных в k-пространстве квантовых точек	61
4.2.1	Нерезонансное возбуждение время-разрешенной фотолюминесценции	61
4.2.2	Селективное возбуждение стационарной фотолюминесценции квантовых точек	62
4.3	Оптическая ориентация спинов и выстраивание экситонов в прямозонных и непрямозонных в k-пространстве квантовых точек	67
4.3.1	Спектральная зависимость оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов	67
4.3.2	Анизотропное обменное расщепление состояний прямых в k-пространстве экситонов	70
4.3.3	Спиновая релаксация электронов в непрямозонных в k-пространстве квантовых точек	72
4.4	Промежуточные итоги главы 4	75
	Заключение	76
	Список литературы	81

Введение

Отправной точкой становления оптической ориентации (накачки) спинов как области физической науки можно считать проведенные в 1920-х годах эксперименты R.W. Wood и A. Ellett [1]. Исследователи наблюдали деполяризацию флуоресценции паров ртути в слабом магнитном поле (в поле земли). W. Hanle детально исследовал данное явление и предоставил его физическое обоснование [2]. Далее, в 1949 году J. Brossel и A. Kastler представили результаты исследований по оптической накачке в атомах [3]. A. Kastler и представители его школы активно продолжили исследования в 1950-х и 1960-х годах. За проделанную работу, которая послужила основой теоретическим представлениям и экспериментальным методам современной спинтроники, A. Kastler в 1966 году был удостоен нобелевской премии [4]. Результаты первых экспериментов по оптической ориентации спинов в полупроводниках были представлены G. Lampel в 1968 году [5], после чего усилиями групп Ленинградского Физико-технического института и Парижского Ecole Polytechnique проводились активные исследования в данном направлении, продолжающиеся многими научными группами по всему миру и сейчас.

В настоящее время актуальность оптической ориентации спинов обусловлена, в частности, возможностью ее применения в устройствах спинтроники. Спинтроника представляет собой перспективную область электроники, в которой используется спиновая степень свободы. Приборы спинтроники в сравнении с приборами классической электроники могут обладать такими преимуществами как высокая скорость обработки данных, низкое энергопотребление, а также высокая плотность размещения элементов в устройстве [6].

В данной диссертационной работе исследованы полупроводниковые квантовые точки (КТ). КТ являются перспективными объектами для реализации устройств спинтроники [7,8], поскольку механизмы спиновой релаксации объемных материалов, обусловленные движением носителей [9], подавляются в КТ [10].

В диссертационной работе исследованы эпитаксиальные КТ A_3B_5 InP/(In,Ga)P, а также (In,Al)As/AlAs. Данные КТ являются хорошими модельными объектами в силу высокого кристаллического совершенства и относительной простоты роста, обусловленной использованием свойства самоорганизации КТ. Кроме того, КТ A_3B_5 излучают в красной и инфракрасной области спектра, что позволяет использовать современные приборы возбуждения и детектирования фотолюминесценции (ФЛ). Представляет интерес применение КТ InP/(In,Ga)P в лазерах [11-13], а также в качестве источников одиночных фотонов [14,15]. КТ (In,Al)As/AlAs к настоящему времени исследованы мало. Данные КТ интересны длинным временем жизни экситонов, которое может достигать миллисекунд [16] в силу того, что КТ (In,Al)As/AlAs могут быть непрямозонными в k-пространстве [17]. При этом в КТ (In,Al)As/AlAs время спиновой релаксации фотовозбужденного экситона может превосходить время жизни, см. главу 4. Отметим, что продолжительное время жизни спина необходимо для реализации устройств спинтроники.

Сказанное выше определяет актуальность темы диссертации. Цель диссертационной работы заключается в экспериментальном исследовании спиновых свойств полупроводниковых квантовых точек A_3B_5 при помощи выстраивания экситонов и оптической ориентации спинов. Научная новизна работы заключается в том, что впервые были решены следующие задачи:

- Экспериментальное исследование динамики отрицательной циркулярной поляризации (ОЦП) ФЛ ансамбля КТ InP/(In,Ga)P в магнитном поле в геометрии Фойхта. Определение причин отсутствия осцилляций в динамике ОЦП в магнитном поле.
- Экспериментальное исследование влияния ядерного квадрупольного взаимодействия на динамику поляризации ФЛ положительно и отрицательно заряженных, а также нейтральных экситонов в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P.
- Изучение спектров ФЛ ансамбля КТ (In,Al)As/AlAs при различных длинах волн возбуждающего света. Спектральное разделение полос ФЛ, соответствующих прямозонным и непрямозонным в k-пространстве КТ.
- Экспериментальное изучение оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов как в прямозонных, так и в непрямозонных в k-пространстве КТ (In,Al)As/AlAs, в том числе с приложением магнитного поля. Изучение анизотропного обменного взаимодействия электрона и тяжелой дырки в прямых и

непрямых оптически активных экситонах. Исследование механизма спиновой релаксации экситонов в непрямозонных КТ.

Методология исследования. Для исследования спиновых свойств КТ был использован метод спектроскопии поляризованной ФЛ с приложением магнитного поля. Интенсивность и поляризация ФЛ измерялась как в стационарном режиме, так и в импульсном режиме работы возбуждающего ФЛ лазера с временным разрешением регистрируемого сигнала. В ряде экспериментов (в том числе импульсных) поляризация возбуждающего света модулировалась на частоте порядка десятков килогерц с целью исключить динамическую поляризацию ядер [18].

Практическая значимость диссертационной работы состоит в том, что были получены оригинальные результаты, приведенные в Заключение. Полученные результаты расширяют область научных знаний по теме диссертации, что может быть полезно как в практических применениях, например, при реализации устройств спинтроники, так и в процессе дальнейшего фундаментального изучения оптических свойств КТ.

Основные положения, выносимые на защиту:

- 1) В ансамбле квантовых точек $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ отсутствуют биения в спиновой динамике X^- трионов, детектируемой по поляризации фотолюминесценции, в магнитном поле в геометрии Фойхта. Отсутствие биений обусловлено тем, что: (i) спин триона в основном состоянии определяется тяжелой дыркой; (ii) ларморовская прецессия электронных спинов в магнитном поле, происходящая до формирования основного состояния комплекса, приводит исключительно к деполяризации триона.
- 2) В ансамбле квантовых точек $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ сосуществуют фотовозбужденные X^- и X^+ трионы. В результате наблюдается сложная спиновая динамика в магнитном поле в геометрии Фойхта: биения происходят на фоне монотонно затухающего во времени вклада. Динамическая поляризация ядер имеет место лишь при наличии в квантовых точках резидентных электронов, в результате чего ядерное квадрупольное взаимодействие позволяет разделить вклады X^- и X^+ трионов.
- 3) В ансамбле квантовых точек $(\text{In,Al})\text{As}/\text{AlAs}$ сосуществуют прямозонные и непрямозонные в k -пространстве квантовые точки, к которым можно обращаться независимо, используя селективное оптическое возбуждение. В прямозонных квантовых точках анизотропное обменное расщепление состояний оптически

активных экситонов величиной 260 мкэВ приводит к отсутствию оптической ориентации спинов и способствует выстраиванию экситонов.

- 4) В непрямозонных в k -пространстве квантовых точках $(\text{In,Al})\text{As}/\text{AlAs}$ наблюдается длинное время спиновой релаксации электронов (>10 мкс). Эффект обусловлен малостью изотропного обменного расщепления (δ_0) и анизотропного обменного расщепления состояний оптически активных экситонов (δ_b), не превосходящих расщепления электронных состояний флуктуациями сверхтонкого ядерного поля: $\delta_0, \delta_b < 0.2$ мкэВ.

Достоверность полученных в диссертационной работе результатов обусловлена использованием проверенных экспериментальных техник и физических принципов. Кроме того, активно принимались во внимание имеющиеся в литературе результаты исследований по тематике работы.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на семинарах лаборатории Спиновых и оптических явлений в полупроводниках ФТИ им. А.Ф. Иоффе, на Низкоразмерном семинаре ФТИ им. А.Ф. Иоффе (2020), на Российской молодежной конференции по физике и астрономии «Физика.СПб» (Санкт-Петербург, 2014), на международной молодежной конференции «Физика.СПб» (Санкт-Петербург, 2015), на 3^{ей} международной школе-конференции «Saint-Petersburg OPEN 2016» по оптоэлектронике, фотонике, нано- и нанобиотехнологиям» (Санкт-Петербург, 2016), на международной школе-семинаре «Экситоны в кристаллах и наноструктурах. К 120-летию со Дня Рождения Е.Ф. Гросса» (Санкт-Петербург, 2017), а также на «Совещании по теории твердого тела» ФТИ им. А.Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, 2019).

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в 4 работах [A1-A4], опубликованных в рекомендованных ВАК журналах. Список работ приведен в Заключении.

Личный вклад. Все приведенные в диссертационной работе результаты были получены либо автором диссертации лично, либо в соавторстве при его непосредственном участии.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из Введения, четырех глав, Заключения и списка литературы, который насчитывает 62 научные работы. Диссертация содержит 86 страниц текста и 28 рисунков.

Во Введении представлена историческая панорама развития оптической ориентации спинов как области физической науки, актуальность темы диссертации, поставленная цель и решенные задачи. Также изложена практическая значимость, методология работы и степень достоверности результатов. Приведены основные положения, апробация результатов и структура диссертации.

В первой главе обсуждается методика проведения эксперимента. Детально описаны три экспериментальные установки, на которых были проведены исследования, а также описаны два типа образцов, содержащих полупроводниковые КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ и $(\text{In,Al})\text{As}/\text{AlAs}$.

Во второй главе представлены модели формирования ОЦП ФЛ, имеющиеся в литературе. Приведены результаты изучения динамики ОЦП ФЛ ансамбля КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ как в отсутствие, так и при наличии магнитного поля. Выявлены причины отсутствия осцилляций в динамике ОЦП.

В третьей главе представлены результаты изучения динамики поляризации ФЛ положительно и отрицательно заряженных, а также нейтральных экситонов в ансамбле КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$. Изучено влияние ядерного квадрупольного взаимодействия на спиновую динамику электронов. Выявлены причины наличия монотонно затухающего во времени вклада на фоне которого наблюдаются биения в динамике поляризации ФЛ положительно заряженных экситонов.

В четвертой главе приводятся результаты исследования выстраивания экситонов и оптической ориентации ФЛ ансамбля КТ $(\text{In,Al})\text{As}/\text{AlAs}$ в магнитном поле и в его отсутствие. Изучены особенности тонкой структуры уровней как прямых, так и непрямых в k -пространстве экситонов. Исследованы особенности спиновой релаксации электронов в прямозонных в k -пространстве КТ.

В Заключении приведены основные результаты диссертационной работы.

В диссертации формулы и рисунки нумеруются по главам, нумерация ссылок на литературу сквозная, единая для всей работы.

Глава 1

Методика эксперимента

В диссертационной работе основным методом исследования является спектроскопия поляризованной фотолюминесценции. Использование селективного по длине волны возбуждения и детектирования ФЛ позволяет выделять из ансамбля квантовых точек подансамбль, обладающий определенными свойствами, такими как размер квантовых точек, наличие (или отсутствие) в них резидентных носителей, тип оптических переходов и т.д.. При помощи оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов с приложением магнитного поля исследовалась тонкая структура уровней экситонов, спиновая релаксация носителей, обменное взаимодействие электрона и дырки, а также сверхтонкое взаимодействие электронов и ядер. Для непосредственного изучения спиновой динамики изучалась оптическая ориентация ФЛ с разрешением по времени. В работе использовались три экспериментальные установки 1-3, см. разделы 1.1-1.3 соответственно. Общая схема установок представлена на Рисунке 1.1. Исследовались образцы с полупроводниковыми эпитаксиальными квантовыми точками A_3B_5 : InP/(In,Ga)P и (In,Al)As/AlAs. На установке 1 проводились стационарные исследования ФЛ как КТ InP/(In,Ga)P, так и КТ (In,Al)As/AlAs. На установке 2 проводились исследования ФЛ КТ InP/(In,Ga)P с разрешением по времени при импульсном возбуждении ФЛ, на установке 3 – исследования импульсно возбуждаемой ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs.

1.1 Экспериментальная установка 1 для стационарных исследований фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P и (In,Al)As/AlAs

На установке 1 (см. схему на Рисунке 1.1) проводились стационарные исследования интенсивности и поляризации ФЛ ансамблей КТ InP/(In,Ga)P и (In,Al)As/AlAs в небольших магнитных полях ($B = 0 - 250$ мТ). Образец помещался в гелиевый криостат замкнутого цикла с «холодным пальцем» температурой $T = 10$ К. При помощи внешнего электромагнита создавалось магнитное поле вдоль оси роста структуры z ($\mathbf{B} \parallel z$, геометрия Фарадея, продольное поле) или поперек оси роста ($\mathbf{B} \perp z$, геометрия Фойхта, поперечное поле). ФЛ возбуждалась излучением перестраиваемого по энергии фотона от 1.57 до 1.78 эВ непрерывного (CW) титан-сапфирового (Ti:Sph) лазера с плотностью мощности накачки около 75 Вт/см² при исследовании КТ InP/(In,Ga)P и около 1 Вт/см² при исследовании КТ (In,Al)As/AlAs. Лазерное излучение было поляризовано циркулярно (линейно), а направление его распространения приблизительно совпадало с осью роста структуры ($\mathbf{k} \parallel z$). ФЛ регистрировалась в геометрии «на отражение», и измерялась степень ее циркулярной (линейной) поляризации ρ_c (ρ_L). Степень циркулярной поляризации определяется выражением

$$\rho_c = (I^+ - I^-)/(I^+ + I^-), \quad (1.1)$$

где I^+ (I^-) – интенсивность компоненты ФЛ, циркулярная поляризация которой совпадает (противоположна) поляризации возбуждающего света. Степень линейной поляризации измерялась в образце с КТ (In,Al)As/AlAs. ρ_L определяется выражением

$$\rho_L = (I^{\parallel} - I^{\perp})/(I^{\parallel} + I^{\perp}), \quad (1.2)$$

где I^{\parallel} (I^{\perp}) – интенсивность компоненты ФЛ, линейно поляризованной вдоль направления $[110]$ ($[\bar{1}\bar{1}0]$), при возбуждении светом, линейно-поляризованным вдоль $[110]$. Выбор

осей связан с тем, что в исследованных КТ (In,Al)As/AlAs линейная поляризация ФЛ наиболее выражена именно вдоль направления [110].

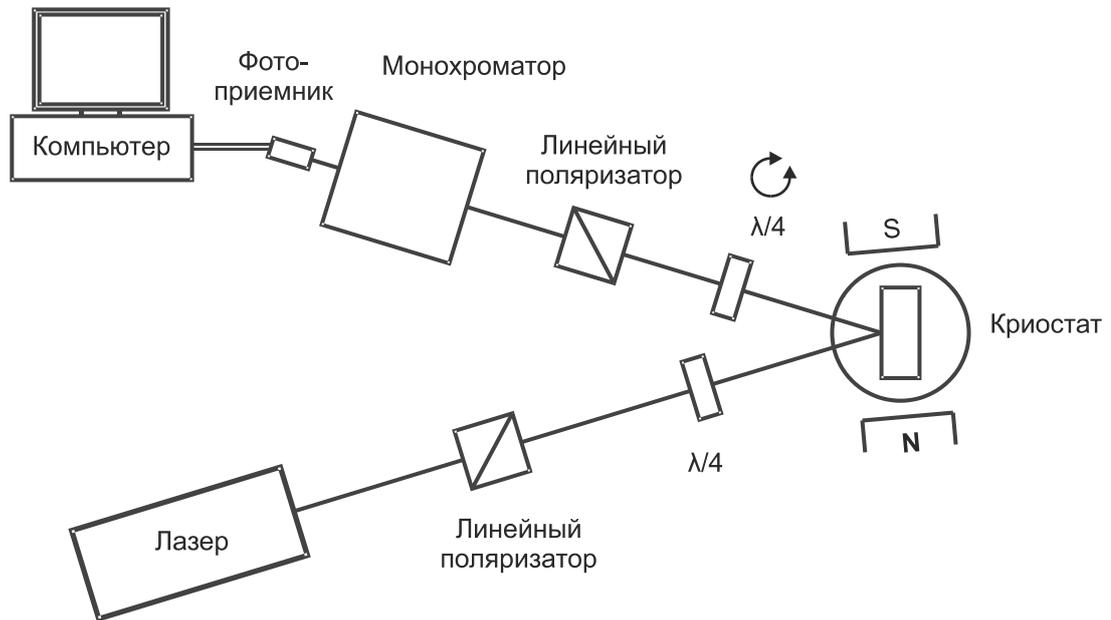


Рисунок 1.1: Схема экспериментальной установки спектроскопии поляризованной ФЛ в магнитном поле. Описывает все использованные в работе установки, см. разделы 1.1-1.3. Изображен случай циркулярно-поляризованного возбуждения и анализа циркулярной поляризации.

При возбуждении носителей циркулярно-поляризованным светом может происходить динамическая поляризация ядерных спинов посредством сверхтонкого взаимодействия с поляризованными по спину электронами [18]. В случае, когда требовалось исключить динамическую поляризацию ядер, в канал возбуждения помещался кварцевый модулятор, преобразующий поляризацию света (σ^+/σ^-) на частоте 26.61 кГц. При этом быстрые изменения направления спиновой ориентации электронов препятствуют динамической поляризации «инертных» ядерных спинов [18]. Действительно, время динамической поляризации ядер превосходит период модуляции света (десятки микросекунд). После прохождения двухрешеточного монохроматора ФЛ регистрировалась лавинным фотодиодом.

1.2 Экспериментальная установка 2 для исследования динамики фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P

Для исследования спиновой динамики в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P использовалась спектроскопия циркулярно-поляризованной ФЛ с разрешением по времени.

На установке 2 (см. схему на Рисунке 1.1) проводились время-разрешенные измерения интенсивности и циркулярной поляризации ФЛ в импульсном режиме возбуждения ФЛ. Образец помещался в криостат с парами гелия при температуре 6 К. Внешнее магнитное поле в геометрии Фойхта ($\mathbf{B} \perp z$) создавалось при помощи сверхпроводящих катушек ($B = 0 - 400$ мТ). ФЛ возбуждалась импульсным Ti:Sph лазером (энергия фотона 1.78 эВ) с плотностью мощности накачки 75 Вт/см². Оптические импульсы длительностью 150 фс генерировались на частоте 75 МГц осциллятором с самосинхронизацией мод. Лазерное излучение было поляризовано циркулярно и его направление распространения приблизительно совпадало с осью роста структуры ($\mathbf{k} \parallel z$). ФЛ регистрировалась в геометрии «на отражение», и измерялась степень ее циркулярной поляризации ρ_c , см. выражение (1.1). В случае, когда требовалось исключить динамическую поляризацию ядер, в канал возбуждения помещался электрооптический модулятор (ЭОМ), преобразующий поляризацию света (σ^+/σ^-) на частоте 16 кГц. После прохождения однорешеточного монохроматора ФЛ регистрировалась стрик-камерой. Временное разрешение системы составляло 30 пс и более в зависимости от длительности временного интервала, в пределах которого происходило накопление сигнала.

В стационарном режиме (установка 1) интенсивность компонент ФЛ (I^+/I^-) измерялась при помощи двухканального счетчика фотонов. В импульсном режиме (установка 2) выбор измеряемой поляризации (σ^+/σ^-) производился вращением четвертьволновой пластинки. В последнем случае компоненты $I^+(t)$ и $I^-(t)$ измерялись в течение временного окна 2 нс (в некоторых экспериментах время измерения было порядка десятков или даже сотен наносекунд, см. главу 2). Накопление сигнала происходило на частоте 75 МГц, имела место синхронизация с частотой следования

лазерных импульсов. В случае модуляции поляризации возбуждения производилась синхронизация ЭОМ со стрик-камерой при помощи модуля (стрик-камеры) blanking unit. Blanking unit позволил провести дополнительную фильтрацию импульсов света (ФЛ) на длинном микросекундном масштабе. Измерение сигнала по-прежнему происходило в пределах наносекундного временного окна, однако накопление сигнала имело место лишь в течение временного интервала меньшего чем полупериод ЭОМ (менее 20 мкс), когда поляризация возбуждающего света была постоянной (σ^+). Степень циркулярной поляризации также измерялась в течение указанного интервала. Выбор измеряемой поляризации (σ^+/σ^-) производился вращением четвертьволновой пластинки.

1.3 Экспериментальная установка 3 для исследования импульсно возбуждаемой фотолюминесценции квантовых точек (In,Al)As/AlAs

На установке 3 проводились следующие исследования ансамбля КТ (In,Al)As/AlAs: спектроскопия ФЛ, изучение динамики спектров ФЛ, поляризационные исследования ФЛ в большом магнитном поле (0 – 10 Т). Заметим, что эксперименты по спектроскопии ФЛ также проводились на установке 1, см. раздел 1.1. При этом получаемые экспериментальные результаты не зависят от выбора установки: спектральное положение и поляризационные свойства полос ФЛ существенно не зависят от температуры в диапазоне $T = 1.6 - 10$ К, а также от того использовалось непрерывное или импульсное возбуждение ФЛ. Вследствие вышесказанного в дальнейшем (в главе 4) не будет уточняться на какой из установок были получены те или иные результаты.

Образец помещался в заливной гелиевый криостат при температуре 1.6 К. Магнитное поле ($B = 0 - 10$ Т) в геометрии Фарадея ($\mathbf{B} \parallel z$) генерировалось сверхпроводящими катушками. Волновой вектор света был параллелен оси роста структуры ($\mathbf{k} \parallel z$). Носители генерировались как селективно (квазирезонансно), на возбужденных состояниях КТ, так и неселективно (нерезонансно), в барьерном слое AlAs. Нерезонансное возбуждение в

барьерном слое осуществлялось третьей гармоникой импульсного Nd:YVO₄ лазера с модуляцией добротности. Энергия фотонов составляла 3.49 эВ, импульсы длительностью 5 нс следовали с частотой 2 кГц, плотность энергии возбуждения равнялась 100 нДж/см². Для селективного квазирезонансного возбуждения использовался оптический параметрический осциллятор с перестраиваемой энергией фотона от 1.5 до 2 эВ, длиной импульса 1 пс (значение увеличивалось до 1 нс вследствие прохождения через оптоволоконный волновод) и частотой следования импульсов 2 кГц. ФЛ разрешалась однорешеточным монохроматором. В качестве детектора ФЛ использовалась CCD камера, охлаждаемая жидким азотом. В случае динамических нерезонансных исследований CCD камера при помощи внешнего триггерного сигнала была синхронизована с лазером с целью исключить детектирование рассеянного лазерного света. Время задержки начала измерения относительно лазерного импульса (t_{delay}) варьировалось от 1 нс до 100 мкс. Длительность измерения (t_{gate}) варьировалась от 4 нс до 50 мкс с целью оптимизации интенсивности сигнала и временного разрешения. Наилучшее временное разрешение системы равнялось 1 нс.

В некоторых экспериментах лазерный свет был поляризован циркулярно (линейно), тогда в канале сбора ФЛ помещался анализатор циркулярной (линейной) поляризации. Степень циркулярной и линейной поляризаций рассчитывалась по формулам (1.1) и (1.2) соответственно.

1.4 Образцы

В диссертационной работе изучались образцы с полупроводниковыми эпитаксиальными самоорганизованными квантовыми точками A_3B_5 .

1.4.1 Квантовые точки InP/(In,Ga)P

Квантовые точки InP в матрице $In_{0.48}Ga_{0.52}P$ были выращены методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений. Давление в реакторе составляло 100 мбар, температура $725^\circ C$. Образец состоит из следующих слоев: на подложке (100) GaAs толщиной 500 мкм и разориентированной на 2° по направлению к [110] располагается буферный слой GaAs толщиной 50 нм. Затем следуют 50 нм барьерного слоя $In_{0.48}Ga_{0.52}P$, 7 монослоев квантовых точек InP и 40 нм прикрывающего барьерного слоя $In_{0.48}Ga_{0.52}P$.

