

Московский Физико-Технический Институт
(Государственный Университет)

Институт Физики Твёрдого Тела
Российская Академия Наук

Пашков Александр Владимирович

**Связанные магнитные поляроны в
сверхрешётках второго типа
ZnMnSe/ZnSse**

Выпускная квалификационная работа на соискание
степени магистра

Научный руководитель:
кандидат физико-математических наук
старший научный сотрудник
А.А. Максимов

Черноголовка 2007

Содержание

| | |
|--|----|
| 1. Введение..... | 3 |
| 2. Литературный обзор | |
| 2.1. Полумагнитные полупроводники..... | 3 |
| 2.2. Магнитные поляроны в полумагнитных полупроводниках..... | 6 |
| 3. Фотолюминесцентные исследования ZnMnSe/ZnSSe при непрерывном возбуждении..... | 9 |
| 4. Фотолюминесцентные исследования ZnMnSe/ZnSSe с временным разрешением | |
| 4.1. Экспериментальная установка..... | 12 |
| 4.2. Исследования с временным разрешением..... | 14 |
| 5. Обсуждение результатов..... | 19 |
| 6. Феноменологическая модель..... | 21 |
| 7. Заключение..... | 24 |
| 8. Литература..... | 25 |

1. Введение.

Открытие в 70-х годах полумагнитных полупроводников (п/м п/п) ознаменовало появление нового направления физики твёрдого тела, находящегося на стыке физики полупроводников, магнетизма и неупорядоченных систем. Обменное взаимодействие носителей заряда с магнитными примесями (ионами переходных металлов с нескомпенсированным спином), заместившими часть ионов полупроводника, существенно модифицирует оптические и транспортные свойства полупроводникового материала. Оно во много раз усиливает магнитооптические эффекты, приводит к гигантскому спиновому расщеплению зонных состояний, гигантскому эффекту фарадеевского вращения плоскости поляризации света и даёт целый спектр новых эффектов, изучение которых важно для понимания фундаментальных физических явлений и перспективно с точки зрения их практического применения.

Уникальное сочетание полупроводниковых и магнитных свойств делает полумагнитные полупроводники важными модельными объектами для исследования: (i) спин-зависимых явлений в полупроводниках, (ii) свойств неупорядоченной спиновой системы, переходящей при определённых условиях в фазу спинового стекла, (iii) магнитополяронного эффекта. Использование оптических методов значительно расширяет экспериментальные возможности исследования свойств этих модельных объектов [1-6].

2. Литературный обзор.

2.1. Полумагнитные полупроводники.

Особенностью п/м п/п является наличие системы магнитных ионов, которая обладает энергетическим и спиновым резервуарами и взаимодействует с носителями заряда и фононами. Интересующие нас свойства п/м п/п можно описать, рассматривая три взаимодействующие системы п/п кристалла: носители заряда, магнитные ионы и фононы (решётка). Схематически они представлены на рис.1. В случае нелегированного п/п, в котором неравновесные носители создаются светом, время жизни τ_0 определяются излучательными процессами с характерным временем τ_R и безызлучательными с временем τ_{NR} : $\tau_0^{-1} = \tau_R^{-1} + \tau_{NR}^{-1}$. Стрелками показаны процессы взаимодействия между системами.