В результате самоорганизации сформировался один слой КТ, имеющих форму линзы и бимодальное распределение размеров: (диаметр \times высота) 100×5 и 133×20 нм². Плотность КТ в слое имеет порядок 10^9 см⁻². Данные просвечивающей электронной микроскопии так же, как и дополнительные особенности роста структуры представлены в работе [19], образец (i). Номинально КТ не легированы, однако в силу особенностей газофазной эпитаксии (In,Ga)P слой имеет остаточное легирование донорами с концентрацией до $n = 10^{16}$ см⁻³, в результате чего КТ заселяются резидентными электронами [20]. Отметим, что смачивающий слой в структуре отсутствует.

Оценим эффективность размерного квантования в КТ InP. Длина волны де Бройля электрона (дырки) $\lambda_{e(h)}$ определяется как

$$\lambda_{e(h)} = h/(2m_{e(h)}E)^{1/2}. \quad (1.3)$$

Эффективная масса электрона (m_e) в InP равна $0.08m_0$; энергия теплового движения (E) при температуре 10 К составляет $E = 0.83$ мэВ. Получаем длину волны де Бройля

$\lambda_e = 150$ нм, что по порядку величины совпадает с латеральными размерами и существенно превосходит высоту КТ. Таким образом, в плоскости КТ наблюдается некоторый промежуточный случай между эффективным размерным квантованием электронных состояний и его отсутствием, в то время как по оси роста имеет место выраженное квантование. Эффективная масса дырок (m_h) в InP составляет $m_h = 0.6m_0$. В результате $\lambda_h = 55$ нм, эффективность размерного квантования дырок ниже в сравнении с электронами.

При возбуждении ФЛ использовалось лазерное излучение с энергией фотонов (≤ 1.78 эВ) меньшей ширины запрещенной зоны барьерного материала $\text{In}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{P}$ (1.97 эВ [21]), в результате носители генерировались на возбужденных уровнях КТ. Двум характерным размерам КТ соответствуют две спектральные полосы ФЛ [19], см. Рисунок 1.2. Высокоэнергетической полосе соответствуют точки относительно небольшого размера, низкоэнергетической – большого.

В главе 2 представлены результаты исследования относительно больших КТ. Отметим, что ФЛ данного подансамбля КТ имеет отрицательную степень циркулярной поляризации (см. Рисунок 1.2). ОЦП свидетельствует о ФЛ отрицательно заряженных экситонов (X^- трионов), см. раздел 2.1.

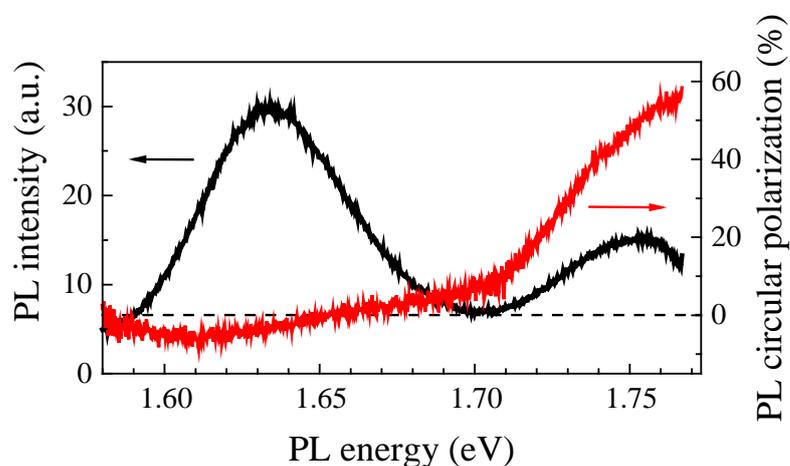


Рисунок 1.2: Спектр ФЛ (интенсивность и степень циркулярной поляризации) КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ при циркулярно-поляризованном возбуждении с энергией фотона $E_{exc} = 1.77$ эВ.

Результаты изучения маленьких КТ представлены в главе 3. ФЛ последних имеет значительную положительную степень циркулярной поляризации (до 55%) в нулевом магнитном поле (см. Рисунок 1.2), что является характерным для ФЛ положительно (X^+) либо отрицательно (X^-) заряженных экситонов, см. раздел 2.1. Одновременная зарядка

различных КТ в ансамбле электронами и дырками может осуществляться посредством фотолегирования, например, когда фотовозбужденные электроны туннелируют и скапливаются в больших КТ, где энергия основного состояния ниже. Подробнее о перезарядке КТ светом написано в разделе 3.3.1.

1.4.2 Квантовые точки (In,Al)As/AlAs

Образец содержит 20 слоев номинально нелегированных квантовых точек (In,Al)As/AlAs, выращенных методом молекулярно пучковой эпитаксии на подложке (001) GaAs. Диаметр КТ составляет 15 нм, высота 4 нм, плотность $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ в каждом слое. Слои разделены барьерами AlAs толщиной 20 нм. Верхний слой КТ закрыт 20 нм GaAs для предотвращения окисления. Более подробно с особенностями роста подобных структур можно ознакомиться в работе [17].

Оценим эффективность размерного квантования в данной структуре. Положим, что эффективная масса электрона в (In,Al)As равна $m_e = 0.1m_0$, что является промежуточным значением между эффективными массами в InAs и AlAs. В результате при температуре 10 К длина волны де Бройля электрона согласно выражению (1.3) равняется $\lambda_e = 135 \text{ нм}$. Положим эффективную массу дырок в (In,Al)As равной $m_h = 0.6m_0$. В результате $\lambda_h = 55 \text{ нм}$. Таким образом, длины волн электрона и дырки заметно превосходят размеры КТ, в результате чего наблюдается выраженное размерное квантование.

На Рисунке 1.3 штриховой линией показан спектр ФЛ ансамбля КТ (In,Al)As/AlAs, возбуждаемых нерезонансно светом с энергией 3.49 эВ. Ширина запрещенной зоны барьерного материала AlAs составляет 2.3 эВ, носители возбуждаются в барьерном слое. Спектр представляет собой полосу шириной около 200 мэВ с максимумом при 1.8 эВ. При селективном квазирезонансном возбуждении наблюдается ФЛ носителей, сгенерированных на возбужденных состояниях КТ, см. сплошную линию на Рисунке 1.3. В таком случае спектр состоит из более узких полос, поскольку возбуждается подансамбль КТ с подходящей энергией состояний. Результаты подробного исследования

и интерпретации спектров ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs представлены в разделе 4.2. В главе 4 будет показано, что в ансамбле имеются как прямозонные, так и непрямозонные в k-пространстве КТ.

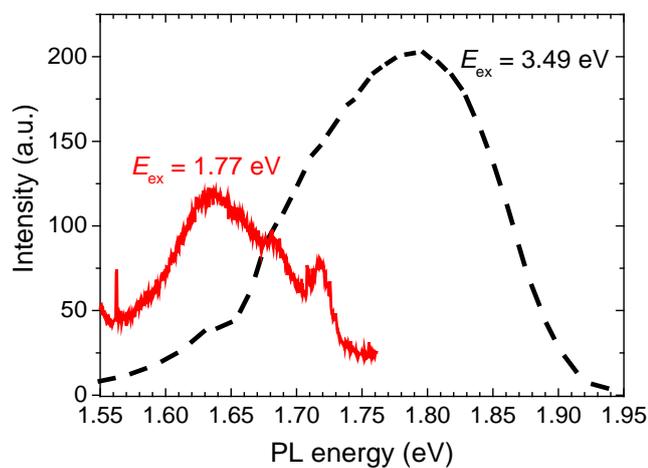


Рисунок 1.3: Спектры ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs: штриховой линией показан спектр при нерезонансном возбуждении с энергией 3.49 эВ, сплошной линией показан спектр при квазирезонансном возбуждении с энергией 1.77 эВ.

Глава 2

Динамика отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции квантовых точек InP/(In,Ga)P

2.1 Введение

Как было сказано во Введении к диссертации, квантовые точки являются перспективными объектами для реализации устройств спинтроники, поскольку в КТ подавляются механизмы спиновой релаксации объемных материалов, обусловленные движением носителей. Однако, при наличии анизотропии в плоскости КТ возникает эффективный механизм спиновой релаксации экситонов, вызванный анизотропным обменным взаимодействием электрона и дырки [22]. Данный механизм значительно ускоряет спиновую релаксацию экситонов [23], рассмотрим его подробнее.

Отметим, что обменное взаимодействие электрона и дырки усиливается в КТ в силу пространственного ограничения носителей. В случаях, когда тяжелые и легкие дырки можно рассматривать как изолированные крамерсовы дублеты, гамильтониан обменного взаимодействия электрона и тяжелой дырки принимает вид [22]

$$\hat{H} = 2\delta_0 s_z j_z + \delta_b (s_x j_x - s_y j_y) + \delta_a (s_x j_x + s_y j_y), \quad (2.1)$$

где s_i и j_i – операторы спина электрона и дырки соответственно, z – ось роста КТ. В случае гипотетического отсутствия обменного взаимодействия энергетические состояния экситона оказываются четырехкратно вырожденными по энергии. Проекция углового момента экситона на ось квантования принимает значения $J_z = \pm 1, \pm 2$. В силу наличия изотропного обменного взаимодействия электрона и дырки, которое описывается первым слагаемым в гамильтониане (2.1), четырехкратно вырожденные состояния расщепляются на два двукратно вырожденных, соответствующих проекциям спина $J_z = \pm 1$ и $J_z = \pm 2$, см. Рисунок 2.1. Экситоны со спином 1 называются светлыми или оптически активными, а со спином 2 – темными или оптически неактивными. Расщепление дублетов светлых и темных экситонов δ_0 имеет порядок сотен микроэлектронвольт, см., например, исследования КТ (In,Ga)As/GaAs [24]. Часто симметрия КТ понижается из-за анизотропии в плоскости точек. В таком случае анизотропная часть обменного взаимодействия, описываемая вторым и третьим слагаемыми в гамильтониане (2.1), вызывает дальнейшее расщепление экситонных уровней. Было показано экспериментально [25] и теоретически [22], что в квантовых объектах с симметрией C_{2v} снимается вырождение светлого дублета $|\pm 1\rangle$. Дублет расщепляется на состояния $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, линейно-поляризованные в двух ортогональных направлениях x и y : $|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$ и $|Y\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$. Типичное значение расщепления светлых экситонов δ_b («bright») в низкоразмерных системах типа I составляет 10 – 100 мкэВ [23,26]. Расщепление анизотропной компонентой обменного взаимодействия состояний темного дублета δ_d («dark») на два порядка меньше δ_b , что было предсказано теоретически [22] и показано экспериментально [24]. Отметим, что расщепление оптически неактивных состояний не было исчерпывающе изучено.

Анизотропное обменное взаимодействие приводит к взаимным («флип-флоп») переворотам спинов электрона и дырки $|\pm 1\rangle \leftrightarrow |\mp 1\rangle$, $|\pm 2\rangle \leftrightarrow |\mp 2\rangle$. Характерное время «флип-флоп» переворота для светлых и темных экситонов определяется как \hbar/δ_b и \hbar/δ_d соответственно.

Циркулярно-поляризованный фотон возбуждает суперпозицию состояний $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, когерентность которой теряется за время \hbar/δ_b . Время когерентности, как правило, оказывается намного короче времени жизни носителей, в результате чего оптической ориентации ФЛ не наблюдается. Так, если взять значение расщепления 100 мкэВ,

получаем время около 10 пс, что много меньше типичного времени излучательной рекомбинации τ в КТ типа I, $\tau \approx 1$ нс [27]. В свою очередь, линейно-поляризованный фотон возбуждает «чистые» состояния $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, что способствует продолжительному эффекту выстраивания экситонов, см. раздел 4.3. В разделе 4.3 исследуется анизотропное обменное взаимодействие электронов и дырок в прямозонных и непрямозонных в k -пространстве КТ (In,Al)As/AlAs.

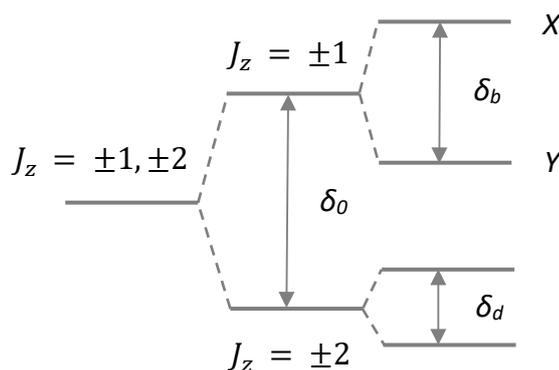


Рисунок 2.1: Структура уровней экситона, состоящего из электрона со спином $s = 1/2$ и тяжелой дырки со спином $j = 3/2$, в нулевом магнитном поле.

Если КТ заряжена резидентным электроном или дыркой, то спины электронов или дырок (соответственно) оказываются спаренными в основном состоянии фотовозбужденного триона, в результате чего обменное взаимодействие отсутствует. В результате наблюдается ненулевая положительная степень циркулярной поляризации ФЛ X^+ трионов в КТ (резидентные дырки), в случае же ФЛ X^- трионов в КТ (резидентные электроны) может наблюдаться как положительная, так и отрицательная степень циркулярной поляризации [28].

Отрицательная циркулярная поляризация фотолюминесценции означает, что знаки циркулярной поляризации ФЛ и возбуждающего света противоположены. ОЦП является неожиданным эффектом, поскольку естественно предположить, что созданная поляризованным светом спиновая ориентация со временем спадает до нуля за счет процессов спиновой релаксации, и (в отсутствие внешнего магнитного поля) знак проекции среднего (по ансамблю электронов) спина на ось наблюдения ФЛ не меняется. Исключение составляют случаи, когда при возбуждении носителей и при ФЛ задействованы разные подзоны дырок (легкие и тяжелые), имеющие разные правила

отбора [29]. В данной главе будут приведены свидетельства в пользу того, что этот механизм не определяет наличие ОЦП ФЛ в исследованных структурах, см., в частности, описание Рисунка 2.8 в разделе 2.3. ОЦП наблюдается при нерезонансном (или квазирезонансном) возбуждении квантовых точек, содержащих резидентные электроны либо доноры [30-34]. Модели формирования ОЦП, имеющиеся в литературе, описаны в разделе 2.2. Однако отметим, что феномен ОЦП требует дальнейших исследований, чему посвящена данная глава диссертационной работы.

В отличие от положительно заряженных [35, A3] и нейтральных экситонов [36] динамика циркулярной поляризации ФЛ ансамбля отрицательно заряженных экситонов в КТ не демонстрирует осцилляций в поперечном магнитном поле, что будет обсуждаться в разделе 2.5. Об отсутствии биений в спиновой динамике ансамбля X^- трионов мы сообщали в работах [A1, A2], кроме того данная особенность обсуждалась в исследовании [36]. В работе [36] отсутствие осцилляций объяснялось сложностью тонкой структуры триплетного состояния X^- триона, в результате чего светом возбуждаются несколько (более двух) состояний, расщепленных магнитным полем. Авторы работы [36] указывают, что в таком случае спиновые биения на разных частотах интерферируют, что может приводить к «замыванию» осцилляций в динамике поляризации ФЛ. Мы признаем возможность проявления такого механизма «замывания» осцилляций, однако представляется маловероятным, что указанный механизм является универсальным, справедливым для различных условий возбуждения и различных структур. В то же время, в эксперименте наблюдается устойчивое отсутствие осцилляций в динамике поляризации ФЛ КТ InP/(In,Ga)P в различных структурах [36, A1-2].

В разделе 2.5 мы приводим анализ динамики ОЦП ФЛ КТ InP/(In,Ga)P в поперечном магнитном поле и обсуждаем причину «замывания» осцилляций. Будет показано, что отсутствие осцилляций является естественным свойством спиновой динамики ансамбля X^- трионов (с тяжелой дыркой) в КТ.

Основная часть результатов, представленных в данной главе, опубликована в работах [A1, A2].

2.2 Модели отрицательной циркулярной поляризации, представленные в литературе

Отрицательная степень циркулярной поляризации фотолюминесценции наблюдается в квантовых точках, содержащих один [30,32,33] или два резидентных электрона [31,34] (либо доноры [30]), при возбуждении носителей выше (по энергии) основного состояния КТ. Для формирования ОЦП необходимо, чтобы произошел переворот спина фотовозбужденной дырки. Действительно, в основном состоянии X^- и X^{2-} комплексов s-электронный подуровень полностью занят. В результате поляризация ФЛ из основного состояния комплекса определяется спиновой ориентацией тяжелой дырки.

В литературе представлено несколько моделей формирования ОЦП [30-34], основные идеи которых изложены в последующих разделах 2.2.1 - 2.2.5. Ниже будет показано, что во всех имеющихся моделях используются схожие физические принципы, модели при этом описывают различные частные случаи. В частности, первые три модели (см. разделы 2.2.1 - 2.2.3) описывают однократно отрицательно заряженные КТ, четвертая (раздел 2.2.4) – двукратно.

2.2.1 Модель 1. Большие квантовые точки

Модель 1 была предложена в работе [30], где исследовались большие КТ InP/(In,Ga)P с латеральными размерами около 70 нм. Носители возбуждались светом нерезонансно, в смачивающий слой. КТ содержат примеси n-типа на уровне 10^{15} см⁻³. Кроме того, допускается присутствие в КТ резидентных электронов, поскольку барьерные слои структуры также легированы донорами. В силу значительного латерального размера КТ (70 нм), превышающего борковский радиус экситона и электрона на доноре (10 нм), предполагается, что резидентный электрон (или донор) и фотовозбужденный экситон могут сосуществовать в КТ независимо прежде чем объединятся в трион (экситон на

доноре). Отметим, что в модели не считается возможным захват экситона в возбужденное состояние комплекса. Данное допущение оправдано, например, при захвате экситона на мелкий донор либо на локализованный резидентный электрон в КТ, образованных флуктуациями ширины квантовой ямы.

Для определенности будем рассматривать возбуждение носителей σ^+ поляризованным светом с последующим их захватом на резидентный электрон. Возбуждение осуществляется вдоль оси роста КТ z . σ^+ квант возбуждает электрон с проекцией спина \downarrow ($-1/2$) на ось квантования z и тяжелую дырку с проекцией спина \uparrow ($+3/2$). Возбуждение дырок в легкой подзоне для простоты не рассматривается. Как правило, при нерезонансном возбуждении дырки практически полностью деполаризуются по спину при термализации в основное состояние, а спин электрона сохраняется [37]. В результате к моменту захвата в основное состояние X^- триона существует два типа экситонов: $\downarrow\uparrow$ и $\downarrow\downarrow$, светлый $|+1\rangle$ и темный $|-2\rangle$ экситон соответственно. Если обозначить за $N(+1)$ и $N(-2)$ количество соответствующих светлых и темных экситонов, то будет верно соотношение

$$N(+1) \geq N(-2), \quad (2.2)$$

причем равенство достигается в случае полной деполаризации спинов дырок. По предположению захват экситона происходит в основное состояние триона, в результате образуются комплексы, обозначенные (a) и (b) на Рисунке 2.2.

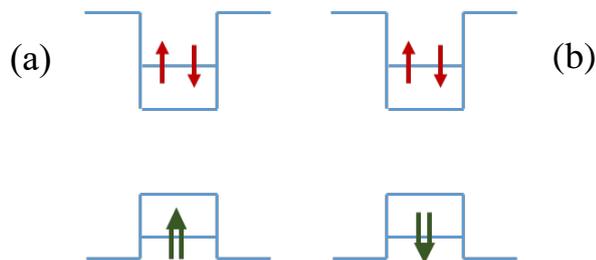


Рисунок 2.2: Схема возможной ориентации спинов в основном состоянии X^- триона.

Учтем тот факт, что в силу наличия в подобных КТ анизотропного обменного расщепления, до захвата фотовозбужденного экситона в трион происходят взаимные «флип-флоп» перевороты спинов электрона и дырки (см. раздел 2.1). Пусть расщепление дублета состояния светлого экситонна имеет значение 100 мкэВ , в результате время

«флип-флоп» переворота \hbar/δ_b равняется 10 пс, что заметно уступает времени жизни фотовозбужденных носителей (1 нс), см. раздел 2.1. Положим значение расщепления темного дублета равным единицам мкэВ (раздел 2.1), в результате время переворота спинов в темном экситоне \hbar/δ_d имеет значение порядка 1 нс. Можно предположить, что к моменту связывания экситона с резидентным электроном светлые экситоны полностью деполаризованы $N(+1) = N(-1)$, а темные полностью либо частично поляризованы $N(-2) > N(+2)$. С учетом соотношения (2.2) имеем $(N(+1) + N(-1)) \geq (N(-2) + N(+2))$.

При неполяризованных спинах резидентных электронов после захвата в трион светлые экситоны в сумме дадут нулевую циркулярную поляризацию ФЛ. Темные экситоны – отрицательную, поскольку $N(-2) > N(+2)$. В сумме поляризация ФЛ окажется отрицательна. Отметим, что при рекомбинации трионов, образованных из темных экситонов, фотовозбужденная дырка рекомбинирует с резидентным электроном, оставляя в КТ ориентированный по спину фотовозбужденный электрон. Таким образом, спины электронов в КТ ориентируются вниз (\downarrow). При ориентации резидентных электронов \downarrow ОЦП возрастет по модулю, поскольку на резидентные электроны со спином вниз из светлых экситонов захватываются только экситоны $| - 1 \rangle$, а поляризация ФЛ получившихся трионов отрицательна. Отметим, что тот экспериментальный факт, что ФЛ синглетного состояния X^- триона вообще поляризована говорит о том, что спин дырки в основном состоянии сохраняется в течение времени жизни комплекса.

Перечислим физические концепции, заявленные в данной модели:

- 1) Происходит деполаризация спинов фотовозбужденных дырок к моменту захвата в трион.
- 2) Имеют место взаимные «флип-флоп» перевороты спинов электрона и дырки, причем процесс в случае светлых экситонов более эффективен, чем в случае темных.
- 3) В результате спиновой блокады Паули не любая пара электронов может занять s-подуровень.
- 4) Происходит спиновая ориентация резидентных электронов в КТ путем их рекомбинации с фотовозбужденными дырками и замещением фотовозбужденными электронами с ориентированным спином.

2.2.2 Модель 2. Нерезонансное возбуждение фотолюминесценции в маленьких квантовых точках

Модель, предложенная в работе [32], применима в случае нерезонансного возбуждения носителей в небольших квантовых точках, в которых борковский радиус экситона (10 нм) сопоставим с размерами КТ. В таких КТ экситон с электроном следует рассматривать как единый комплекс. В работе [32] были исследованы квантовые точки InAs/GaAs размером $2 \times 11 \text{ нм}^2$, содержащие номинально по одному резидентному электрону. ФЛ возбуждалась нерезонансно, носители генерировались в смачивающем слое.

Предполагается, что спины дырок к моменту захвата экситона в КТ полностью деполаризованы, в результате при σ^+ возбуждении имеются $\downarrow\uparrow$ и $\downarrow\downarrow$ экситоны, причем $N(+1) = N(-2)$. После захвата с равной вероятностью реализуются 4 сценария (a, b, c, d), изображенные на Рисунке 2.3. Отметим, что случаи (a) и (b), когда спины резидентного и фотовозбужденного электронов противоположно направлены, идентичны с точностью до знака поляризации ФЛ, так что поляризация их суммарной ФЛ равна нулю. Трионы с сонаправленными спинами электронов (c) и (d) релаксируют в основное состояние главным образом путем «флип-флоп» переворотов спинов электрона и дырки, (c) \rightarrow (c'). Как было сказано в разделе 2.2.1, для «светлых» трионов (c) процесс намного эффективнее, чем для «темных» (d). Предполагается, что рекомбинация «темных» трионов происходит в том числе безызлучательно. «Светлые» трионы с изначально параллельной ориентацией спинов электронов, в итоге дают σ^- поляризованную ФЛ из основного состояния триона (c'). Итого, суммарная поляризация ФЛ отрицательна.

Ориентация спинов резидентных электронов вниз происходит так же, как и в модели 1: дырка рекомбинирует с резидентным электроном, ориентированный по спину фотовозбужденный электрон остается в КТ, см. трион (b) на Рисунке 2.3. В результате такой ориентации чаще реализуются сценарии (c) и (d), а значит степень ОЦП возрастет по модулю. Отметим, что физические процессы, задействованные в модели, совпадают с четырьмя процессами, заявленными в модели 1.

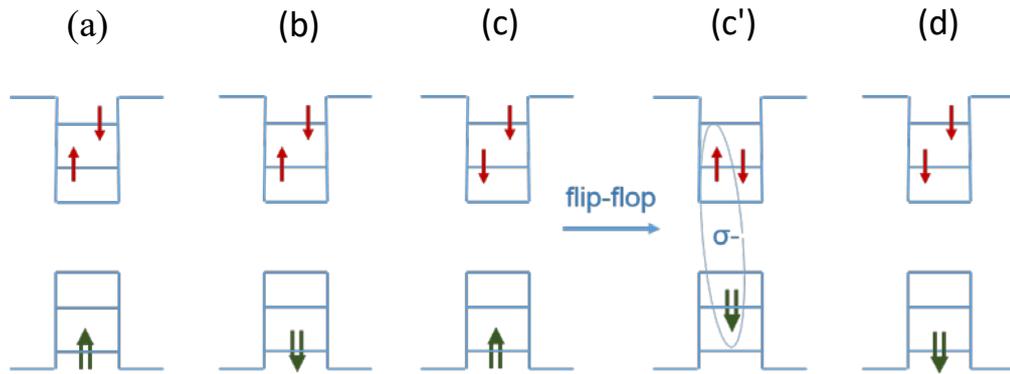


Рисунок 2.3: Схема возможной спиновой ориентации X^- триона при нерезонансном возбуждении ФЛ в маленьких КТ.

2.2.3 Модель 3. Квазирезонансное возбуждение фотолюминесценции в маленьких квантовых точках

Модель, предложенная в работе [33], применима в случае маленьких КТ при квазирезонансном возбуждении ФЛ, когда носители генерируются на возбужденных уровнях КТ. В работе [33] изучались КТ $\text{InP}/\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{P}$ размером $5 \times 40 \text{ нм}^2$. σ^+ поляризованный квант света генерирует экситон $|\downarrow\uparrow| + 1\rangle$ на возбужденном уровне КТ (Рисунок 2.4 (a,b)). Существует два варианта ориентации спинов в возбужденном состоянии триона с со- (a) и противоположно-направленными (b) спинами электронов. Авторами работы [33] утверждается, что в случае (a) обменное взаимодействие с электронами исключает возможность независимого (от переворота спинов электронов) переворота спина дырки. При этом релаксация в основное состояние триона (a) возможна посредством взаимных «флип-флоп» переворотов спинов электрона и дырки. Поскольку частота «флип-флоп» переворотов в светлых экситонах много больше темпа рекомбинации, рекомбинация дырки с электроном основного уровня в триплетном состоянии триона не рассматривается. В результате «флип-флоп» переворотов спинов и термализации образуется синглетный трион (a'), излучающий σ^- поляризованный свет. В случае триона (b) спины электронов противоположно-направлены и компенсируют друг

друга. Как следствие электрон-дырочное обменное взаимодействие мало и при энергетической релаксации дырки возможен ее независимый (от электронов) переворот, а релаксация фотовозбужденного электрона в основное состояние не запрещена принципом Паули. В результате $N(b2) \geq N(b1)$, причем равенство достигается в случае полной деполяризации спинов дырок. Поляризация ФЛ трионов (b1) отрицательная, (b2) – положительная, (a1) – отрицательная. При неполяризованных резидентных электронах выполняется соотношение $N(b1) + N(b2) = N(a1)$, в итоге суммарная ФЛ отрицательно поляризована. При этом как и в предыдущих моделях происходит ориентация спинов резидентных электронов вниз в трионах (b1): дырка рекомбинирует с резидентным электроном. Когда же резидентные электроны преимущественно ориентированы вниз степень ОЦП растет по модулю в силу преобладания канала (a) с выраженной отрицательной поляризацией. Задействованные в модели физические процессы практически полностью совпадают с четырьмя процессами модели 1 с той лишь разницей, что спиновая релаксация дырки происходит уже в трионе, а учет анизотропного обменного взаимодействия темных экситонов и трионов не требуется вовсе.

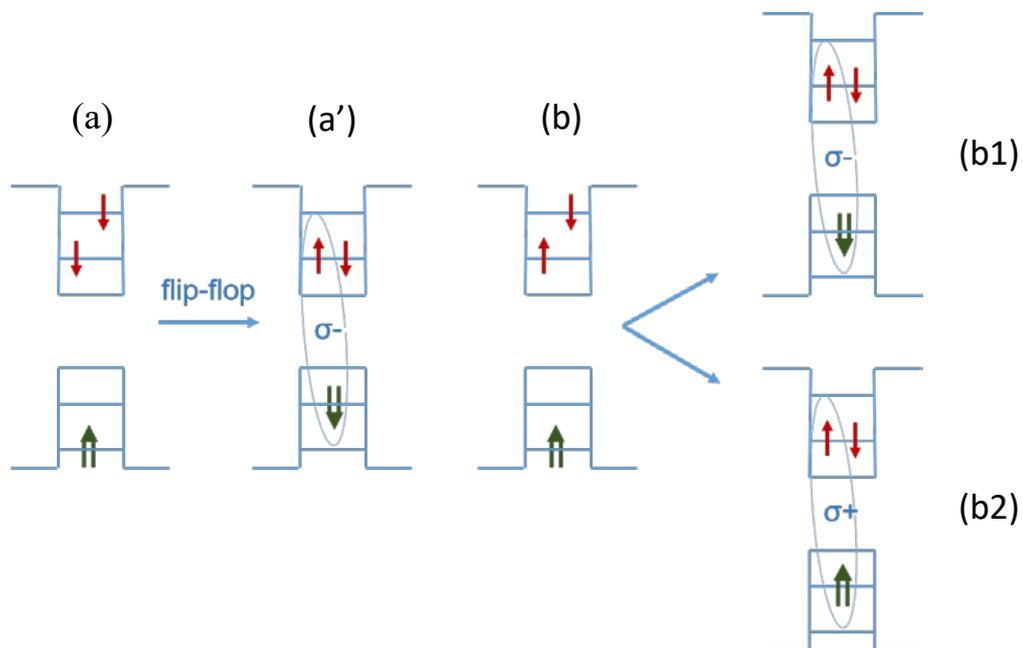


Рисунок 2.4: Схема возможной спиновой ориентации X⁻ триона при квазирезонансном возбуждении ФЛ в маленьких КТ.

2.2.4 Модель 4. Маленькие квантовые точки с двумя резидентными электронами

В работах [31,34] утверждается, что ОЦП наблюдается также при нерезонансном возбуждении КТ с двумя резидентными электронами. В работах изучались небольшие (относительно боровского радиуса экситона) КТ InAs/GaAs. Предложенная модель по своей сути является адаптацией модели 2 на случай двух резидентных электронов.

σ^+ поляризованный квант света создает экситон $\downarrow\uparrow | + 1 \rangle$ в барьерном или смачивающем слое. Предполагается, что дырки к моменту захвата в КТ полностью деполаризуются по спину, в результате имеются $\downarrow\uparrow$ и $\downarrow\downarrow$ экситоны, причем $N(+1) = N(-2)$. Схема спиновой поляризации тетранов (три электрона + дырка), образующихся после захвата экситона в КТ изображена на Рисунке 2.5. В тетроне (а) спин электрона на возбужденном уровне и спин дырки направлены противоположно, что является аналогом светлого экситона. В тетроне (b), таким образом, имеется аналог темного экситона, при этом рекомбинация дырки с одним из электронов на основном состоянии разрешена. Как упоминалось ранее частота «флип-флоп» переворотов, вызванных анизотропным обменным взаимодействием спинов электрона и дырки, в светлом экситоне (или тетроне) много больше, чем в темном. Получается, что в силу быстрых переворотов спинов в светлом тетроне поляризация ФЛ комплекса (а) будет равна нулю, комплекс (b) останется поляризованным, причем он излучает σ^- поляризованный свет. В сумме имеется ОЦП ФЛ. Здесь в той или иной степени вовлечены все те же физические процессы, что и в предыдущих моделях. В качестве ориентации спинов резидентных электронов выступает создание после рекомбинации в тетроне (b) комплекса из двух резидентных электронов с параллельными спинами на разных энергетических подуровнях, релаксации данного комплекса в основное состояние препятствует принцип Паули.

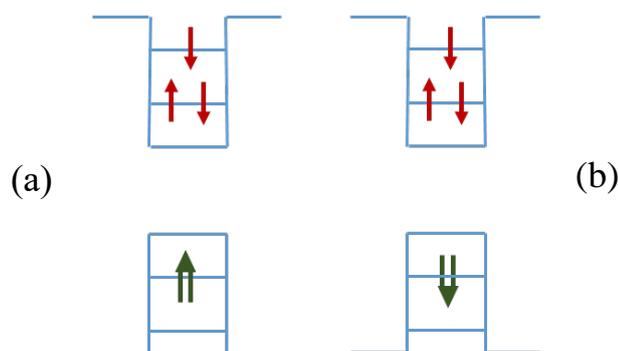


Рисунок 2.5: Схема возможной спиновой ориентации дважды заряженного экситона (X^{2-}) при нерезонансном возбуждении носителей в маленьких КТ.

2.2.5 Выводы

Несмотря на то, что описанные модели формирования ОЦП ФЛ в КТ имеют в некоторой степени разные области применения, везде используются одни и те же физические процессы, впервые предложенные в работе [30]:

- 1) Происходит деполяризация спинов фотовозбужденных дырок к моменту захвата в трион.
- 2) Имеют место взаимные «флип-флоп» перевороты спинов электрона и дырки, причем процесс в случае темных экситонов менее эффективен, чем в случае светлых.
- 3) В результате спиновой блокады Паули не любая пара электронов может занять s -подуровень.
- 4) Происходит спиновая ориентация резидентных электронов в КТ путем их рекомбинации с фотовозбужденными дырками и замещением фотовозбужденными электронами с ориентированным спином.

Модель 1 применима для нерезонансного или квазирезонансного возбуждения ФЛ в больших КТ, где боровский радиус экситона много меньше латеральных размеров КТ. Модели 2 и 4 применимы для нерезонансного возбуждения в маленьких КТ (боровский радиус сопоставим с размерами КТ), модель 3 применима для квазирезонансного возбуждения в маленьких КТ.

Исследованным в диссертационной работе КТ InP/(In,Ga)P, см. раздел 1.4.1, из перечисленных более всего соответствует модель 1.

2.3 Вводные стационарные исследования отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции

В разделах 2.3-2.5 обсуждается оптическая ориентация ФЛ подансамбля относительно больших квантовых точек InP/(In,Ga)P, см. раздел 1.4.1. В таких КТ наблюдается ОЦП при квазирезонансном возбуждении ФЛ циркулярно-поляризованным светом, что свидетельствует о фотовозбуждении в КТ X^- трионов или X^{2-} тетранов, см. разделы 2.1 и 2.2. В данном разделе приведены результаты некоторых базовых исследований ОЦП стационарной ФЛ, такие как спиновая накачка резидентных электронов, а также проявления взаимных «флип-флоп» переворотов спинов электрона и дырки.

Согласно описанным в разделе 2.2 моделям формирования ОЦП ожидается увеличение (по модулю) степени отрицательной поляризации с мощностью оптической накачки. Увеличение ОЦП связывается с ориентацией спинов резидентных электронов в квантовой точке, возникающей при рекомбинации резидентных электронов с фотовозбужденными дырками, в результате чего происходит замещение резидентных электронов фотовозбужденными. Из экспериментальных данных (Рисунок 2.6) видно, что ОЦП действительно растет с мощностью накачки. Положительная степень циркулярной поляризации ФЛ, наблюдающаяся при малых мощностях накачки, может быть связана, например, с вкладом в ФЛ нейтральных КТ или КТ, заряженных положительно.

Спектр возбуждения ФЛ (интенсивности и поляризации), представленный на Рисунке 2.7, является непрерывным (а не дискретным) в силу разброса состава и размеров КТ по ансамблю. При приближении энергии возбуждения ФЛ (E_{exc}) к энергии детектирования (E_{det}) циркулярная поляризация ФЛ из отрицательной становится положительной. Поляризация меняет знак при стоксовом сдвиге $\Delta E_S \triangleq E_{exc} - E_{det} = 130$ мэВ.

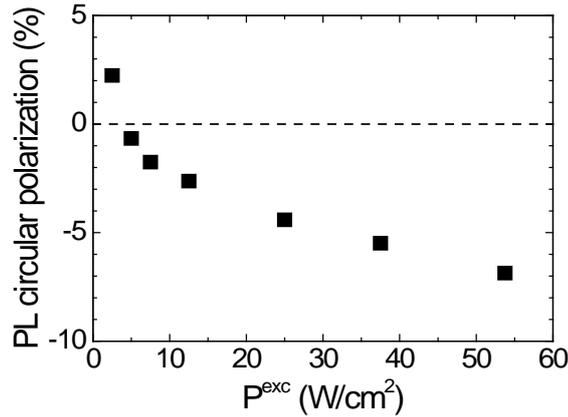


Рисунок 2.6: Зависимость циркулярной поляризации ФЛ от плотности мощности накачки при циркулярно-поляризованном возбуждении. Энергия фотона возбуждающего света (E_{exc}) 1.77 эВ, энергия регистрации ФЛ (E_{det}) 1.62 эВ.

Определение природы смены знака поляризации ФЛ при изменении энергии фотона возбуждающего света лежит за рамками данной работы.

Зависимость ОЦП ФЛ от магнитного поля в геометрии Фарадея, представленная на Рисунке 2.8, имеет двухконтурный немонотонный характер: зависимость можно описать суммой двух контуров Лоренца с полуширинами $B_{1/2} = 25$ мТ и $B_{1/2} = 1$ Т (сплошная линия на Рисунке 2.8). В небольших магнитных полях (25 мТ) ОЦП растет по модулю, в больших полях (1 Т) – уменьшается. Увеличение поляризации в малых полях, по-видимому, связано с замедлением спиновой релаксации электронов, см. раздел 2.5.

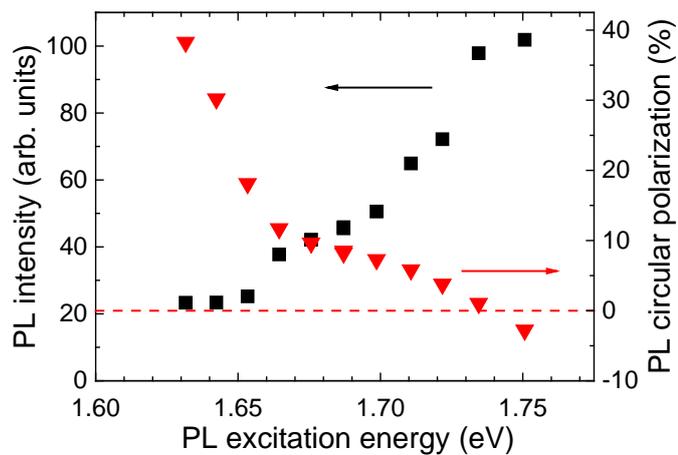


Рисунок 2.7: Зависимость интенсивности и степени циркулярной поляризации ФЛ от энергии фотона возбуждения. ФЛ возбуждается циркулярно-поляризованным светом, $E_{det} = 1.6$ эВ.

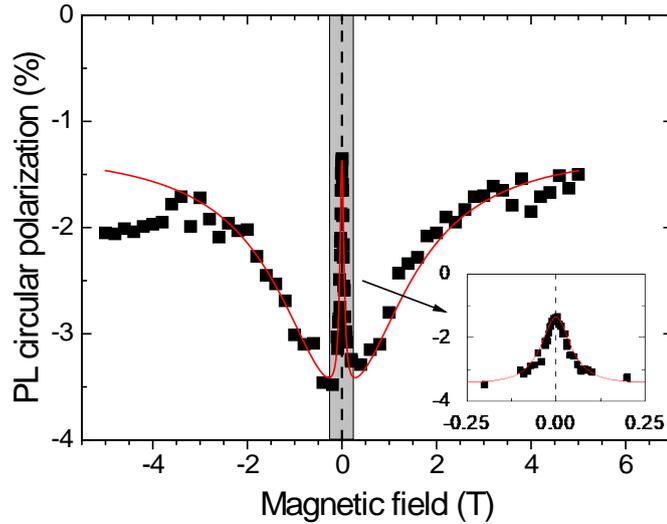


Рисунок 2.8: Зависимость степени циркулярной поляризации ФЛ от магнитного поля в геометрии Фарадея при циркулярно-поляризованном возбуждении. Квадратами показаны экспериментальные данные, сплошной линией показана аппроксимация суммой двух контуров Лоренца. На вставке показан увеличенный фрагмент зависимости в малых полях, выделенный серым. $E_{exc} = 1.96$ эВ (гелий-неоновый лазер), $E_{det} = 1.64$ эВ.

Уменьшение ОЦП в больших полях обусловлено замедлением спиновой релаксации экситонов в КТ. Действительно, в моделях формирования ОЦП важным фактором является наличие анизотропного обменного взаимодействия электрона и дырки (см. раздел 2.2). Продольное магнитное поле достаточно большой величины, такой что зеемановское расщепление экситонных состояний превосходит анизотропное обменное расщепление, блокирует «флип-флоп» перевороты спинов электрона и дырки. В результате согласно моделям, представленным в разделе 2.2, ОЦП должна уменьшаться с ростом поля, что и наблюдается в эксперименте в полях порядка 1 Т.

«Восстановление» спиновой поляризации фотовозбужденных экситонов имеет место, когда зеемановское расщепление экситонных состояний превосходит анизотропное обменное расщепление. Таким образом, расщепление состояний $|X\rangle$ и $|Y\rangle$ оптически активного экситона определяется выражением $\delta_b = \mu_B * g_X^{\parallel} * B_{1/2}$, где μ_B это магнетон Бора. Продольный g-фактор экситона $|g_X^{\parallel}| = |g_e^{\parallel} - g_{hh}^{\parallel}| = 1.47$, поскольку $g_e^{\parallel} = 1.43$ (см. раздел 3.2), $g_{hh}^{\parallel} = 2.9$ [38]. Получаем $\delta_b = 85$ мкэВ, в работе [30] для КТ InP/(In,Ga)P было получено значение δ_b около 100 мкэВ.

Отметим, что описанная немонотонная зависимость поляризации от магнитного поля свидетельствует в пользу моделей формирования ОЦП, обусловленных анизотропным

обменным взаимодействием. Действительно, предположим, что ОЦП вызвана тем, что при возбуждении и рекомбинации носителей задействованы разные подзоны дырок (легкие и тяжелые), имеющие разные правила отбора [29]. В таком случае в больших полях (1 Т) может происходить не преодоление обменного взаимодействия, а, например, замедление спиновой релаксации дырок. Однако, неясно, почему поляризация ФЛ при этом уменьшается, а не увеличивается. Таким образом, экспериментальные результаты, представленные на Рисунке 2.8, не удастся объяснить в рамках модели формирования ОЦП, сформулированной в работе [29].

2.4 Динамика интенсивности и отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции

Исследована динамика интенсивности и степени циркулярной поляризации ФЛ ансамбля КТ InP/(In,Ga)P при циркулярно-поляризованном возбуждении, см. Рисунок 2.9 (a,b). Для описания интенсивности ФЛ требуется введение двух (или более) времен затухания. Кривая была описана суммой двух экспонент с временами 1.7 и 35 нс (красная штриховая линия на Рисунке 2.9 (b)). Отметим, что в данном случае время затухания 1.7 нс определяется разрешением измерительной системы. В экспериментах с высоким временным разрешением получено время затухания ФЛ 0.5 нс. Время излучательной рекомбинации порядка 1 нс является типичным для прямозонных КТ [27].

Относительно долгое время рекомбинации (35 нс) может быть связано с наличием в ансамбле непрямозонных в реальном или импульсном пространстве КТ, захватом фотовозбужденных носителей на дефекты, а также испусканием ФЛ темными экситонами. Последний процесс может происходить за счет смешивания состояний темных и светлых экситонов, а также за счет связывания темного экситона с резидентным носителем или примесью. Проверить обусловлена ли «затяжная» ФЛ рекомбинацией темных экситонов можно приложив поперечное магнитное поле (B) достаточной величины. Такое поле смешивает состояния светлых и темных экситонов, что ускоряет излучательную рекомбинацию последних. Зеемановское расщепление электронных

состояний $\Delta E = \mu_B g_e B$ в поле 3 Т составляет 250 мкэВ, g -фактор электрона g_e в данных КТ InP/(In,Ga)P равен 1.43, см. раздел 3.2. Таким образом, полей в несколько тесла достаточно для смешивания указанных состояний, обменное расщепление которых имеет порядок сотен микроэлектронвольт, см. раздел 2.1. Однако, в ходе исследований было обнаружено, что при приложении магнитного поля 3 Т в геометрии Фойхта скорость затухания ФЛ не меняется. Данное обстоятельство свидетельствует в пользу того, что «затяжная» компонента ФЛ не связана с темными экситонами.

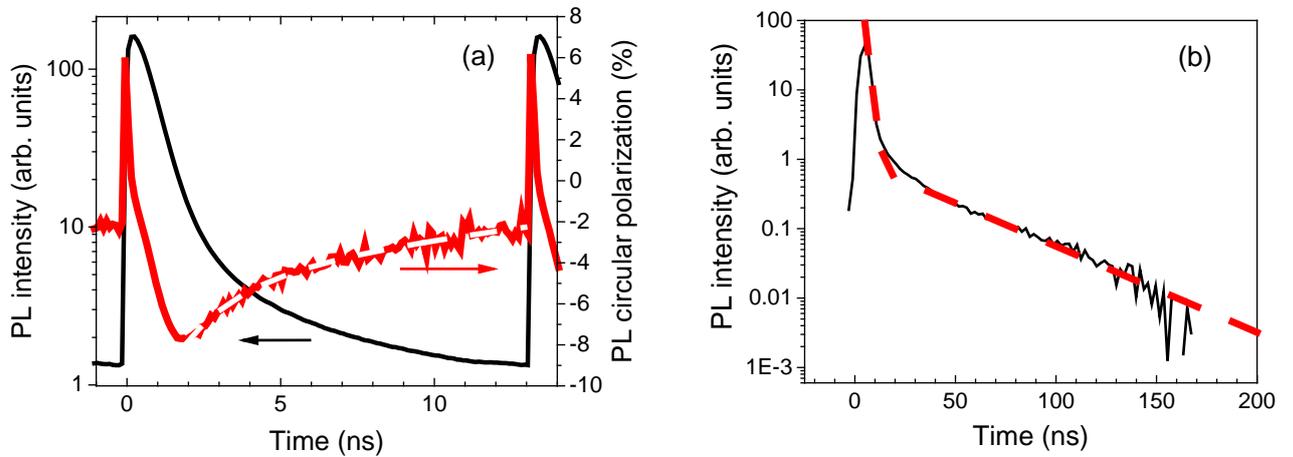


Рисунок 2.9: Динамика интенсивности и циркулярной поляризации ФЛ при циркулярно-поляризованном возбуждении, $E_{exc} = 1.78$ эВ. Сплошными линиями показаны экспериментальные данные, штриховыми линиями показана аппроксимация. (a) Сигнал регистрировался в интервале энергий $E_{det} = 1.60$ - 1.62 эВ. (b) Использовалось разрежение импульсов лазера, период их следования составлял 260 нс, $E_{det} = 1.58$ - 1.66 эВ.

Теперь предположим, что «затяжной» вклад в динамику ФЛ соответствует излучению непрямозонных КТ. О том, что данные КТ InP/(In,Ga)P могут быть непрямозонными в реальном пространстве (КТ типа II) сообщалось в работе [19]. Однако, в КТ типа II электрон и дырка разделены в пространстве, в результате чего их обменное взаимодействие слабо. В свою очередь, взаимные «флип-флоп» перевороты спинов электрона и дырки, вызванные обменным взаимодействием, являются необходимым (для появления ОЦП) процессом согласно моделям формирования ОЦП (см. раздел 2.2). Таким образом, отрицательная поляризация «затяжной» ФЛ вступает в противоречие с предположением о непрямозонных КТ. Можно предположить, что наиболее вероятный сценарий появления «затяжной» ФЛ – захват носителей на дефекты с последующим

высвобождением и рекомбинацией. Исследование природы «затяжной» ФЛ, однако, остается за рамками настоящей работы.

Рассмотрим Рисунок 2.9 (а). Знак циркулярной поляризации как «быстрой», так и «затяжной» компоненты ФЛ противоположен знаку циркулярной поляризации возбуждающего света, что, как было сказано выше, свидетельствует о заселении КТ резидентными электронами. В результате фотовозбуждения образуются X^- трионы, в основном состоянии которых спиновая динамика определяется тяжелой дыркой, поскольку спины s -электронов антипараллельны и компенсируют друг друга. Время спиновой релаксации тяжелой дырки было получено аппроксимацией динамики ОЦП ФЛ суммой двух экспонент (штриховая линия на Рисунке 2.9 (а)). Время спиновой релаксации дырок с относительно быстрым и долгим временем рекомбинации составляет 1.6 и 17 нс соответственно.

Далее будет продемонстрировано, что динамика ОЦП «быстрой» и «затяжной» компоненты ФЛ имеет сходные особенности в поперечном магнитном поле. На этом основании в дальнейшем, где это не оговорено особо, «быстрая» и «затяжная» компоненты будут рассматриваться вместе, как полный сигнал ФЛ.

2.5 Динамика отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции в магнитном поле в геометрии Фойхта

В данном разделе обсуждается спиновая динамика ансамбля X^- трионов в магнитном поле в геометрии Фойхта. Наличие осцилляций в динамике оптической ориентации ФЛ X^- трионов можно ожидать вследствие ларморовской прецессии как спинов дырок, так и спинов резидентных и фотовозбужденных электронов до образования основного состояния триона. Однако, в эксперименте не наблюдается осцилляций в динамике ОЦП в поперечном магнитном поле, см. Рисунок 2.10. С ростом поля степень циркулярной поляризации уменьшается по модулю вплоть до нуля. Значение поля, в котором степень поляризации уменьшается в два раза, приблизительно составляет 20 мТ. Ниже мы

приводим анализ динамики ОЦП в магнитном поле и предлагаем объяснение нетривиального эффекта отсутствия осцилляций. В разделе 2.5.1 представлено моделирование спиновой динамики ансамбля X^- трионов, находящихся в основном состоянии. Целью моделирования является рассмотрение условий, при которых осцилляции среднего по ансамблю спина X^- трионов «замываются».

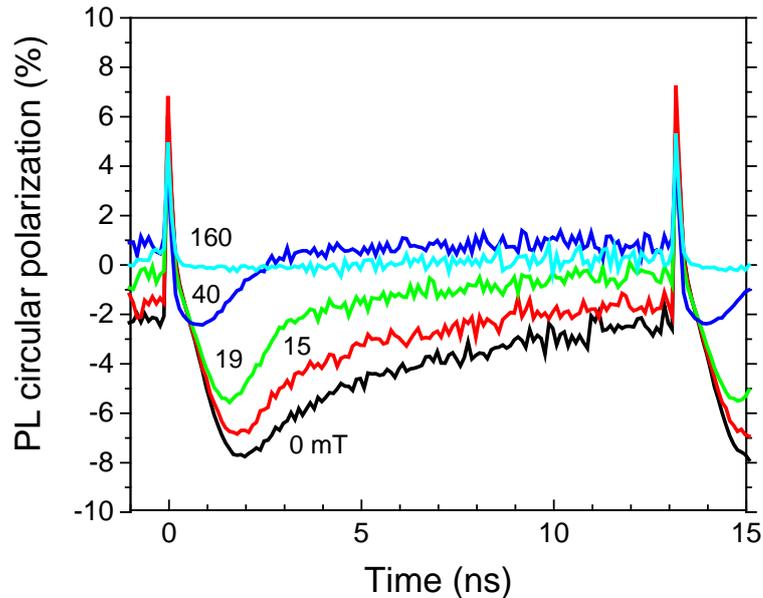


Рисунок 2.10: Динамика циркулярной поляризации ФЛ в различных магнитных полях в геометрии Фойхта при циркулярно-поляризованном возбуждении. $E_{exc} = 1.78$ эВ, $E_{det} = 1.60-1.62$ эВ.

2.5.1 Моделирование спиновой динамики ансамбля отрицательно заряженных экситонов в основном состоянии

Рассмотрим спиновую динамику ансамбля X^- трионов в поперечном магнитном поле. Спин триона в основном состоянии полностью определяется тяжелой дыркой, поскольку спины электронов антипараллельны и компенсируют друг друга. В случае достаточно высокой симметрии КТ (аксиальной или D_{2d}) g -фактор тяжелой дырки в плоскости КТ (поперечный g -фактор) g_{hh}^\perp близок к нулю [39]. Однако, зачастую симметрия КТ оказывается ниже (C_{2v}). Вследствие асимметрии в плоскости КТ происходит смешивание

состояний легкой и тяжелой дырок. В результате g_{hh}^\perp имеет малые, но отличные от нуля значения. В КТ CdSe/ZnSe наблюдался $g_{hh}^\perp = 0.2$ [40] и $g_{hh}^\perp = 0.3$ [41]. Разброс g-фактора тяжелой дырки по ансамблю КТ мы будем описывать нормальным распределением $f(g_{hh}^\perp)$ со среднеквадратическим отклонением $\sigma \triangleq \Delta g_{hh}^\perp$ и математическим ожиданием $\mu \triangleq \langle g_{hh}^\perp \rangle$.

Динамика спина тяжелой дырки \mathbf{j} в магнитном поле \mathbf{B} описывается уравнением Блоха:

$$d\mathbf{j}/dt = -\mathbf{j}/T_s^{hh} + \mu_B/\hbar g_{hh}^\perp \mathbf{B} \times \mathbf{j}, \quad (2.3)$$

где T_s^{hh} - время жизни спина тяжелой дырки, \hbar – постоянная Планка. Решение уравнения Блоха, имеющее вид $j_z(t) \propto \cos(\omega t) \exp(-t/T_s^{hh})$, было усреднено по распределению $f(g_{hh}^\perp)$:

$$\langle j_z \rangle = \int j_z(t, g_{hh}^\perp) f(g_{hh}^\perp) dg_{hh}^\perp. \quad (2.4)$$

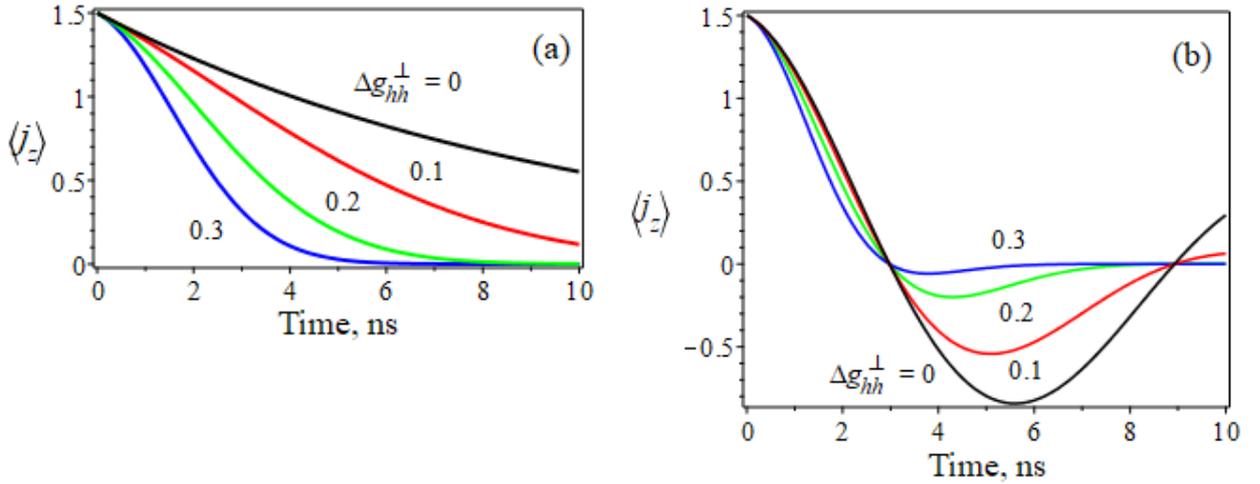


Рисунок 2.11: Моделирование динамики среднего по ансамблю спина тяжелой дырки в поперечном магнитном поле 20 мТ, $T_s^{hh} = 10$ нс: (а) $\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0$, $\Delta g_{hh}^\perp = 0 - 0.3$; (б) $\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0.3$, $\Delta g_{hh}^\perp = 0 - 0.3$.

На Рисунке 2.11 представлены функции, полученные в результате усреднения (2.4) с различными параметрами Δg_{hh}^\perp и $\langle g_{hh}^\perp \rangle$. Функции описывают динамику среднего по ансамблю спина тяжелых дырок в поперечном магнитном поле. При хаотичных деформациях в плоскости КТ ($\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0$) осцилляции $\langle j_z \rangle$ отсутствуют вне зависимости от Δg_{hh}^\perp , см. Рисунок 2.11 (а). При $\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0.3$ осцилляции $\langle j_z \rangle$ присутствуют (см. Рисунок 2.11 (б)) и «замываются» при Δg_{hh}^\perp порядка десятых долей единицы. Таким образом,

осцилляции в динамике поляризации ФЛ X^- трионов в магнитном поле не проявляются при наличии в плоскости КТ хаотичных деформаций ($\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0$), а также при достаточно большом разбросе g_{hh}^\perp по ансамблю дырок, когда выполняется соотношение $\Delta g_{hh}^\perp > \langle g_{hh}^\perp \rangle$. Отметим, что указанные условия вполне реализуемы в силу специфики появления в КТ g_{hh}^\perp отличного от нуля. Можно заключить, что наблюдаемое экспериментально отсутствие осцилляций в динамике ОЦП ФЛ согласуется с модельными особенностями спиновой динамики X^- трионов в основном состоянии.

2.5.2 Вклад спиновой ориентации электронов в поляризацию фотолюминесценции отрицательно заряженных экситонов

Учтем ларморовскую прецессию спинов резидентных и фотовозбужденных электронов, которая имеет место до формирования основного состояния триона. Отметим, что спиновая ориентация электронов в возбужденном состоянии X^- триона определяет поляризацию спина дырки после релаксации триона в основное состояние, что подробно поясняется при описании моделей ОЦП в разделе 2.2. При этом прецессия электронных спинов в магнитном поле не может вызвать осцилляции поляризации ФЛ ансамбля X^- трионов, поскольку ориентация электронных спинов влияет только на среднее значение дырочного спина в основном состоянии трионов, дальнейшая же динамика определяется исключительно спином дырки.

Покажем, что эффект Ханле, наблюдаемый в магнитных полях порядка десятка миллитесла (см. Рисунок 2.10), обусловлен деполяризацией спинов электронов. Заметим, что при $B \approx 20$ мТ в эксперименте имеет место значительная деполяризация ФЛ уже на временах порядка сотен пикосекунд после лазерного импульса, см. Рисунок 2.10. Обратимся к спиновой динамике тяжелой дырки: положим $\langle g_{hh}^\perp \rangle = 0.2$, тогда период прецессии дырочного спина в магнитном поле 20 мТ составит около 18 нс. Для того чтобы ансамбль дырочных спинов деполяризовался необходимо, чтобы прошло хотя бы четверть периода вращения спинов, что составляет 4.5 нс. Оценка противоречит тому

экспериментальному наблюдению, что деполяризации ФЛ происходит уже в течение первой наносекунды.

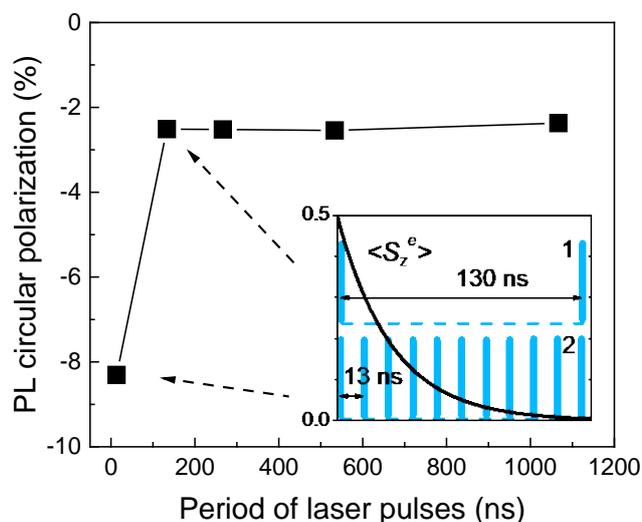


Рисунок 2.12: Зависимость интегральной по времени циркулярной поляризации ФЛ от периода повторения лазерных импульсов T_R при циркулярно-поляризованном возбуждении. $E_{exc} = 1.78$ эВ, $E_{det} = 1.61$ эВ. Вставка: показано экспоненциальное затухание среднего спина резидентных электронов с характерным временем 30 нс. Вертикальными полосами показаны серии лазерных импульсов 1 и 2 с $T_R = 130$ и 13 нс соответственно.

В отличие от фотовозбужденных носителей резидентные электроны деполяризуются преимущественно в «свободном» состоянии между импульсами лазера, что приводит к деполяризации ФЛ непосредственно после лазерного импульса, которая и наблюдается в эксперименте. Покажем, что имеет место накачка спинов резидентных электронов, существенно влияющая на поляризацию ФЛ. О спиновой накачке резидентных электронов также свидетельствует зависимость ОЦП от мощности возбуждения, что обсуждалось в разделе 2.3. Предполагается, что увеличение поляризации спинов резидентных электронов с мощностью приводит к росту ОЦП. Теперь рассмотрим зависимость интегральной по времени поляризации ФЛ от периода возбуждающих лазерных импульсов T_R (Рисунок 2.12). ОЦП уменьшается с ростом T_R от 13 до 130 нс, при дальнейшем росте T_R поляризация постоянна. Естественно предположить, что время жизни спина резидентных электронов лежит в диапазоне от 13 до 130 нс, см. вставку Рисунка 2.12. В результате, при $T_R = 13$ нс (последовательность импульсов 2 на вставке Рисунка 2.12) спиновая ориентация резидентных электронов «доживает» до очередного лазерного импульса, и накопление спиновой ориентации за много импульсов лазера имеет

место. При $T_R \geq 133$ нс (последовательность импульсов 1) накопление спиновой ориентации за много импульсов не происходит. Отметим, что спиновая поляризация резидентных электронов увеличивает ОЦП ФЛ более чем в 3 раза: с -2.5 до -8.3%.

2.5.3 Влияние ядерного поля на деполяризацию фотолюминесценции

Подводя промежуточные итоги, можно заключить, что деполяризация ФЛ X^- трионов в КТ InP/(In,Ga)P обусловлена ларморовской прецессией электронных спинов. С целью выяснить, чем определяется характерное значение магнитного поля (около 20 мТ), в котором происходит спиновая деполяризация электронов (Рисунок 2.10), в данном разделе представлены зависимости поляризации стационарной ФЛ от магнитного поля в геометрии Фойхта. Исследования проводились как при наличии, так и в отсутствие динамической поляризации ядер (ДПЯ). ДПЯ исключалась при помощи модуляции поляризации возбуждения с частотой порядка десятка килоггерц, см. раздел 1.1.

Рассмотрим зависимость ОЦП ФЛ от магнитного поля (Рисунок 2.13). В поперечном поле наблюдается эффект Ханле, т.е. деполяризация ФЛ. Кривая Ханле при наличии ДПЯ имеет полуширину 15 мТ, что соответствует значению характерного магнитного поля, в котором деполяризуется динамика ФЛ (20 мТ). В отсутствие ДПЯ полуширина кривой Ханле составляет 6.5 мТ. Полуширины кривых определены аппроксимацией контуром Лоренца. Таким образом, наличие ядерного поля уширяет кривую Ханле в 2.3 раза, в то время как обычно происходит обратное: ядерное поле (действующее на спины электронов) ускоряет деполяризацию ФЛ, складываясь со внешним полем [18]. В главе 3 показано, что наблюдаемый эффект вызван фиксацией ядерного поля вдоль оси роста КТ. Фиксация ядерного поля происходит в силу наличия ядерного квадрупольного взаимодействия, вызванного деформацией. Получается, что для деполяризации ФЛ при наличии ДПЯ поперечному внешнему магнитному полю необходимо преодолеть продольное ядерное поле B_N . Таким образом, B_N можно оценить по полуширине кривой Ханле в 15 мТ.

В нулевом магнитном поле при постоянной поляризации возбуждающего света поляризация ФЛ составляет 7%, при переменной поляризации 6%. Эффект объясняется тем, что ДПЯ имеет место уже в нулевом внешнем магнитном поле, в результате чего продольное ядерное поле стабилизирует спины электронов (см. главу 3).

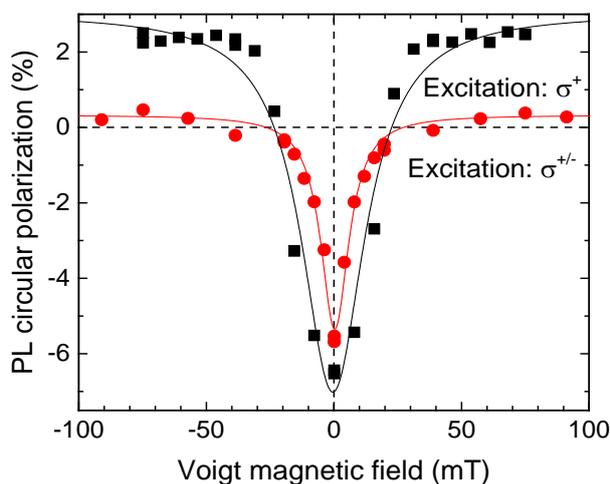


Рисунок 2.13: Символами показаны стационарные зависимости поляризации ФЛ от магнитного поля в геометрии Фойхта при постоянной и модулированной циркулярной поляризации возбуждения. Сплошными линиями показана аппроксимация контурами Лоренца. $E_{exc} = 1.77$ эВ, $E_{det} = 1.61$ эВ.

2.6 Промежуточные итоги главы 2

- Экспериментально исследованы характерные особенности отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции X^- трионов в ансамбле квантовых точек $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$. В согласии с имеющимися в литературе моделями происходит накачка спинов резидентных электронов, проявляющаяся в увеличении ОЦП ФЛ с мощностью возбуждения. Измерена зависимость интенсивности и циркулярной поляризации ФЛ от энергии фотонов возбуждающего света. При уменьшении стоксова сдвига до 130 мэВ циркулярная поляризация ФЛ меняет знак и из отрицательной становится положительной. Наличие анизотропного обменного взаимодействия электронов и дырок в оптически активных экситонах проявляется в немонотонной зависимости ОЦП ФЛ от

магнитного поля в геометрии Фарадея. Когда зеемановское расщепление экситонных состояний становится больше анизотропного обменного расщепления, происходит уменьшение ОЦП, что подтверждает необходимость анизотропного обменного взаимодействия для формирования ОЦП.

- Экспериментально показано, что в динамике ФЛ X^- трионов в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P сосуществуют относительно быстрое (0.5 нс) и долгое (35 нс) времена затухания сигнала. «Быстрому» и «затяжному» вкладам в интенсивность ФЛ соответствуют два вклада в циркулярную поляризацию ФЛ с временами затухания 1.6 и 17 нс соответственно. Поляризация обоих вкладов отрицательна, что свидетельствует о наличии в КТ резидентных электронов.
- Экспериментально показано, что в динамике ОЦП ФЛ X^- трионов в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P в магнитном поле в геометрии Фойхта отсутствуют осцилляции. При этом с ростом поля поляризация ФЛ уменьшается до нуля. Показано, что отсутствие осцилляций вызвано следующими обстоятельствами: (i) Спиновая динамика X^- триона в основном состоянии определяется тяжелой дыркой. Компонента g-фактора тяжелой дырки в плоскости КТ мала. (ii) Деполяризация ФЛ X^- трионов определяется ларморовской прецессией спинов электронов. Спиновая ориентация электронов влияет исключительно на поляризацию спинов дырок в основном состоянии комплекса.
- Экспериментально показано, что в случае X^- трионов в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P кривая Ханле уширяется в 2.3 раза при наличии динамической поляризации ядер. Ядерное поле с характерной величиной 15 мТ, действующее на спины электронов, оказывается фиксированным вдоль оси роста КТ. Фиксация ядерного поля обусловлена ядерным квадрупольным взаимодействием, наведенным деформацией.

Глава 3

Спиновые биения в динамике поляризации фотолюминесценции заряженных экситонов в квантовых точках InP/(In,Ga)P при наличии ядерного квадрупольного взаимодействия

3.1 Введение

Для использования полупроводниковых квантовых точек в спинтронике [7,8] требуется продолжительное время жизни спина носителей, в результате чего представляется актуальным изучение эффектов, стабилизирующих спины в наноструктурах. Одним из таких эффектов является ядерное квадрупольное взаимодействие (ЯКВ) [42].

У ядер со спином, превышающим $1/2$, имеется ненулевой электрический квадрупольный момент [43]. Квадрупольный момент порождается отклонением распределения ядерного заряда от сферической симметрии. Когда ядра, обладающие квадрупольным моментом, взаимодействуют с электростатическими потенциалами, имеющими симметрию ниже кубической, имеет место ЯКВ. Энергия взаимодействия при этом является функцией ориентации ядра по отношению к его зарядовому окружению, и, следовательно, функцией магнитного квантового числа m , которое описывает эту ориентацию.

В объемном (Al,Ga)As локальное понижение кубической симметрии (градиент электрического поля) возникает при замене атомов галлия атомами алюминия [18]. В КТ

InP/(In,Ga)P градиент поля вызван значительной деформацией, причиной которой является несоответствие постоянных решеток InP и (In,Ga)P. Так, для InP и In_{0.485}Ga_{0.515}P несоответствие составляет 3.7% [44]. Деформация возникает на гетерогранице, причем ось деформации сонаправлена с осью роста квантовой точки, в нашем случае [001]. ЯКВ влияет на спиновое состояние ядра, причем проекция ядерного спина на главную ось квадрупольного взаимодействия [001] сохраняется. Если существенную роль играет сверхтонкое взаимодействие электронных и ядерных спинов, то ЯКВ будет оказывать влияние также на состояние электронных спинов. Данный эффект можно изучать по особенностям поляризованной ФЛ, результаты такого изучения представлены в данной главе.

Динамическая поляризация спинов ядер при наличии сильного ЯКВ ранее изучалась в объемном (Al,Ga)As [18]. Кроме того, наблюдалось влияние ЯКВ на спиновую систему электронов и ядер в КТ InP/(In,Ga)P [42,45]. В работе [42] представлены стационарные магнитопольные исследования циркулярной поляризации ФЛ X⁻ трионов. В работе [45] изучалась динамика поляризации ядерных спинов в однократно заряженных и нейтральных КТ в магнитном поле в геометрии Фарадея.

В данной главе исследовалось влияние ЯКВ на спиновую динамику в ансамбле положительно и отрицательно заряженных, а также нейтральных экситонов в КТ InP/(In,Ga)P. Изучалась как время-разрешенная, так и стационарная ФЛ в магнитных полях в геометрии Фойхта и Фарадея. В динамике оптической ориентации ФЛ при наличии внешнего магнитного поля в геометрии Фойхта наблюдались ярко выраженные спиновые биения. Изучены особенности указанных биений, в том числе при наличии ДПЯ и ЯКВ. В частности, наблюдаются осцилляции циркулярной поляризации ФЛ не относительно нуля поляризации, что является типичным [46,47], а относительно некоторого монотонно затухающего во времени вклада в поляризацию. Показано, что эффект вызван наличием двух вкладов в ФЛ, один из которых соответствует X⁻, а другой X⁺ трионам.

Рассмотрим два предельных случая спиновой релаксации: релаксация в режиме длинных [48] и коротких [9] времен корреляции. Как известно, любой механизм потери спина может быть представлен в виде действующих на спин флуктуационных эффективных магнитных полей. Важной характеристикой этих полей является время корреляции (τ_c) – промежуток времени, в течение которого флуктуационное поле

остается неизменным. Можно выделить два предельных случая потери спина: Режиму длинных времен корреляции («замороженным» полям) соответствует условие $\Omega_f \cdot \tau_c \gg 1$, где Ω_f – частота прецессии спина во флуктуационном поле. Режиму коротких времен корреляции соответствует условие $\Omega_f \cdot \tau_c \ll 1$. В данной главе будет показано, что в исследуемых КТ имеет место релаксация спинов электронов в ядерных полях с длинным временем корреляции. Произведено описание серии временных зависимостей поляризации ФЛ (в отсутствие ДПЯ) в различных магнитных полях соответствующими функциями, предложенными в работе [48].

Основная часть результатов, представленных в данной главе, опубликована в работе [А3].

3.2 Экспериментальные результаты. Зависимость циркулярной поляризации фотолюминесценции от магнитного поля

В данной главе приводятся результаты исследования подансамбля КТ InP/(In,Ga)P относительно небольшого размера, которым соответствует высокоэнергетическая полоса в спектре ФЛ (см. раздел 1.4.1). Значительная степень циркулярной поляризации (40 - 50%) ФЛ данных КТ (см. Рисунок 3.1) в нулевом магнитном поле свидетельствует о трионной (X^+ либо X^-) природе ФЛ [28].

Рассмотрим, чем отличаются стационарные зависимости циркулярной поляризации ФЛ от магнитного поля при наличии ДПЯ и в ее отсутствие (Рисунок 3.1 (а)). В первом случае используется постоянное по поляризации возбуждение ФЛ, во втором – модулированное (см. раздел 1.1). Время формирования ДПЯ значительно превосходит период модуляции приблизительно равный 50 мкс, в результате чего ядерная поляризация отсутствует [18]. При наличии ДПЯ полуширина кривой Ханле приблизительно второе больше (50 против 16 мТ), чем в отсутствие ДПЯ. Степень поляризации ФЛ в нулевом магнитном поле также больше (48 против 41%), кривая восстановления поляризации в продольном поле несимметрична относительно смены знака поля. Эффект, наблюдаемый

в поперечном поле нельзя объяснить при помощи классической модели охлаждения системы ядерных спинов [18], в рамках которой поле Оверхаузера сужает кривую Ханле, складываясь со внешним полем и ускоряя деполяризацию.

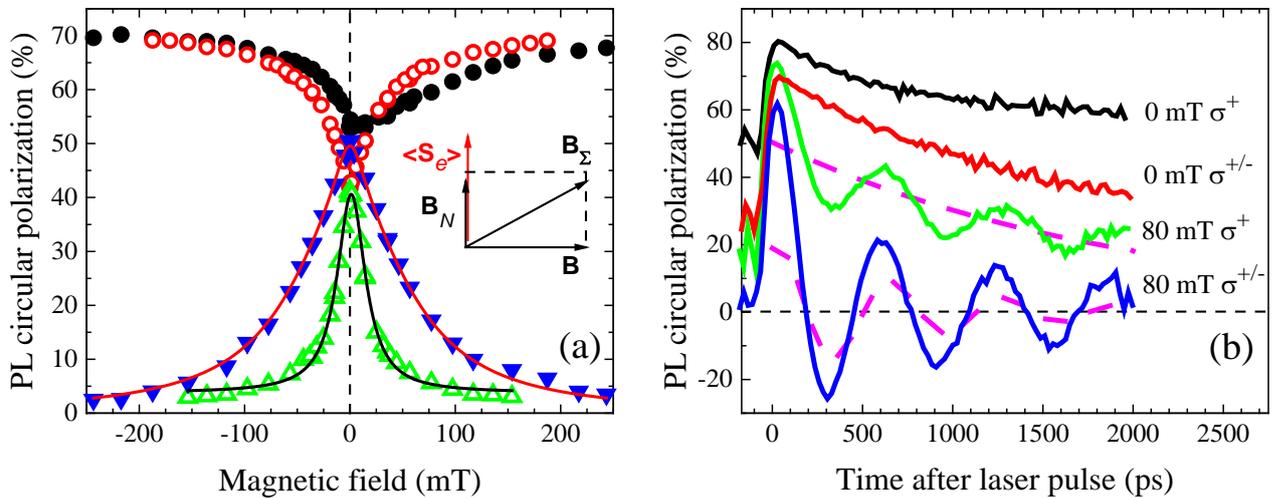


Рисунок 3.1: (а) Зависимость циркулярной поляризации ФЛ от магнитного поля в геометрии Фойхта (треугольники) и Фарадея (круги). $E_{exc} = 1.77$ эВ, $E_{det} = 1.75$ эВ. Полыми/заполненными символами показаны результаты, полученные при модулированной ($\sigma^{+/-}$)/постоянной (σ^+) поляризации возбуждения. Черной/красной линией показано описание одним контуром/двумя контурами Лоренца в случае модулированной/постоянной поляризации возбуждения. На вставке продемонстрирована взаимная ориентация среднего электронного спина $\langle S_e \rangle$ и магнитных полей. (б) Динамика циркулярной поляризации ФЛ. $E_{exc} = 1.78$ эВ, ФЛ регистрировалась в полосе $E_{det} = 1.74 - 1.76$ эВ. Сплошными линиями представлены экспериментально полученные зависимости как в нулевом магнитном поле, так и в поле 80 мТ в геометрии Фойхта. Для каждого значения поля представлены кривые при модулированной ($\sigma^{+/-}$) и при постоянной (σ^+) поляризации возбуждения. Штриховыми линиями изображены две зависимости, полученные аппроксимацией экспериментальных данных, сумма зависимостей хорошо описывает кривую 80 мТ при постоянной поляризации возбуждения.

Для описания приведенных результатов естественно предположить, что ДПЯ имеет место уже в нулевом внешнем магнитном поле, в результате чего происходит стабилизация электронных спинов эффективным полем ядер. Отметим, что время жизни спина резидентных электронов в исследуемом образце намного короче (≤ 100 нс, см. раздел 2.4), чем период модуляции поляризации возбуждения (около 50 мкс). Таким образом, модуляция не уменьшает эффективность спиновой накачки резидентных электронов, если не брать в расчет эффектов, обусловленных ДПЯ. Также для описания экспериментальных результатов (Рисунок 3.1 (а)) можно предположить, что даже при

наличии внешнего магнитного поля в геометрии Фойхта поле Оверхаузера ориентировано вдоль оси роста структуры, совпадающей с направлением возбуждения. В таком случае поперечному внешнему полю, действующему на спины электронов, для деполяризации ФЛ необходимо «преодолеть» продольное ядерное поле. Несимметричность зависимости в магнитном поле в геометрии Фарадея возникает вследствие того, что при одном знаке внешнего поля ядерное поле с ним складывается, при другом – вычитается. Причиной стабилизации ядерных спинов вдоль оси роста КТ является наличие ЯКВ, вызванного деформацией, что будет обсуждаться подробнее в разделе 3.3.2.

Проведем сравнение время-разрешенных зависимостей циркулярной поляризации ФЛ при наличии ДПЯ и в ее отсутствие (Рисунок 3.1 (b)). В первом случае используется постоянное по поляризации возбуждение, во втором – модулированное. В нулевом магнитном поле при наличии ДПЯ поляризация ФЛ больше по абсолютному значению (в максимуме 80 против 70%). Как отмечалось выше, уже в нулевом внешнем магнитном поле происходит стабилизация спинов электронов в ядерном эффективном поле. При наличии внешнего поля в геометрии Фойхта в динамике поляризации ФЛ наблюдаются ярко выраженные осцилляции, соответствующие ларморовской прецессии электронного спина в X^+ трионе. При наличии ДПЯ поляризация ФЛ осциллирует не относительно нуля, а относительно некоторого вклада в поляризацию, монотонно затухающего со временем. В дальнейшем мы будем выделять в динамике поляризации «монотонно затухающий» и «осциллирующий» (относительно нуля поляризации) вклады, в сумме дающие экспериментально измеренную кривую (штриховые линии на Рисунке 3.1 (b)). Наличие «монотонно затухающего» вклада в поляризацию можно интерпретировать в рамках концепции поля Оверхаузера, направленного вдоль оси роста квантовой точки. Тогда на электронный спин в X^+ трионе действует суммарное наклонное поле \mathbf{V}_Σ , представляющее собой сумму продольного ядерного (\mathbf{V}_N) и поперечного внешнего (\mathbf{V}) полей (вставка на Рисунке 3.1 (a)). Как следствие, существует компонента электронного спина нормальная \mathbf{V}_Σ (и прецессирующая в нем) и компонента спина параллельная \mathbf{V}_Σ (прецессия не происходит). В результате имеются «осциллирующий» и «монотонно затухающий» вклады в динамику поляризации ФЛ.

На Рисунке 3.2 представлены серии зависимостей поляризации ФЛ от времени в различных магнитных полях как при наличии ДПЯ (Рисунок 3.2 (a)), так и в ее отсутствие

(Рисунок 3.2 (b)). Рассмотрим кривые, представленные на Рисунке 3.2 (a), в рамках концепции фиксированного вдоль оси роста КТ ядерного поля, действующего на спин электрона. С ростом внешнего поля увеличивается угол между средним электронным спином $\langle S_e \rangle$ и суммарным полем B_Σ , действующим на спин и состоящим из суммы поперечного внешнего поля B и продольного ядерного поля B_N . В результате величина проекции спина на направление B_Σ уменьшается, в то время как величина проекции спина на ось нормальную B_Σ увеличивается. Как следствие, с ростом внешнего поля величина «монотонно затухающего» вклада в поляризацию должна уменьшаться, что и наблюдается на Рисунке 3.2 (a). Значение поля в котором «монотонно затухающий» вклад в поляризацию ФЛ по амплитуде совпадает с «осциллирующим» вкладом приблизительно равно 100 мТ. Данный параметр определяет характерную величину магнитного поля динамически поляризованных ядер B_N . В отсутствие ДПЯ не наблюдается выраженного «монотонно затухающего» вклада (Рисунок 3.2 (b)). Действительно, проекция электронного спина на направление внешнего поля близка к нулю.

Для определения частот ларморовской прецессии электронных спинов из кривых, представленных на Рисунке 3.2 (a,b), к последним было применено преобразование Фурье. Полученная частота биений ν увеличивается линейно с внешним полем как при наличии, так и в отсутствие ДПЯ (вставка на Рисунке 3.2 (b)). Зависимость ν от магнитного поля была описана прямой, из угла наклона которой при помощи соотношения $h\nu = \mu_B |g_e| B$ была определена величина модуля g-фактора электрона $|g_e|$ равное 1.43. Значение $|g_e| = 1.43$ совпадает с тем, что было получено в работе [36], при этом отличается от определенного в ряде работ значения 1.6 [38,49]. Однако, в рамках концепции фиксированного вдоль оси роста КТ ядерного поля частота биений пропорциональна $\sqrt{B^2 + B_N^2}$ (штриховая линия на вставке Рисунка 3.2 (b)). Модель предсказывает существенное отклонение от линейного закона в полях меньших либо равных ядерному полю (100 мТ), чего, однако, не наблюдается (см. вставку Рисунка 3.2 (b)). Таким образом, в диапазоне малых полей имеется принципиальное расхождение модели с экспериментом. С одной стороны, зависимости циркулярной поляризации ФЛ от магнитного поля как в стационарном, так и в динамическом режиме свидетельствуют о наличии продольного ядерного поля. С другой стороны, ларморовская прецессия

электронного спина происходит так, как если бы ядерного поля не было вовсе (частота осцилляций динамики поляризации ФЛ линейно растет с полем). В разделе 3.3.1 предложена модель, позволяющая разрешить данное противоречие.

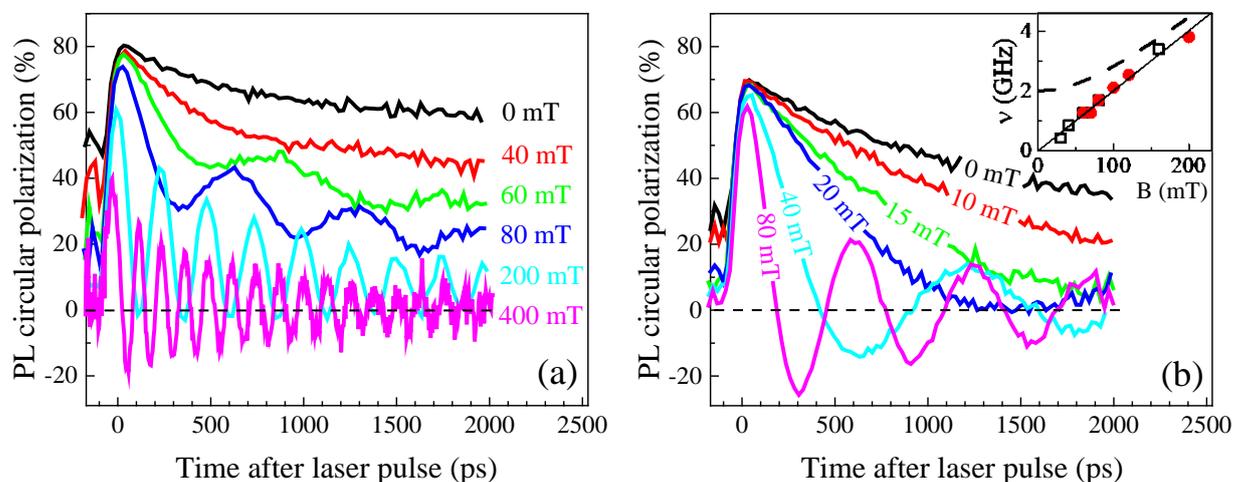


Рисунок 3.2: Динамика циркулярной поляризации ФЛ при возбуждении светом с постоянной (а) и модулированной (b) циркулярной поляризацией в различных магнитных полях (0 - 400 мТ) в геометрии Фойхта. ФЛ возбуждалась с энергией $E_{exc} = 1.78$ эВ и регистрировалась в полосе $E_{det} = 1.74 - 1.76$ эВ. Вставка: зависимость частоты осцилляций поляризации от магнитного поля при возбуждении с постоянной (заполненные символы) и модулированной (полые символы) поляризацией. Штриховой линией показан модельный ход зависимости.

3.3 Обсуждение

3.3.1 Вклады в фотолюминесценцию положительно и отрицательно заряженных экситонов. Интерпретация экспериментальных результатов

Для разрешения заявленного в конце предыдущего раздела противоречия было выдвинуто предположение о том, что существует два независимых вклада в ФЛ. «Осциллирующий» вклад в поляризацию ФЛ соответствует X^+ трионам, «монотонно

затухающий» вклад – X^- трионам. Таким образом, в ансамбле номинально отрицательно заряженных КТ посредством фотолегирования часть точек заряжается положительно. Фотолегирование представляет собой изменение заряда структур при оптическом возбуждении. Фотолегирование происходит, например, при туннелировании или захвате на дефект одного из пары фотовозбужденных носителей. О перезарядке квантовых ям GaAs/(Al,Ga)As при оптическом возбуждении «под барьер» сообщалось в работе [50]. Также сообщалось об одновременном присутствии вкладов X^+ и X^- в спектрах одиночных КТ InAs/GaAs [51]. Кроме того, для описания экспериментальных результатов необходимо предположить, что при наличии резидентных электронов в КТ (случай X^- трионов) ДПЯ имеет место, а в отсутствие резидентных электронов (случай X^+ трионов) – нет. Данное обстоятельство может объясняться разным временем жизни резидентных и фотовозбужденных носителей. Времени жизни фотовозбужденных электронов не хватает для динамической поляризации ядер. По-прежнему предполагается, что эффективное поле динамически поляризованных спинов ядер, действующее на электронные спины (случай X^- трионов) фиксировано вдоль оси роста КТ.

Следуя данной концепции, удастся непротиворечиво описать все полученные результаты. Так, зависимость частоты биений поляризации от магнитного поля (вставка Рисунка 3.2 (b)) полностью определяется ларморовской прецессией спинов электронов в X^+ трионах, поскольку в случае X^- трионов осцилляций в динамике поляризации ФЛ не наблюдается (см. раздел 2.5). Поскольку по предположению на электроны в X^+ трионах не действует ядерное эффективное поле, линейная зависимость частоты биений от поля является ожидаемой. Кроме того, ожидается совпадение результатов при наличии/в отсутствие модуляции поляризации возбуждения, что и наблюдается в эксперименте. Как было указано выше, модуляция поляризации возбуждения на достаточно высокой частоте препятствует ДПЯ.

Рассмотрим зависимости поляризации от времени при наличии ДПЯ (Рисунок 3.2 (a)). Вклад X^- трионов монотонно затухает с ростом магнитного поля, не демонстрируя биений (см. раздел 2.5). Если вычесть данный вклад из экспериментальных кривых, останется осциллирующий относительно нуля поляризации вклад X^+ трионов (см. штриховые линии на Рисунке 3.1 (b)). В отсутствие ДПЯ (Рисунок 3.2 (b)) «монотонно затухающий» вклад в поляризацию (X^- трионы) пропадает уже в небольших полях (порядка 16 мТ). Действительно, в данном случае на спин электрона действует только

внешнее магнитное поле в геометрии Фойхта. Тогда как при наличии ДПЯ внешнему полю для деполяризации ФЛ (в X^- трионе) необходимо «преодолеть» продольное ядерное поле.

Для стационарных зависимостей поляризации ФЛ от магнитного поля (Рисунок 3.1 (а)), приведенные ранее рассуждения касательно фиксированного вдоль оси роста КТ ядерного поля сохраняют силу. Вместе с этим предполагается, что кривая Ханле, измеренная в отсутствие ДПЯ, является суммой двух контуров Лоренца (вклады X^+ и X^- трионов) с приблизительно равными полуширинами (16 мТ) (черная линия на Рисунке 3.1 (а)). При наличии ДПЯ кривую Ханле можно описать суммой двух контуров Лоренца с полуширинами 16 мТ и 70 мТ (красная линия). Таким образом, полуширина кривой деполяризации ФЛ X^+ трионов осталась неизменной, в то время как кривая деполяризации ФЛ X^- трионов заметно уширилась в силу наличия продольного ядерного поля. По значению полуширины контура Лоренца, соответствующего деполяризации ФЛ X^- трионов, можно оценить величину эффективного магнитного поля динамически поляризованных ядер в 70 мТ.

3.3.2 Влияние ядерного квадрупольного взаимодействия на спиновую систему ядер и электронов

Стабилизация ядерных спинов вдоль оси роста КТ вызвана квадрупольным взаимодействием ядер индия. Доля ядер ^{115}In составляет 95.5%, а ядер ^{113}In 4.5%, у всех спин $I = 9/2$ [52]. Для ядер фосфора со спином $1/2$ ЯКВ отсутствует, поскольку их квадрупольный момент равен нулю. В случае деформации вдоль оси роста КТ (z) гамильтониан ЯКВ равен [43]

$$h\nu_Q \left[\hat{I}_z^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right] / 2, \quad (3.1)$$

где h - это постоянная Планка, а константа ν_Q определяется выражением

$$\nu_Q = \frac{3eV_{zz}Q}{2I(2I-1)h}, \quad (3.2)$$

где e - это заряд электрона, V_{zz} - градиент электрического поля, а Q - квадрупольный момент ядра. ЯКВ расщепляет восьмикратно вырожденные в нулевом внешнем магнитном поле состояния ядра. В результате ядерная энергетическая структура представляет собой пять двукратно вырожденных дублета Крамерса, как показано на Рисунке 3.3 (а).

Для того чтобы ядерное квадрупольное взаимодействие играло существенную роль при деполяризации ФЛ во внешнем магнитном поле необходимо выполнение следующего условия: зеемановское расщепление состояний ядер не должно существенно превосходить квадрупольное расщепление. Оценки показали, что для одноосной деформации величиной 2%, направленной по оси роста КТ, квадрупольное расщепление ядер индия преобладает над зеемановским вплоть до полей 100 мТ [42], что соответствует диапазону магнитных полей, в которых в нашем случае наблюдается эффект. Поле, входящее в указанный диапазон и перпендикулярное квадрупольной оси, (в первом приближении) не расщепляет двукратно вырожденные подуровни (соответствующие одинаковому модулю проекции ядерного спина на ось роста КТ) с моментом большим $1/2$. В результате ядерное диполь-дипольное взаимодействие не разрушает ориентацию динамически поляризованных ядерных спинов даже в отсутствие внешнего магнитного поля. Следует отметить, что воздействие ЯКВ на связанную систему электронных и ядерных спинов может проявляться в различных самоорганизованных системах КТ со спином ядер большим $1/2$.

3.3.3 Количественное описание динамики поляризации фотолюминесценции заряженных экситонов в отсутствие динамической поляризации ядер

Как видно из Рисунка 3.1 (а), ширины кривой Ханле и кривой восстановления поляризации в продольном поле равны в отсутствие ДПЯ. Данная особенность свидетельствует о релаксации спинов электронов во флуктуационных полях в режиме длинных времен корреляции (подробнее см. раздел 3.1). В таком случае для описания

зависимостей поляризации ФЛ от времени применяется классическая теория [48]. Теория описывает релаксацию среднего по ансамблю КТ электронного спина во флуктуационных ядерных полях в режиме длинных времен корреляции при наличии внешнего магнитного поля. Рекомбинация и прочие механизмы спиновой релаксации не рассматриваются. Результаты описания динамики поляризации функциями, полученными в работе [48], представлены на Рисунках 3.3 (b-f). В качестве параметров теории выступают характерное значение флуктуации ядерного поля Δ_b , модуль g-фактора электрона $|g_e|$ и характерное значение времени дефазировки электронных спинов T_Δ . Причем достаточно знать любые два параметра для однозначного определения третьего. Как отмечалось выше, $|g_e|$ получен из эксперимента и равен 1.43. Параметром аппроксимации было выбрано Δ_b . Кроме того, функции были домножены на величину A , нормирующую амплитуду. Наилучшее совпадение получено при $\Delta_b = 12$ мТ, что по порядку величины совпадает с полушириной стационарной кривой Ханле (16 мТ). Следует отметить, что в режиме длинных времен корреляции полуширина кривой Ханле определяется значением флуктуационного поля. Исходя из известных размеров КТ (100×5 нм²) и g-фактора можно получить теоретическую оценку [48] значения ядерного поля $\Delta_b = 20.1$ мТ, что согласуется с величиной, экспериментально полученной в данной работе (16 мТ).

Рассмотрим зависимость, полученную экспериментально при $B = 0$ (сплошная линия на Рисунке 3.3 (b)). Через 100 пс после момента возбуждения степень циркулярной поляризации достигает своего максимума (70%). Далее поляризация за несколько наносекунд уменьшается (приблизительно) в 3 раза с 70% до 25%, а затем остается постоянной до следующего лазерного импульса (что видно на «отрицательных задержках», период следования импульсов 13 нс). Данная ситуация характерна именно для спиновой релаксации в «замороженных» флуктуационных полях. При этом в магнитных полях меньших 60 мТ имеется существенное расхождение теории с экспериментом. Хорошее совпадение достигается только в относительно больших полях (начиная с 60 мТ, Рисунок 3.3 (e,f)).

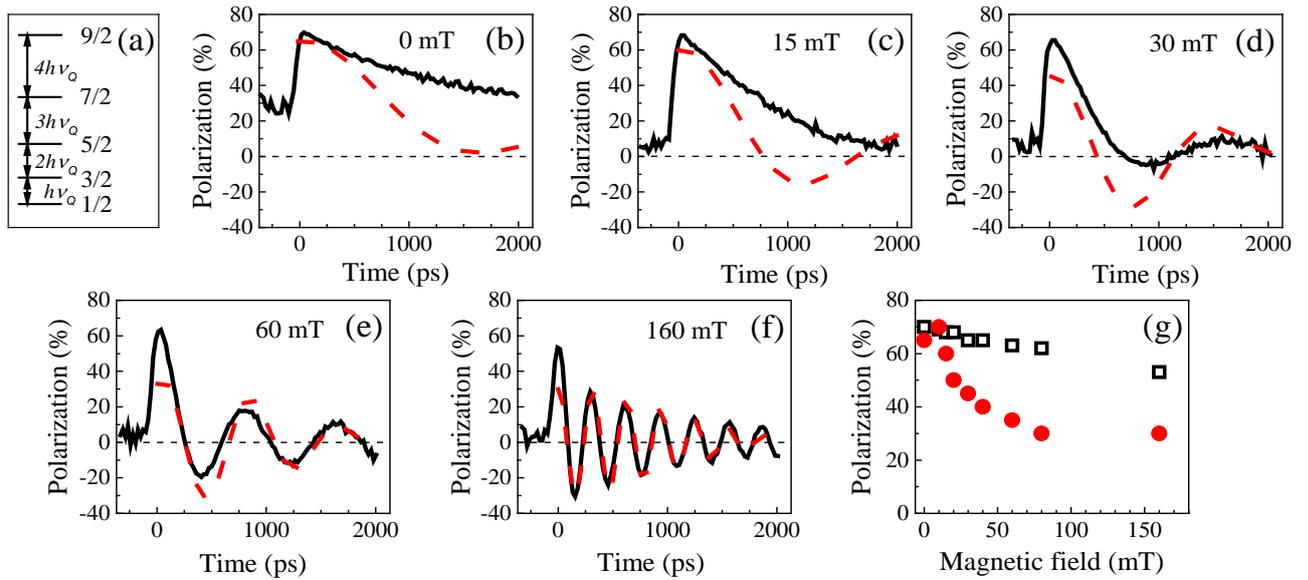


Рисунок 3.3: (a) Схема энергетических уровней, соответствующих указанным на рис. значениям модуля проекции ядерного спина на ось роста КТ. (b – f) Зависимости циркулярной поляризации ФЛ от времени в различных магнитных полях, сплошной линией – экспериментальные, штриховой – теоретические. (g) Зависимость измеренного (полые квадраты) и модельного (заполненные круги) значения максимума циркулярной поляризации в зависимости от магнитного поля.

Наличие двух вкладов в ФЛ (X^+ и X^-) может являться причиной расхождения теории и эксперимента в малых полях. В синглетном состоянии X^+ триона спины двух дырок антипараллельны и компенсируют друг друга, спиновое состояние определяется электроном. При этом согласно модели [48] может происходить релаксация электронных спинов в «замороженных» флуктуациях ядерного поля. В случае X^- трионов ядерное поле действует на электронные спины только до момента релаксации триона в основное состояние. В основном состоянии спины электронов компенсируют друг друга, и спиновая динамика триона определяется тяжелой дыркой. Таким образом, случай X^- триона не входит в область применимости теории, в результате чего описание экспериментальных результатов в малых полях затруднено. В больших полях (начиная с 40 мТ) «монотонно затухающий» в поляризацию ФЛ вклад X^- трионов пропадает, что делает возможным использование теории.

Заметим, что максимум поляризации (в начальный момент времени), полученный из экспериментальных время-разрешенных зависимостей, уменьшается с ростом поля с 70 до 50%, см. Рисунок 3.3 (g). Эффект объясняется уменьшением поляризации ФЛ X^-

трионов в поперечном магнитном поле, обусловленным деполяризацией электронных спинов (см. раздел 2.5). В сильных полях имеется различие между экспериментально определенными значениями максимума поляризации и значениями параметра A , описывающего амплитуду аппроксимирующих функций, см. Рисунок 3.3 (g). Указанное различие обусловлено наличием непродолжительного пика в динамике поляризации, следующего непосредственно после лазерного импульса (см. Рисунок 3.3). Данный пик может быть обусловлен короткоживущим вкладом в ФЛ, например, вкладом возбужденного состояния триона, что, однако, нуждается в дальнейшем исследовании.

В диапазоне полей 80 - 320 мТ динамика поляризации ФЛ определяется спином электрона в X^+ трионе, в следствие чего достигнуто хорошее согласие теории и эксперимента. При этом скорость затухания поляризации (T_D) не зависит от магнитного поля, что свидетельствует об отсутствии заметного разброса значений электронного g -фактора.

3.4 Промежуточные итоги главы 3

- Экспериментально исследованы магнитополевые зависимости оптической ориентации ФЛ заряженных экситонов в КТ InP/(In,Ga)P. Исследования проводились как в стационарном режиме, так и с разрешением по времени. Изучались особенности, возникающие при наличии и в отсутствие динамической поляризации ядер, причем ДПЯ наблюдается только при наличии в исследованных КТ резидентных электронов (случай фотовозбуждения X^- трионов). Показано, что ядерное квадрупольное взаимодействие делает возможной ДПЯ в нулевом внешнем магнитном поле. Кроме того, ЯКВ приводит к фиксации поля Оверхаузера вдоль квадрупольной оси, близкой к оси роста КТ. Последнее обстоятельство, а также наличие двух вкладов в ФЛ (X^- и X^+ трионов) существенным образом влияет на динамику циркулярной поляризации ФЛ в поперечном магнитном поле. В частности, наблюдаются осцилляции циркулярной поляризации не относительно нуля поляризации, а относительно некоторого монотонно затухающего во времени вклада. Причем наличие «монотонно затухающего» вклада в поляризацию

обусловлено ФЛ X^- трионов. Таким образом, показано, что при наличии ЯКВ в КТ InP/(In,Ga)P происходит стабилизация динамически поляризованных спинов ядер и спинов электронов.

- Из экспериментально измеренных стационарных магнитопольевых зависимостей оптической ориентации ФЛ КТ InP/(In,Ga)P (в отсутствие ДПЯ) было определено, что имеет место релаксация спинов электронов в «замороженных» флуктуациях ядерного поля. Время-разрешенные зависимости циркулярной поляризации ФЛ заряженных экситонов были описаны теоретическими кривыми, соответствующими случаю «замороженных» флуктуаций. Для диапазона относительно больших магнитных полей (от 60 до 320 мТ) было достигнуто хорошее совпадение теории и эксперимента. Причиной расхождения теории и эксперимента в диапазоне полей от 0 до 60 мТ может являться наличие вклада X^- трионов в поляризацию ФЛ, не входящего в область применимости теории, в то время как вклад X^+ трионов теорией описывается.

Глава 4

Тонкая структура экситонных уровней в прямозонных и непрямозонных в k -пространстве квантовых точках (In,Al)As/AlAs

4.1 Введение

Спин экситона в квантовой точке может рассматриваться в качестве носителя бита информации для потенциальных применений в спинтронике [7,8]. Однако, время жизни экситона порядка наносекунды в прямозонных КТ [27] недостаточно продолжительное для эффективного управления спином [53]. Существуют различные подходы, призванные решить проблему короткого времени жизни экситона. Например, в главе 2 исследуется спиновая накачка резидентных электронов в КТ. Также возможно использование КТ с непрямыми оптическими переходами в координатном или импульсном пространстве. В первом случае из-за особенностей зонной структуры электрон и дырка разделены в пространстве, в результате чего их рекомбинация затруднена. При этом говорят, что КТ имеют зонную структуру типа II. В случае КТ типа I электрон и дырка локализованы в одной области пространства. В данной главе представлены результаты исследования КТ (In,Al)As/AlAs типа I с непрямыми в k -пространстве оптическими переходами. В таких КТ минимум валентной зоны располагается в Γ -долине, в то время как минимум зоны проводимости располагается в X -долине [17]. В таком случае для фоторекомбинации

экситона требуется участие фононов, и время жизни экситона при криогенных температурах (< 50 К) может достигать миллисекунд [16].

В работе [17] было показано, что в ансамбле КТ (In,Al)As/AlAs с зонной структурой типа I (см. раздел 1.4.2) могут сосуществовать как прямозонные, так и непрямозонные в k -пространстве КТ, причем спектры ФЛ прямозонных и непрямозонных КТ частично перекрываются. КТ (In,Al)As/AlAs ранее были исследованы при помощи следующих оптических техник: (i) ФЛ с разрешением по времени [54], (ii) оптическое детектирование магнитного резонанса [55], (iii) комбинационное рассеяние света [56].

В разделе 4.2 представлены результаты время-разрешенного исследования ФЛ, а также анализа спектров ФЛ селективно возбуждаемых КТ (In,Al)As/AlAs. Такой подход позволил спектрально разделить сосуществующие в ансамбле прямозонные и непрямозонные КТ. В результате появилась возможность обращаться к подансамблям прямозонных и непрямозонных КТ независимо. Была исследована тонкая структура уровней прямых и не прямых в k -пространстве экситонов при помощи спектроскопии поляризованной ФЛ в магнитном поле. В разделах 4.3.1 и 4.3.2 изучалась спиновая релаксация экситонов в прямозонных КТ, определяющаяся анизотропным обменным взаимодействием электрона и дырки, см. раздел 2.1. Для непрямозонных КТ теоретически показано, что анизотропное обменное взаимодействие электрона и дырки мало [57]. В разделах 4.3.1 и 4.3.3 данная особенность экспериментально подтверждается, кроме того исследуется спиновая релаксация электронов в непрямозонных КТ. В результате незначительности обменного взаимодействия электрона и дырки время жизни спина электрона в непрямозонных КТ достигает десятков микросекунд.

Результаты, представленные в данной главе, опубликованы в работе [A4].

4.2 Спектральное разделение прямозонных и непрямозонных в k -пространстве квантовых точек

4.2.1 Нерезонансное возбуждение время-разрешенной фотолюминесценции

Спектры фотолюминесценции квантовых точек (In,Al)As/AlAs, измеренные при нерезонансном возбуждении носителей в барьерном слое AlAs с шириной запрещенной зоны 2.3 эВ, показаны на Рисунке 4.1. Стационарный спектр (сплошная линия на Рисунке 4.1) имеет максимум на энергии 1.8 эВ. Спектр неоднородно уширен в связи с разбросом по ансамблю таких параметров КТ как размер, форма и состав. Ширина спектра на полувысоте приблизительно равна 200 мэВ. Штриховой линией показан спектр, измерение которого начиналось через 1 нс после лазерного импульса ($t_{\text{delay}} = 1$ нс) и длилось 4 нс ($t_{\text{gate}} = 4$ нс). Максимум спектра приходится на энергию 1.66 эВ, ширина на полувысоте приблизительно равняется 120 мэВ. При больших временах задержки и накопления сигнала ($t_{\text{delay}} = 1000$ нс, $t_{\text{gate}} = 500$ нс) излучение сдвигается к энергии 1.78 эВ, и спектр уширяется до 150 мэВ (штрихпунктирная линия), приблизительно совпадая со стационарным спектром.

Из представленных зависимостей видно, что спектр ФЛ состоит из излучения как минимум двух типов комплексов с кардинально отличающимся временем жизни, причем данные вклады частично перекрываются по спектру. В работах [17,56] наличие таких вкладов в ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs связывалось с наличием в ансамбле как прямозонных, так и непрямозонных в k -пространстве КТ. Эта модель еще раз подтверждается в данной главе на основании детального анализа спектров ФЛ при селективном возбуждении КТ из ансамбля. В результате станет возможным однозначно идентифицировать тип оптических переходов в селективно возбуждаемых полосах ФЛ с целью последующего

изучения свойств прямозонных и непрямозонных КТ, в том числе тонкой структуры уровней экситонов.

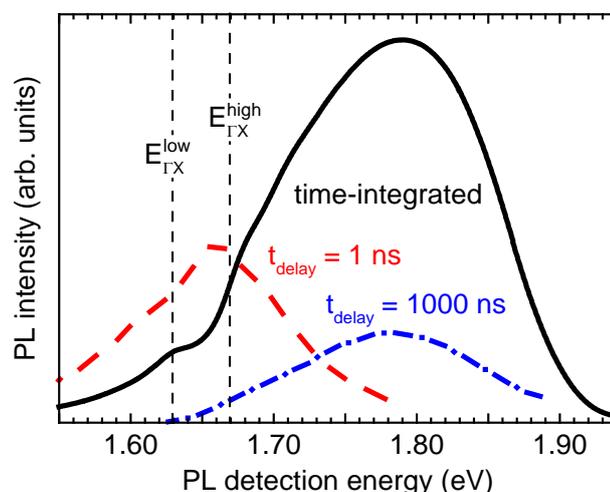


Рисунок 4.1: Спектры ФЛ при нерезонансном возбуждении с энергией $E_{exc} = 3.49$ эВ. Интегральный по времени спектр показан сплошной линией. Штриховой и штрихпунктирной линиями показаны спектры, измеренные через 1 и 1000 нс после лазерного импульса соответственно. Штриховыми вертикальными линиями показаны энергии пересечения Γ - и X -состояний в зоне проводимости: $E_{\Gamma X}^{low}$ и $E_{\Gamma X}^{high}$.

4.2.2 Селективное возбуждение стационарной фотолюминесценции квантовых точек

В данном разделе представлены спектры ФЛ, возбуждаемой как резонансно, так и квазирезонансно, при этом носители генерируются на основные либо возбужденные состояния КТ соответственно. Такое возбуждение ФЛ называют селективным, поскольку оно позволяет выделить из ансамбля группу КТ. Таким образом, при нерезонансном возбуждении носителей в барьерном слое наблюдается спектр ФЛ всего ансамбля КТ (сплошная линия на Рисунке 4.1), в то время как при селективном возбуждении наблюдаются узкие полосы ФЛ (Рисунок 4.3). На Рисунке 4.2 показана зонная структура изучаемых КТ (In,Al)As/AlAs в зависимости от их размера [17]. Основное состояние в валентной зоне вне зависимости от размера КТ располагается в Γ -долине. При относительно маленьком размере КТ основное состояние электронов в зоне

проводимости находится в X -долине, при этом фотовозбуждение экситонов в таких КТ преимущественно происходит через Γ -состояние в силу сравнительно высокой эффективности такого процесса (штрихпунктирная стрелка вверх на Рисунке 4.2). Рекомбинация может происходить как из основного X -состояния электрона (штриховая стрелка вниз), так и из Γ -состояния в течение времени энергетической релаксации электрона в основное X -состояние (штрихпунктирная стрелка вниз). С увеличением размера КТ энергия Γ -состояния в зоне проводимости уменьшается заметно быстрее энергии X -состояния в силу меньшей эффективной массы электрона в Γ -долине. При некоторой энергии ($E_{\Gamma X}$) происходит пересечение Γ - и X -состояний. Энергию $E_{\Gamma X}$ мы будем называть энергией « ΓX -пересечения». С дальнейшим увеличением размера КТ основным состоянием в зоне проводимости становится Γ -состояние, соответствующие оптические переходы показаны сплошными стрелками на Рисунке 4.2. Отметим, что описанная зонная структура согласуется с особенностями время-разрешенных спектров ФЛ, см. предыдущий раздел. Так, экситоны в больших КТ с основным Γ -состоянием электрона (прямые в k -пространстве экситоны, см. низкоэнергетическую полосу ФЛ, показанную штриховой линией на Рисунке 4.1) имеют короткое время жизни порядка наносекунды [56]. Экситоны в относительно маленьких КТ с основным X -состоянием электрона (непрямые в k -пространстве экситоны, см. высокоэнергетическую полосу ФЛ, показанную штрихпунктирной линией на Рисунке 4.1) имеют продолжительное время жизни порядка десяти микросекунд [56].

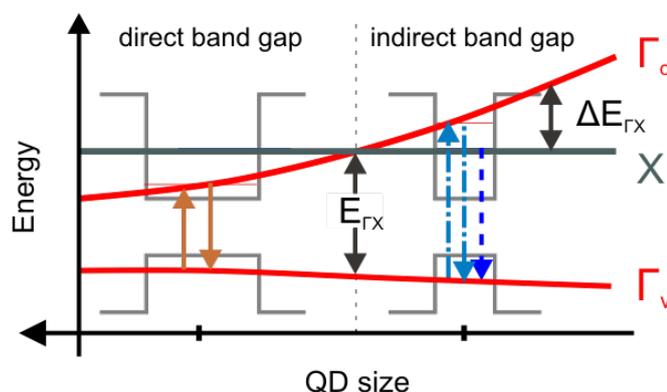


Рисунок 4.2: Схематическое изображение зонной структуры в зависимости от размера КТ. Стрелками показаны вероятные оптические переходы.

На Рисунке 4.3 представлены стационарные спектры ФЛ при селективном возбуждении с $E_{exc} = 1.61 - 1.95$ эВ и спектр при нерезонансном возбуждении носителей в барьерном слое ($E_{exc} = 3.49$ эВ, верхний спектр на Рисунке 4.3 (а)). При $E_{exc} < 1.63$ эВ в спектре ФЛ наблюдается одна полоса, отстоящая от E_{exc} на несколько миллиэлектронвольт. Зависимость энергии данной полосы ФЛ (E_{det}) от E_{exc} показана красными кругами с пометкой D («direct band gap») на Рисунке 4.4. Видно, что стоксов сдвиг ($\Delta E_S = E_{exc} - E_{det}$) для данной полосы существенно не зависит от E_{exc} . Исходя из указанных особенностей и последующего анализа других полос в спектрах ФЛ можно заключить, что полоса D соответствует ФЛ прямых в k -пространстве экситонов. Стоксов сдвиг обусловлен испусканием акустических фононов.

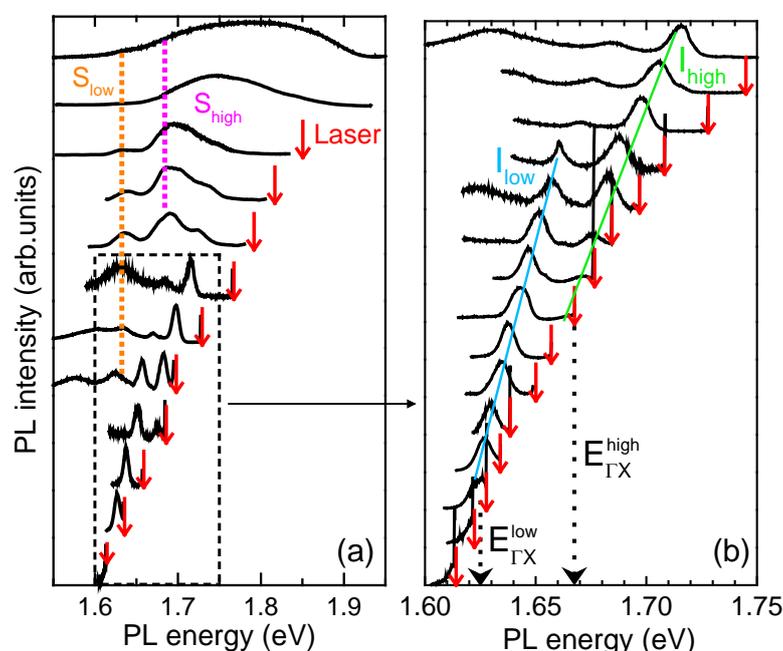


Рисунок 4.3: Спектры ФЛ в зависимости от E_{exc} (показана красной стрелкой). Пунктирными линиями отмечены энергии полос ФЛ S_{low} и S_{high} . На рисунке (b) более детально показан выделенный на рисунке (a) участок. Прямыми сплошными линиями отмечены полосы ФЛ I_{low} и I_{high} . Пунктирными стрелками отмечены энергии «ГХ-пересечения».

При увеличении $E_{exc} > 1.63$ эВ в спектре появляется вторая полоса ФЛ, см. Рисунок 4.3 (b). На Рисунке 4.4, демонстрирующем зависимость энергии различных полос ФЛ от E_{exc} , данной полосе ФЛ соответствуют синие квадраты (I_{low} , «indirect band gap, low energy»). Видно, что для указанной полосы ΔE_S линейно растет с E_{exc} . Зависимость можно объяснить ростом разницы энергий между Γ - и X -состояниями в зоне проводимости ($\Delta E_{\Gamma X}$,

см. Рисунок 4.2). Увеличение $\Delta E_{\Gamma X}$ происходит с уменьшением размера непрямозонных КТ. Ниже зависимость ΔE_S от E_{exc} будет описана теоретически.

С дальнейшим увеличением $E_{exc} > 1.67$ эВ появляется еще одна полоса ФЛ, см. зеленые квадраты на Рисунке 4.4 (I_{high} , «indirect band gap, high energy»). Как и для I_{low} для полосы I_{high} характерна линейная зависимость ΔE_S от E_{exc} . Можно заключить, что указанная полоса ФЛ также соответствует непрямозонным КТ. Получается, что имеются две точки «ГХ-пересечения» в зоне проводимости. Две точки «ГХ-пересечения» могут соответствовать двум подансамблям КТ, отличающимся составом. Кроме того, эффект может быть обусловлен наличием двух типов непрямых экситонов с электронными состояниями в X_z и X_{xy} долинах. Однако, определение природы данного эффекта лежит за рамками настоящей работы.

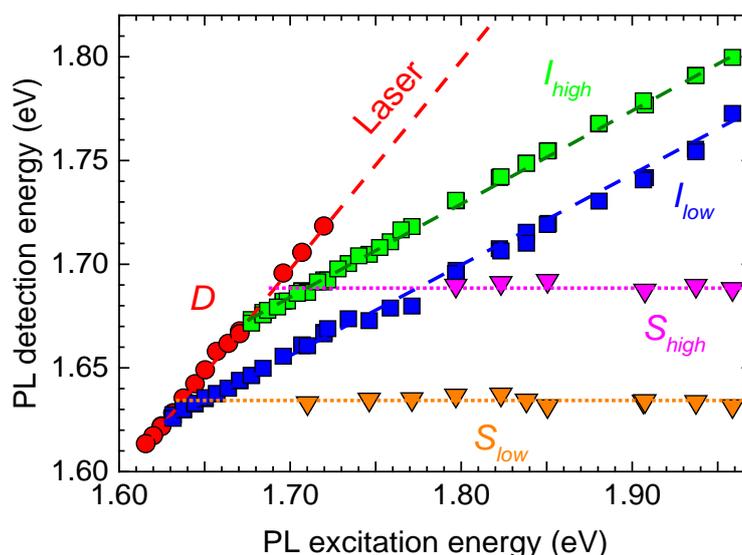


Рисунок 4.4: Энергия различных полос в спектрах ФЛ (см. Рисунок 4.3) в зависимости от E_{exc} (показана красной штриховой линией). Зависимости для каждой полосы ФЛ описаны прямыми.

Как уже было сказано, в случае непрямых экситонов стоксов сдвиг ΔE_S определяется значением $\Delta E_{\Gamma X}$. На Рисунке 4.5 сплошной линией показана рассчитанная зависимость $\Delta E_{\Gamma X}$ от E_{exc} для непрямозонных КТ (In,Al)As/AlAs. Кругами показаны экспериментальные данные (ΔE_S) для КТ I_{low} . Для получения расчетной зависимости смоделирована энергия основного состояния дырок, Г- и X-электронов в КТ (In,Al)As/AlAs в зависимости от размера и состава КТ [17]. Расчет проведен в приближении эффективной массы для простой зоны. Приближение учитывает

напряжение, деформационные потенциалы и непараболичность электронной дисперсии [58]. Также учитывается зависимость энергии Γ - и X -состояний от размера и формы КТ, параметры были получены из данных ФЛ и микроскопии [17]. Кроме того, учитывается состав и его градиент в КТ. Наблюдается хорошее совпадение теории и эксперимента (Рисунок 4.5). Отметим, что при расчете не использовались подгоночные параметры. Таким образом, получено дополнительное подтверждение соответствию полос ФЛ I_{low} и I_{high} непрямозонным КТ.

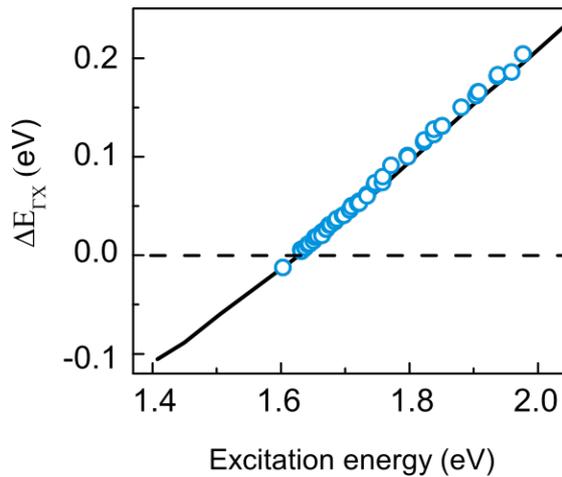


Рисунок 4.5: Измеренная зависимость стоксова сдвига ΔE_S КТ I_{low} (круги) и рассчитанная зависимость (сплошная линия) энергии $\Delta E_{\Gamma X}$ от E_{exc} для непрямозонных КТ.

Помимо вышеупомянутых особенностей в спектрах ФЛ имеется еще один тип полос S_{low} и S_{high} , см. Рисунок 4.3 (а) и 4.4. Полосы имеют энергию около $E_{\Gamma X}^{low}$ и $E_{\Gamma X}^{high}$ и не сдвигаются с E_{exc} . Определение природы данных полос ФЛ лежит за рамками настоящей работы.

4.3 Оптическая ориентация спинов и выстраивание экситонов в прямозонных и непрямозонных в k -пространстве квантовых точках

В предыдущем разделе были идентифицированы полосы ФЛ прямозонных (D) и непрямозонных (I_{low} и I_{high}) КТ. В данном разделе представлены результаты исследования оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов в селективно возбуждаемых из ансамбля КТ D , I_{low} и I_{high} . В результате получены сведения о структуре уровней экситонов и спиновой релаксации.

4.3.1 Спектральная зависимость оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов

На Рисунке 4.6 (a-d) представлены спектры поляризованной ФЛ. Обозначения компонент ФЛ с различной поляризацией, а также выражение для степени циркулярной (ρ_c) и линейной поляризации ФЛ (ρ_L) определены в разделе 1.1. В случае прямозонных КТ наблюдается значительная линейная поляризация $\rho_L \leq 53\%$ при линейно-поляризованном возбуждении (Рисунок 4.6 (a)), данный эффект называют выстраиванием экситонов. Степень циркулярной поляризации ФЛ прямозонных КТ при циркулярно-поляризованном возбуждении (оптическая ориентация) пренебрежимо мала, см. Рисунок 4.6 (c). В непрямозонных КТ I_{high} , напротив, выстраивание экситонов практически отсутствует: $\rho_L \leq 2\%$ (Рисунок 4.6 (b)). При этом наблюдается значительная оптическая ориентация: $\rho_c \leq 53\%$ (Рисунок 4.6 (d)).

Описанные выше эффекты можно качественно описать при учете структуры энергетических состояний экситонов в КТ. Как было описано в разделе 2.1, в случае прямозонных КТ тонкую структуру экситона определяет обменное взаимодействие

электрона и дырки. Тонкая структура оптически активного экситона представляет собой расщепленную на энергию δ_b пару линейно-поляризованных в двух ортогональных направлениях x и y состояний: $|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$ и $|Y\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$. Квант циркулярно-поляризованного света возбуждает суперпозицию состояний $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, когерентность которой теряется за короткое время порядка 10 пс, см. раздел 2.1. В стационарных исследованиях ожидается отсутствие оптической ориентации ФЛ, что согласуется с экспериментом (Рисунок 4.6 (с)). В разделе 4.3.2 из экспериментальных данных будут определено δ_b и, как следствие, время спиновой релаксации экситонов \hbar/δ_b . Теперь рассмотрим возбуждение ФЛ линейно-поляризованным светом. В таком случае возбуждаются «чистые» состояния $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, что позволяет наблюдать выстраивание экситонов (Рисунок 4.6 (а)).

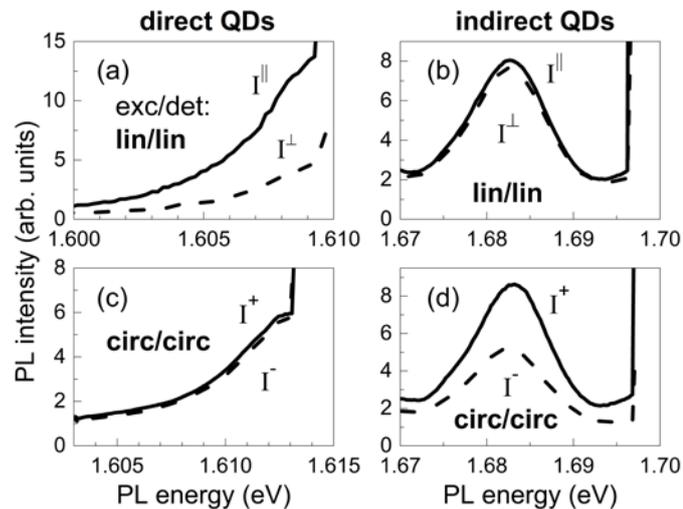


Рисунок 4.6: Спектры линейно- и циркулярно-поляризованной ФЛ прямозонных (а: $E_{exc} = 1.61$ эВ; с: $E_{exc} = 1.614$ эВ) и непрямозонных (b, d: $E_{exc} = 1.70$ эВ) КТ.

Рассмотрим тонкую структуру непрямых экситонов. Теоретически была показана незначительность анизотропного обменного взаимодействия X -электрона с Γ -дыркой в силу слабого перекрытия их волновых функций [57]. В таком случае анизотропное обменное взаимодействие не расщепляет уровни оптически активного экситона, и циркулярно-поляризованное излучение возбуждает «чистые» состояния $|\pm 1\rangle$. В результате ожидается наличие оптической ориентации стационарной ФЛ. Здесь (Рисунок 4.6 (d)) и далее вышеописанные теоретические представления о тонкой структуре непрямых экситонов в КТ экспериментально подтверждаются. Наблюдается и исследуется высокая степень циркулярной поляризации ФЛ непрямозонных КТ.

На Рисунке 4.7 представлена зависимость циркулярной и линейной поляризации ФЛ прямозонных и непрямозонных КТ от энергии возбуждения ФЛ в диапазоне от 1.57 до 1.77 эВ. ρ_L полос ФЛ прямых экситонов в прямозонных и непрямозонных КТ изображена заполненными кругами на Рисунке 4.7. В диапазоне E_{exc} от 1.57 до 1.63 эВ наблюдается постоянная $\rho_L = 50\%$. При $E_{exc} > 1.63$ эВ ρ_L уменьшается с ростом E_{exc} до 10%, что может быть связано со смешиванием Γ - и X -состояний в зоне проводимости, в силу того, что ρ_L ФЛ непрямозонных КТ мала, см. Рисунок 4.6 (b). Данные по оптической ориентации ФЛ прямых экситонов представлены на Рисунке 4.7 полыми кругами. При $E_{exc} < 1.63$ эВ $\rho_c \approx 0$, при $E_{exc} > 1.63$ эВ ρ_c растет с увеличением E_{exc} и достигает 93% при $E_{exc} > 1.75$ эВ. Рост ρ_c может объясняться двумя процессами: Во-первых, как уже было сказано, имеет место смешивание Γ - и X -состояний в зоне проводимости, а ФЛ непрямозонных КТ демонстрирует значительную оптическую ориентацию, см. Рисунок 4.6 (d). Во-вторых, значительную роль может играть сокращение времени жизни прямых экситонов в непрямозонных КТ, за счет термализации экситонов в основное состояние за несколько пикосекунд [59]. Время жизни возбужденного состояния оказывается меньше времени спиновой релаксации экситона \hbar/δ_b , в результате чего достигается значительная степень циркулярной поляризации стационарной ФЛ прямых экситонов в непрямозонных КТ.

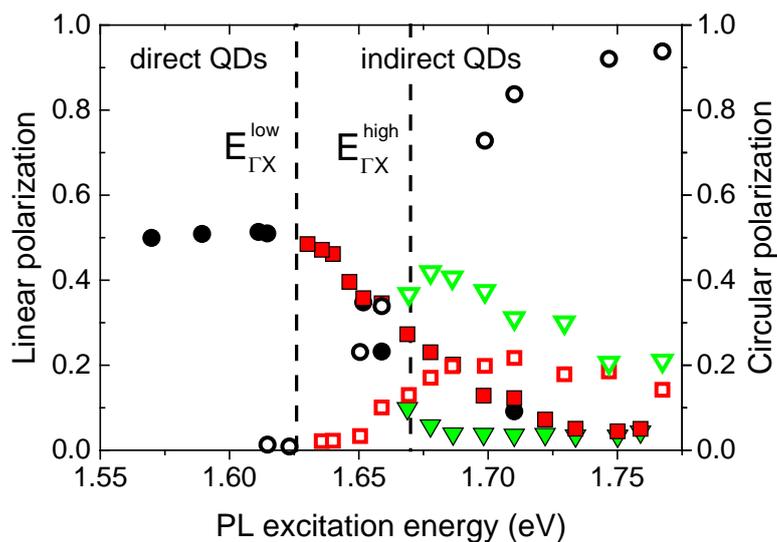


Рисунок 4.7: Оптическая ориентация спинов (полые символы) и выстраивание экситонов (заполненные символы) при различных E_{exc} для полос ФЛ прямых (D : круги) и непрямых (I_{low} : квадраты; I_{high} : треугольники) экситонов.

Обратимся к оптической ориентации и выстраиванию не прямых экситонов. В случае КТ I_{low} (квадраты на Рисунке 4.7) ρ_L падает с 50% до нескольких процентов (см. заполненные квадраты), поскольку с ростом E_{exc} разность энергий $\Delta E_{ГХ}$ растет и, как следствие, эффективность смешивания Г- и X-электронных состояний уменьшается. Выстраивание экситонов I_{high} практически отсутствует (заполненные треугольники). ρ_c ФЛ КТ I_{low} (полые квадраты) с увеличением E_{exc} растет от нескольких процентов при $E_{exc} = 1.63$ эВ до 20% при $E_{exc} = 1.70$ эВ, далее ρ_c уменьшается до 13%. В случае КТ I_{high} с ростом E_{exc} ρ_c (полые треугольники) уменьшается с 40% при $E_{exc} = 1.68$ эВ до 20% при 1.75 эВ. Уменьшение ρ_c ФЛ не прямых экситонов с ростом E_{exc} может быть связано с увеличением энергии, передаваемой кристаллической решетке при энергетической релаксации, что приводит к увеличению числа испускаемых фононов и, как следствие, к более значительной потере спиновой ориентации.

Подводя промежуточные итоги, зависимость оптической ориентации спинов и выстраивания экситонов от энергии возбуждения ФЛ удастся объяснить при учете тонкой структуры прямых и не прямых экситонов в КТ, особенности которой обсуждались в начале данного раздела. Помимо этого, на ход зависимостей существенно влияет смешивание Г- и X-состояний в зоне проводимости.

4.3.2 Анизотропное обменное расщепление состояний прямых в k-пространстве экситонов

В данном разделе экспериментально определена величина анизотропного обменного расщепления δ_b уровней прямых экситонов (см. раздел 2.1) в КТ (In,Al)As/AlAs. На Рисунке 4.8 представлена зависимость выстраивания экситонов и оптической ориентации ФЛ прямозонных КТ в магнитном поле B в геометрии Фарадея. Наблюдается «подавление» выстраивания экситонов магнитным полем: степень линейной поляризации ФЛ с ростом поля уменьшается с 59% до 2% при $B = 10$ Т. При этом магнитное поле «восстанавливает» оптическую ориентацию: степень циркулярной поляризации ФЛ растет с полем от нуля до насыщения на уровне 82%. Сходные магнитные эффекты ранее наблюдались, например, в сверхрешетках GaAs/AlAs [60].

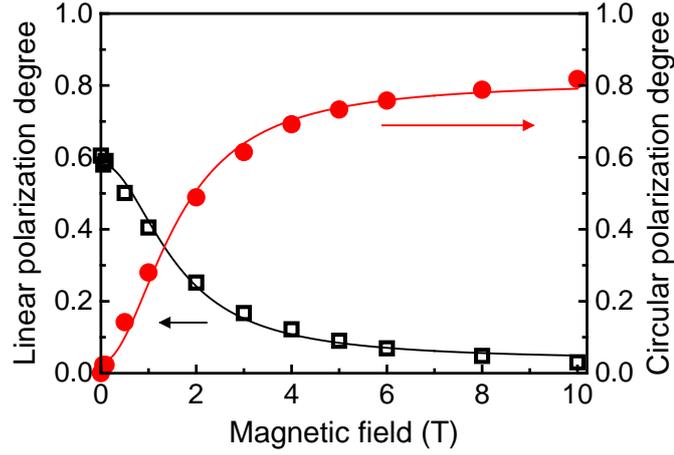


Рисунок 4.8: Зависимость степени линейной поляризации при линейно-поляризованном возбуждении (полые квадраты) и циркулярной поляризации при циркулярно-поляризованном возбуждении (заполненные круги) от магнитного поля в геометрии Фарадея. $E_{exc} = 1.62$ эВ, $E_{det} = 1.618$ эВ. Сплошными линиями показано модельное описание.

Для описания эффектов вновь обратимся к тонкой структуре прямых оптически активных экситонов в КТ. В отсутствие магнитного поля имеется пара линейно-поляризованных в двух ортогональных направлениях состояний: $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, разделенных энергией δ_b . В таком случае эффект выстраивания экситонов наблюдается, а эффект оптической ориентации стационарной ФЛ отсутствует, см. раздел 4.3.1. Когда зеемановское расщепление экситонных состояний $\mu_B g_X B \gg \delta_b$, линейно-поляризованные состояния $|X\rangle$ и $|Y\rangle$ преобразуются в циркулярно-поляризованные состояния $|+1\rangle$ и $|-1\rangle$. μ_B – это магнетон Бора, g_X – g-фактор экситона. Таким образом, с ростом магнитного поля наблюдается возникновение оптической ориентации ФЛ и убывание выстраивания экситонов, см. раздел 4.3.1.

Зависимости линейной и циркулярной поляризации от магнитного поля (Рисунок 4.8) были описаны функциями [60]:

$$\rho_l(B) = \rho_l^0 \frac{\delta_b^2}{\delta_b^2 + (\mu_B g_X B)^2}, \quad (4.1)$$

$$\rho_c(B) = \rho_c^{max} \frac{(\mu_B g_X B)^2}{\delta_b^2 + (\mu_B g_X B)^2}, \quad (4.2)$$

где ρ_l^0 – степень линейной поляризации в нулевом поле, ρ_c^{max} – степень циркулярной поляризации, которая достигается при насыщении в больших полях. Компоненту g-фактора экситона по оси роста КТ можно выразить через g-факторы электрона и тяжелой дырки (компоненты по оси роста КТ): $|g_X| = |g_{hh} - g_e|$. В КТ (In,Al)As/AlAs $g_{hh} = 2.43$,

$g_e = -0.2$ [56], в результате получаем $g_X = 2.63$. При описании экспериментальных данных зависимостями (4.1) и (4.2) (см. Рисунок 4.8) получено $\delta_b = 260 \pm 10$ мкэВ, что соответствует полуширинам кривых $B_{1/2} = 3.1 \pm 0.15$ Т. Полученное значение анизотропного обменного расщепления светлых прямых экситонов согласуется с результатами исследования одиночных КТ InAs/AlAs в работе [61]: $\delta_b = 100 - 300$ мкэВ.

4.3.3 Спиновая релаксация электронов в непрямозонных в k-пространстве квантовых точках

С целью исследования спиновой релаксации в непрямозонных КТ (In,Al)As/AlAs (I_{high}) в данном разделе рассмотрена оптическая ориентация ФЛ в магнитном поле в геометрии Фойхта и Фарадея. На Рисунке 4.9 представлены магнитополевые зависимости циркулярной поляризации полосы ФЛ $I_{high} \cdot \rho_c$ достигает 33% в нулевом магнитном поле. При приложении магнитного поля в геометрии Фойхта (Рисунок 4.9, полые квадраты) наблюдается эффект Ханле. Кривая деполяризации ФЛ описывается контуром Лоренца с полушириной 3.2 мТ. При приложении магнитного поля в геометрии Фарадея (Рисунок 4.9, заполненные круги) наблюдается увеличение циркулярной поляризации ФЛ вплоть до 89%. Данные описываются контуром Лоренца с полушириной 3.8 мТ. Отметим, что минимум поляризации достигается при $B = -0.45$ мТ, что объясняется динамической поляризацией ядер [18]: На электронные спины действует суммарное поле, включающее в себя внешнее магнитное поле и эффективное ядерное поле, причем при одном знаке внешнего поля ядерное поле с ним складывается, а при другом – вычитается.

Отметим, что полуширины зависимостей циркулярной поляризации от магнитного поля в геометриях Фойхта и Фарадея сопоставимы: 3.2 и 3.8 мТ. Кроме того, в продольном поле степень циркулярной поляризации восстанавливается приблизительно в три раза: с 33 до 89%. Совокупность данных особенностей означает, что имеет место релаксация спинов во флуктуационных эффективных магнитных полях в режиме длинного времени корреляции (то есть в «замороженных» полях) [48], см. разделы 3.1 и

3.3.3. В данном случае релаксация электронных спинов происходит в ядерных флуктуационных полях [48], поскольку это единственный механизм спиновой релаксации электронов в КТ (в отсутствие парамагнитных центров), протекающий в режиме «замороженных» флуктуационных полей. Для пояснения заявленного тезиса рассмотрим альтернативный механизм спиновой релаксации в КТ - релаксацию электронных спинов на флуктуациях спина тяжелой дырки в экситоне. В таком случае флуктуационное поле направлено по оси роста КТ, в результате чего механизм релаксации спинов на хаотично направленных «замороженных» флуктуациях (в различных КТ из ансамбля) не реализуется.

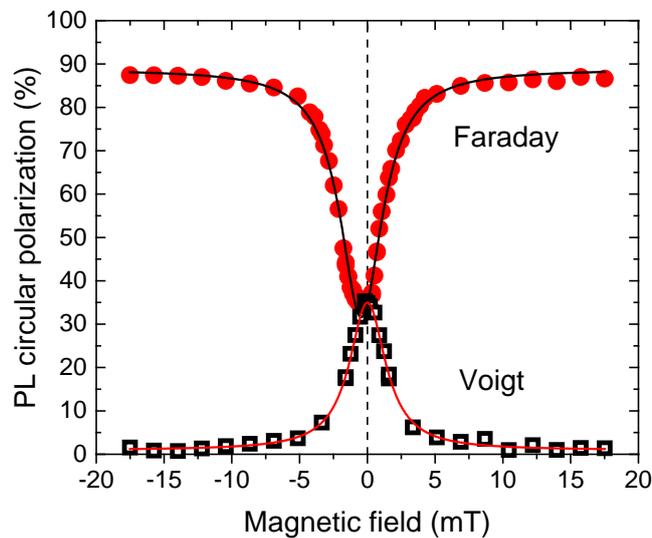


Рисунок 4.9: Зависимость степени циркулярной поляризации ФЛ при циркулярно-поляризованном возбуждении с $E_{exc} = 1.698$ эВ от магнитного поля в геометрии Фойхта (полые квадраты) и Фарадея (заполненные круги). $E_{det} = 1.683$ эВ. Сплошными линиями показано описание экспериментальных данных контурами Лоренца.

Напомним, что в случае «замороженных» флуктуационных полей для уменьшения (увеличения) ρ_c ФЛ поперечному (продольному) внешнему магнитному полю необходимо преодолеть флуктуационное поле Δ_b , см. раздел 3.3.3. Таким образом, Δ_b можно оценить по полуширине контуров Лоренца в 1.75 ± 0.15 мТ (половина от ширины контуров на полувысоте).

Из равенства полуширин зависимостей циркулярной поляризации от магнитного поля в геометриях Фойхта и Фарадея также можно заключить, что за поляризацию отвечает спин квазичастицы с изотропным g -фактором, то есть спин электрона, а не экситона. Исходя из этого можно сделать вывод о малости не только анизотропного обменного

взаимодействия в непрямых экситонах, но и изотропного обменного взаимодействия. Оценки соответствующих расщеплений уровней δ_0 и δ_b приведены в конце данного раздела.

Теперь рассмотрим более подробно восстановление ρ_c в 3 раза в магнитном поле в геометрии Фарадея. «Замороженные» флуктуационные ядерные поля имеют случайную ориентацию, то есть имеется изотропное распределение направлений таких полей в ансамбле КТ. В результате после одного периода ларморовской прецессии электронных спинов в ядерных флуктуационных полях в среднем сохраняется 1/3 спиновой ориентации электронов [48]. Ядерные флуктуационные поля сохраняют/частично сохраняют спиновую ориентацию электронов в случаях, когда спины расположены вдоль поля/имеют ненулевую проекцию на направление поля. Отметим, что 1/3 средней спиновой поляризации электронов (в отсутствие дополнительных механизмов спиновой релаксации) сохраняется в течение всего времени жизни экситона, которое в нашей структуре имеет порядок 10 мкс [56]. При наличии продольного внешнего магнитного поля заметно превосходящего Δ_b спиновая релаксация, «стирающая» 2/3 спиновой поляризации электронов, подавляется, в результате чего ρ_c восстанавливается в 3 раза.

Оценим величину изотропного (δ_0) и анизотропного обменного расщепления (δ_b) непрямых оптически активных экситонов в КТ (In,Al)As/AlAs. Выше показано, что изотропное обменное взаимодействие мало, поскольку поперечное магнитное поле порядка Δ_b эффективно смешивает состояния оптически активных и неактивных экситонов. Также, показано, что анизотропное обменное расщепление не разрушает оптическую ориентацию ФЛ. Из вышеуказанного можно сделать вывод, что δ_0 и δ_b не превосходят зеемановского расщепления электронных состояний во флуктуационном ядерном поле $\Delta_b = 1.75$ мТ: $\delta_0, \delta_b < \mu_B g_e \Delta_b$. С учетом того, что для электронов X долины в КТ (In,Al)As/AlAs $g_e = 2$ [56], получаем оценку «сверху» для обменных расщеплений: $\delta_0, \delta_b < 0.2$ мкэВ.

4.4 Промежуточные итоги главы 4

- Экспериментально показано, что в ансамбле КТ (In,Al)As/AlAs сосуществуют прямозонные и непрямозонные в k -пространстве КТ, к которым можно обращаться независимо, используя селективное возбуждение ФЛ. Произведено детальное исследование спектров ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs в зависимости от длины волны возбуждающего света, в результате чего были идентифицированы полосы ФЛ прямозонных и непрямозонных КТ. Обнаружено, что смешивание Γ - и X -состояний электронов в зоне проводимости оказывает существенное влияние на поляризационные свойства ФЛ.
- Экспериментально определено, что анизотропное обменное расщепление состояний оптически активных экситонов в прямозонных в k -пространстве КТ (In,Al)As/AlAs составляет 260 ± 10 мкэВ. Данное расщепление вызывает быструю спиновую релаксацию экситона за пикосекундное время, что приводит к отсутствию оптической ориентации стационарной ФЛ. При этом наблюдается выстраивание экситонов, чему способствует анизотропное обменное расщепление.
- Экспериментально показано, что в непрямозонных в k -пространстве КТ (In,Al)As/AlAs расщепления состояний, обусловленные изотропным обменным взаимодействием и анизотропным обменным взаимодействием в оптически активном экситоне, пренебрежимо малы ($\delta_0, \delta_b < 0.2$ мкэВ). В результате наблюдается значительная оптическая ориентация стационарной ФЛ, чему способствует долгое время спиновой релаксации электронов, превышающее время жизни носителей 10 пс. Спиновая релаксация электронов при этом определяется «замороженными» флуктуациями сверхтонкого ядерного поля с характерным значением 1.75 ± 0.15 мТ.

Заключение

- Экспериментально исследованы характерные особенности отрицательной циркулярной поляризации фотолюминесценции X^- трионов в ансамбле квантовых точек $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$. В согласии с имеющимися в литературе моделями происходит накачка спинов резидентных электронов, проявляющаяся в увеличении ОЦП ФЛ с мощностью возбуждения. Измерена зависимость интенсивности и циркулярной поляризации ФЛ от энергии фотонов возбуждающего света. При уменьшении стоксова сдвига до 130 мэВ циркулярная поляризация ФЛ меняет знак и из отрицательной становится положительной. Наличие анизотропного обменного взаимодействия электронов и дырок в оптически активных экситонах проявляется в немонотонной зависимости ОЦП ФЛ от магнитного поля в геометрии Фарадея. Когда зеемановское расщепление экситонных состояний становится больше анизотропного обменного расщепления, происходит уменьшение ОЦП, что подтверждает необходимость анизотропного обменного взаимодействия для формирования ОЦП.
- Экспериментально показано, что в динамике ФЛ X^- трионов в ансамбле КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ сосуществуют относительно быстрое (0.5 нс) и долгое (35 нс) времена затухания сигнала. «Быстрому» и «затяжному» вкладам в интенсивность ФЛ соответствуют два вклада в циркулярную поляризацию ФЛ с временами затухания 1.6 и 17 нс соответственно. Поляризация обоих вкладов отрицательна, что свидетельствует о наличии в КТ резидентных электронов.
- Экспериментально показано, что в динамике ОЦП ФЛ X^- трионов в ансамбле КТ $\text{InP}/(\text{In,Ga})\text{P}$ в магнитном поле в геометрии Фойхта отсутствуют осцилляции. При этом с ростом поля поляризация ФЛ уменьшается до нуля. Показано, что отсутствие осцилляций вызвано следующими обстоятельствами: (i) Спиновая динамика X^- триона в основном состоянии определяется тяжелой дыркой. Компонента g -фактора тяжелой дырки в плоскости КТ мала. (ii) Деполяризация ФЛ X^- трионов определяется ларморовской

прецессией спинов электронов. Спиновая ориентация электронов влияет исключительно на поляризацию спинов дырок в основном состоянии комплекса.

- Экспериментально показано, что в случае X^- трионов в ансамбле КТ InP/(In,Ga)P кривая Ханле уширяется в 2.3 раза при наличии динамической поляризации ядер. Ядерное поле с характерной величиной 15 мТ, действующее на спины электронов, оказывается фиксированным вдоль оси роста КТ. Фиксация ядерного поля обусловлена ядерным квадрупольным взаимодействием, наведенным деформацией.
- Экспериментально исследованы магнитополевые зависимости оптической ориентации ФЛ заряженных экситонов в КТ InP/(In,Ga)P. Исследования проводились как в стационарном режиме, так и с разрешением по времени. Изучались особенности, возникающие при наличии и в отсутствие динамической поляризации ядер, причем ДПЯ наблюдается только при наличии в исследованных КТ резидентных электронов (случай фотовозбуждения X^- трионов). Показано, что ядерное квадрупольное взаимодействие делает возможной ДПЯ в нулевом внешнем магнитном поле. Кроме того, ЯКВ приводит к фиксации поля Оверхаузера вдоль квадрупольной оси, близкой к оси роста КТ. Последнее обстоятельство, а также наличие двух вкладов в ФЛ (X^- и X^+ трионов) существенным образом влияет на динамику циркулярной поляризации ФЛ в поперечном магнитном поле. В частности, наблюдаются осцилляции циркулярной поляризации не относительно нуля поляризации, а относительно некоторого монотонно затухающего во времени вклада. Причем наличие монотонно затухающего вклада в поляризацию обусловлено ФЛ X^- трионов. Таким образом, показано, что при наличии ЯКВ в КТ InP/(In,Ga)P происходит стабилизация динамически поляризованных спинов ядер и спинов электронов.
- Из экспериментально измеренных стационарных магнитополевых зависимостей оптической ориентации ФЛ КТ InP/(In,Ga)P (в отсутствие ДПЯ) было определено, что имеет место релаксация спинов электронов в «замороженных» флуктуациях ядерного поля. Время-разрешенные зависимости циркулярной поляризации ФЛ заряженных экситонов были описаны теоретическими кривыми, соответствующими случаю «замороженных» флуктуаций. Для диапазона относительно больших магнитных полей (от 60 до 320 мТ) было достигнуто хорошее совпадение теории и эксперимента. Причиной расхождения теории и эксперимента в диапазоне полей от 0 до 60 мТ может являться

наличие вклада X^- трионов в поляризацию ФЛ, не входящего в область применимости теории, в то время как вклад X^+ трионов теорией описывается.

- Экспериментально показано, что в ансамбле КТ (In,Al)As/AlAs сосуществуют прямозонные и непрямозонные в k -пространстве КТ, к которым можно обращаться независимо, используя селективное возбуждение ФЛ. Произведено детальное исследование спектров ФЛ КТ (In,Al)As/AlAs в зависимости от длины волны возбуждающего света, в результате чего были идентифицированы полосы ФЛ прямозонных и непрямозонных КТ. Обнаружено, что смешивание Γ - и X -состояний электронов в зоне проводимости оказывает существенное влияние на поляризационные свойства ФЛ.

- Экспериментально определено, что анизотропное обменное расщепление состояний оптически активных экситонов в прямозонных в k -пространстве КТ (In,Al)As/AlAs составляет 260 ± 10 мкэВ. Данное расщепление вызывает быструю спиновую релаксацию экситона за пикосекундное время, что приводит к отсутствию оптической ориентации стационарной ФЛ. При этом наблюдается выстраивание экситонов, чему способствует анизотропное обменное расщепление.

- Экспериментально показано, что в непрямозонных в k -пространстве КТ (In,Al)As/AlAs расщепления состояний, обусловленные изотропным обменным взаимодействием и анизотропным обменным взаимодействием в оптически активном экситоне, пренебрежимо малы ($\delta_0, \delta_b < 0.2$ мкэВ). В результате наблюдается значительная оптическая ориентация стационарной ФЛ, чему способствует долгое время спиновой релаксации электронов, превышающее время жизни носителей 10 пс. Спиновая релаксация электронов при этом определяется «замороженными» флуктуациями сверхтонкого ядерного поля с характерным значением 1.75 ± 0.15 мТ.

Основные результаты диссертационной работы изложены в публикациях:

- [A1] Nekrasov S. V., Kusrayev Yu. G., Akimov I. A., Korenev V. L., Langer L., Salewski M. Negative circular polarization dynamics in InP/InGaP quantum dots // J. Phys.: Conf. Ser. – 2016. – Vol. 741. – P. 012189.
- [A2] Некрасов С. В., Кусраев Ю. Г., Акимов И. А., Langer L., Kotur M., Яковлев Д. Р., Bayer M. Спиновая динамика отрицательно заряженных экситонов в квантовых точках InP/(In,Ga)P в магнитном поле // ФТТ. – 2020. – Т. 62, В. 11. – С. 1816.
- [A3] Nekrasov S. V., Akimov I. A., Kusrayev Yu. G., Yakovlev D. R., Bayer M. Effect of nuclear quadrupole interaction on spin beats in photoluminescence polarization dynamics of charged excitons in InP/(In,Ga)P quantum dots // Phys. Rev. B. – 2019. – Vol. 100, no. 23. – P. 235415.
- [A4] Rautert J., Shamirzaev T. S., Nekrasov S. V., Yakovlev D. R., Klenovský P., Kusrayev Yu. G., Bayer M. Optical orientation and alignment of excitons in direct and indirect band gap (In,Al)As/AlAs quantum dots with type-I band alignment // Phys. Rev. B. – 2019. – Vol. 99, no. 19. – P. 195411.

Я признателен своему научному руководителю Юрию Георгиевичу Кусраеву за неоценимую помощь. Юрий Георгиевич всегда находил время для обсуждений, в которых мы провели многие часы. Я благодарен Владимиру Львовичу Кореневу за содержательные обсуждения моих научных результатов и вопросов физики полупроводников. Выражаю глубокую признательность Младену Котуру и Рослану Ивановичу Джиеву за то, что учили эксперименту. Благодарен Николаю Полетаеву, Виктору Федоровичу Сапеге, Григорию Димитриеву, Бароту Рахмоновичу Намозову и Петру Евгеньевичу Паку за огромную помощь при создании установки, на которой была получена основная часть материалов диссертации. Также хочу сказать спасибо всем сотрудникам нашей лаборатории, с которыми я имею удовольствие работать по соседству.

Благодарю Манфреда Байера и Дмитрия Робертовича Яковлева за возможность проведения экспериментов в Техническом университете Дортмунда. Ценность данных исследований для диссертационной работы сложно переоценить. В ходе проведения тех исследований мне очень помогли Илья Акимов, Лукас Лангер и Маттиас Залевский. Спасибо Жанине Раутерт и Тимуру Сезгировичу Шамирзаеву за совместные плодотворные исследования. Кроме того, передаю привет всем коллегам, с которыми я познакомился в Дортмундском университете.

Наконец, хочу поблагодарить свою семью и друзей за огромную поддержку.

Список литературы

- [1] Wood R. W., Ellett A. Polarized Resonance Radiation in Weak Magnetic Fields // *Phys. Rev.* – 1924. – Vol. 24, no. 3. – P. 243.
- [2] Hanle W. Über magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz // *Z. Phys.* – 1924. – Vol. 30. – P. 93.
- [3] Brossel J., Kastler A. La détection de la résonance magnétique des niveaux excités: L'effect de dépolarisation des radiations de résonance optique et de fluorescence // *C. r. hebd. Acad. Sci.* – 1949. – Vol. 229. – P. 1213.
- [4] Kastler A. Optical Methods for Studying Hertzian Resonances // *Science.* – 1967. – Vol. 158, no. 3798. – P. 214.
- [5] Lampel G. Nuclear Dynamic Polarization by Optical Electronic Saturation and Optical Pumping in Semiconductors // *Phys. Rev. Lett.* – 1968. – Vol. 20, no. 10. – P. 491.
- [6] Wolf S. A., Awschalom D. D., Buhrman R. A. et al. Spintronics: a spin-based electronics vision for the future // *Science.* – 2001. – Vol. 294, no. 5546. – P. 1488.
- [7] Marie X., Urbaszek B., Krebs O., Amand T. Exciton spin dynamics in semiconductor quantum dots, in *Spin Physics in Semiconductors* / Edited by M. I. Dyakonov. – Berlin: Springer, 2008. – Chap. 4. – P. 91.
- [8] Bracker A. S., Gammon D., Korenev V. L. Fine structure and optical pumping of spins in individual semiconductor quantum dots // *Semicond. Sci. Technol.* – 2008. – Vol. 23. – P. 114004.
- [9] Pikus G. E., Titkov A. N. Spin relaxation under optical orientation in semiconductors, in *Optical Orientation* / Edited by F. Meier, B. Zakharchenya. – Amsterdam: North-Holland, 1984. – Chap. 3. – P. 73.
- [10] Khaetskii A. V., Nazarov Yu. V. Spin relaxation in semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2000. – Vol. 61. – P. 12639.

- [11] Walter G., Holonyak N., Ryou J. H., Dupuis R. D. Room-temperature continuous photopumped laser operation of coupled InP quantum dot and InGaP quantum well InP–InGaP–In(AlGa)P–InAlP heterostructures // *Appl. Phys. Lett.* – 2001. – Vol. 79, no. 13. – P. 1956.
- [12] Zundel M. K., Jin-Phillipp N. Y., Phillipp F., Eberl K., Riedl T., Fehrenbacher E., Hangleiter A. Red-light-emitting injection laser based on InP/GaInP self-assembled quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* – 1998. – Vol. 73, no. 13. – P. 1784.
- [13] Porsche J., Ost M., Riedl T., Hangleiter A., Scholz F. Lasing from excited states in self-assembled InP/GaInP quantum islands // *Mater. Sci. Eng. B.* – 2000. – Vol. 74. – P. 263.
- [14] Zwiller V., Aichele T., Seifert W., Persson J., Benson O. Generating visible single photons on demand with single InP quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* – 2003. – Vol. 82, no. 9. – P. 1509.
- [15] Ugur A., Kremling S., Hatami F., Höfling S., Worschech L., Forchel A., Ted Masselink W. Single-photon emitters based on epitaxial isolated InP/InGaP quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – Vol. 100, no. 2. – P. 023116.
- [16] Shamirzaev T. S., Gilinsky A. M., Bakarov A. K., Toropov A. I., Ténne D. A., Zhuravlev K. S., von Borczyskowski C., Zahn D. R. T. Millisecond photoluminescence kinetics in a system of direct-bandgap InAs quantum dots in an AlAs matrix // *JETP Lett.* – 2003. – Vol. 77. – P. 389.
- [17] Shamirzaev T. S., Nenashev A. V., Gutakovskii A. K., Kalagin A. K., Zhuravlev K. S., Larsson M., Holtz P. O. Atomic and energy structure of InAs/AlAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2008. – Vol. 78, no. 8. – P. 085323.
- [18] Fleisher V. G., Merkulov I. A. Optical orientation of the coupled electron-nuclear spin system of a semiconductor, in *Optical Orientation* / Edited by F. Meier, B. Zakharchenya. – Amsterdam: North-Holland, 1984. – Chap. 5. – P. 173.
- [19] Kapaldo J., Rouvimov S., Merz J. L., Oktyabrsky S., Blundell S. A., Bert N., Brunkov P., Kalyuzhnyy N. A., Mintairov S. A., Nekrasov S., Saly R., Vlasov A. S., Mintairov A. M. Ga-In intermixing, intrinsic doping, and Wigner localization in the emission spectra of self-organized InP/GaInP quantum dots // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2016. – Vol. 49, no. 47. – P. 475301.

- [20] Hessman D., Persson J., Pistol M-E., Pryor C., Samuelson L. Electron accumulation in single InP quantum dots observed by photoluminescence // *Phys. Rev. B.* – 2001. – Vol. 64, no. 23. – P. 233308.
- [21] Pryor C., Pistol M-E., Samuelson L. Electronic structure of strained InP/Ga_{0.51}In_{0.49}P quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 1997. – Vol. 56, no. 16. – P. 10404.
- [22] Ivchenko E. L., Pikus G. E. Superlattices and Other Heterostructures. – Berlin: Springer, 1997.
- [23] Paillard M., Marie X., Renucci P., Amand T., Jbeli A., Gérard J. M. Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 2001. – Vol. 86, no. 8. – P. 1634.
- [24] Bayer M., Ortner G., Stern O., Kuther A., Gorbunov A. A., Forchel A., Hawrylak P., Fafard S., Hinzer K., Reinecke T. L., Walck S. N., Reithmaier J. P., Klopff F., Schäfer F. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2002. – Vol. 65, no. 19. – P. 195315.
- [25] van Kesteren H. W., Cosman E. C., van der Poel W. A. J. A., Foxon C. T. Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells // *Phys. Rev. B.* – 1990. – Vol. 41, no. 8. – P. 5283.
- [26] Gammon D., Snow E. S., Shanabrook B.V., Katzer D. S., Park D. Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 1996. – Vol. 76, no. 16. – P. 3005.
- [27] Yu H., Lycett S., Roberts C., Murray R. Time resolved study of self-assembled InAs quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* – 1996. – Vol. 69. – P. 4087.
- [28] Bracker A. S., Stinaff E. A., Gammon D., Ware M. E., Tischler J. G., Shabaev A., Efros Al. L., Park D., Gershoni D., Korenev V. L., Merkulov I. A. Optical Pumping of the Electronic and Nuclear Spin of Single Charge-Tunable Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 2005. – Vol. 94, no. 4. – P. 047402.
- [29] Weisbuch C., Miller R. C., Dingle R., Gossard A.C., Wiegmann W. Intrinsic radiative recombination from quantum states in GaAs-Al_xGa_{1-x}As multi-quantum well structures // *Solid State Commun.* – 1981. – Vol. 37, no. 3. – P. 219.
- [30] Джиоев Р. И., Захарченя Б. П., Коренев В. Л., Пак П. Е., Винокуров Д. А., Коваленков О. В., Тарасов И. С. Оптическая ориентация экситонов, связанных на донорах, в квантово-размерных островах InP/InGaP // *ФТТ.* – 1998. – В. 9, Т. 40. – С. 1745.

- [31] Kalevich V. K., Merkulov I. A., Shiryaev A. Yu., Kavokin K. V., Ikezawa M., Okuno T., Brunkov P. N., Zhukov A. E., Ustinov V. M., Masumoto Y. Optical spin polarization and exchange interaction in doubly charged InAs self-assembled quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2005. – Vol. 72, no. 4. – P. 045325.
- [32] Cortez S., Krebs O., Laurent S., Senes M., Marie X., Voisin P., Ferreira R., Bastard G., Gérard J-M., Amand T. Optically Driven Spin Memory in n-Doped InAs-GaAs Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 2002. – Vol. 89, no. 20. – P. 207401.
- [33] Ikezawa M., Pal B., Masumoto Y., Ignatiev I. V., Verbin S. Y., Gerlovin I. Ya. Submillisecond electron spin relaxation in InP quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2005. – Vol. 72, no. 15. – P. 153302.
- [34] Laurent S., Senes M., Krebs O., Kalevich V. K., Urbaszek B., Marie X., Amand T., Voisin P. Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled InAs/GaAs quantum dots under nonresonant optical excitation // *Phys. Rev. B.* – 2006. – Vol. 73, no. 23. – P. 235302.
- [35] Lombez L., Braun P.-F., Marie X., Renucci P., Urbaszek B., Amand T., Krebs O., Voisin P. Electron spin quantum beats in positively charged quantum dots: Nuclear field effects // *Phys. Rev. B.* – 2007. – Vol. 75, no. 19. – P. 195314.
- [36] Yugova I. A., Gerlovin I. Ya., Davydov V. G., Ignatiev I. V., Kozin I. E., Ren H. W., Sugisaki M., Sugou S., Masumoto Y. Fine structure and spin quantum beats in InP quantum dots in a magnetic field // *Phys. Rev. B.* – 2002. – Vol. 66, no. 23. – P. 235312.
- [37] Dyakonov M. I., Perel V. I. Theory of Optical Spin Orientation of Electrons and Nuclei in Semiconductors, in *Optical Orientation* / Edited by F. Meier, B. Zakharchenya. – Amsterdam: North-Holland, 1984. – Chap. 2. – P. 11.
- [38] Sirenko A. A., Ruf T., Kurtenback A., Eberl K. Spin-Flip Raman Scattering in InP/InGaP Quantum Dots // *23rd Int. Conf. Phys. Semicond., Berlin.* – 1996. – V. 2. – P. 1385.
- [39] Marie X., Amand T., Le Jeune P., Pillard M., Renucci P., Golub L. E., Dymnikov V. D., Ivchenko E. L. Hole spin quantum beats in quantum-well structures // *Phys. Rev. B.* – 1999. – Vol. 60, no.8. – P. 5811.
- [40] Flissikowski T., Akimov I. A., Hundt A., Henneberger F. Single-hole spin relaxation in a quantum dot // *Phys. Rev. B.* – 2003. – Vol. 68, no. 16. – P. 161309(R).

- [41] Koudinov A. V., Akimov I. A., Kusrayev Yu. G., Henneberger F. Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2004. – Vol. 70, no. 24. – P. 241305(R).
- [42] Dzhioev R. I., Korenev V. L. Stabilization of the Electron-Nuclear Spin Orientation in Quantum Dots by the Nuclear Quadrupole Interaction // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – Vol. 99. – P. 037401.
- [43] Slichter C. P. Principles of Magnetic Resonance. – Berlin: Springer, 1990. – 658 p.
- [44] Kurtenbach A., Eberl K., Shitara T. Nanoscale InP islands embedded in InGaP // *Appl. Phys. Lett.* – 1995. – Vol. 66. – P. 361.
- [45] Chekhovich E. A., Makhonin M. N., Skiba-Szymanska J., Krysa A. B., Kulakovskii V. D., Skolnick M. S., Tartakovskii A. I. Dynamics of optically induced nuclear spin polarization in individual InP/Ga_xIn_{1-x}P quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Vol. 81, no. 24. – P. 245308.
- [46] Heberle A. P., Baumberg J. J., Kohler K. Ultrafast Coherent Control and Destruction of Excitons in Quantum Wells // *Phys. Rev. Lett.* – 1995. – Vol. 75. – P. 2598.
- [47] Amand T., Marie X., Le Jeune P., Brousseau M., Robart D., Barrau J., Planel R. Spin Quantum Beats of 2D Excitons // *Phys. Rev. Lett.* – 1997. – Vol. 78. – P. 1355.
- [48] Merkulov I. A., Efros Al. L., Rosen M. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2002. – Vol. 65, no. 20. – P. 205309.
- [49] Sypererek M., Yakovlev D. R., Yugova I. A., Misiewicz J., Jetter M., Schulz M., Michler P., Bayer M. Electron and hole spins in InP/(Ga,In)P self-assembled quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2012. – Vol. 86, no. 12. – P. 125320.
- [50] Volkov O. V., Kukushkin I. V., Kulakovskii D. V., von Klitzing K., Eberl K. Bistable Charge States in a Photoexcited Quasi-Two-Dimensional Electron-Hole System // *JETP Lett.* – 2000. – Vol. 71. – P. 322.
- [51] Ware M. E., Stinaff E. A., Gammon D., Doty M. F., Bracker A. S., Gershoni D., Korenev V. L., Bădescu S.C., Lyanda-Geller Y., Reinecke T. L. Polarized Fine Structure in the Photoluminescence Excitation Spectrum of a Negatively Charged Quantum Dot // *Phys. Rev. Lett.* – 2005. – Vol. 95. – P. 177403.
- [52] Lösche A. Kerninduktion. – Berlin: veb Deutscher Verlag der Wissenschaften, 1957.
- [53] Awschalom D. D., Flatté M. E. Challenges for semiconductor spintronics // *Nat. Phys.* – 2007. – Vol. 3. – P. 153.

- [54] Shamirzaev T. S., Debus J., Abramkin D. S., Dunker D., Yakovlev D. R., Dmitriev D. V., Gutakovskii A. K., Braginsky L. S., Zhuravlev K. S., Bayer M. 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. – Vol. 84, no. 15. – P. 155318.
- [55] Ivanov V. Yu., Shamirzaev T. S., Yakovlev D. R., Gutakovskii A. K., Owczarczyk Ł., Bayer M. Optically detected magnetic resonance of photoexcited electrons in (In,Al)As/AlAs quantum dots with indirect band gap and type-I band alignment // *Phys. Rev. B.* – 2018. – Vol. 97, no. 24. – P. 245306.
- [56] Debus J., Shamirzaev T. S., Dunker D., Sapega V. F., Ivchenko E. L., Yakovlev D. R., Toropov A. I., Bayer M. Spin-flip Raman scattering of the Γ -X mixed exciton in indirect band gap (In,Al)As/AlAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2014. – Vol. 90, no. 12. – P. 125431.
- [57] Bir G. L., Pikus G. E. *Symmetry and Strain-Induced Effects in Semiconductors.* – New York: Wiley, 1974.
- [58] Kane O. E. Band structure of indium antimonide // *J. Phys. Chem. Solids.* – 1957. – Vol. 1. – P. 249.
- [59] Shamirzaev T. S., Abramkin D. S., Nenashev A. V., Zhuravlev K. S., Trojánek F., Dzurňák B., Malý P. Carrier dynamics in InAs/AlAs quantum dots: lack in carrier transfer from wetting layer to quantum dots // *Nanotechnology.* – 2010. – Vol. 21, no. 15. – P. 155703.
- [60] Dzhioev R. I., Gibbs H. M., Ivchenko E. L., Khitrova G., Korenev V. L., Tkachuk M. N., Zakharchenya B. P. Determination of interface preference by observation of linear-to-circular polarization conversion under optical orientation of excitons in type-II GaAs/AlAs superlattices // *Phys. Rev. B.* – 1997. – Vol. 56, no. 20. – P. 13405.
- [61] Sarkar D., van der Meulen H. P., Calleja J. M., Becker J. M., Haug R. J., Pierz K.. Exciton fine structure and biexciton binding energy in single self-assembled InAs/AlAs quantum dots // *J. Appl. Phys.* – 2006. – Vol. 100. – P. 023109.
- [62] Dunker D., Shamirzaev T. S., Debus J., Yakovlev D. R., Zhuravlev K. S., Bayer M. 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. – Vol. 101. – P. 142108.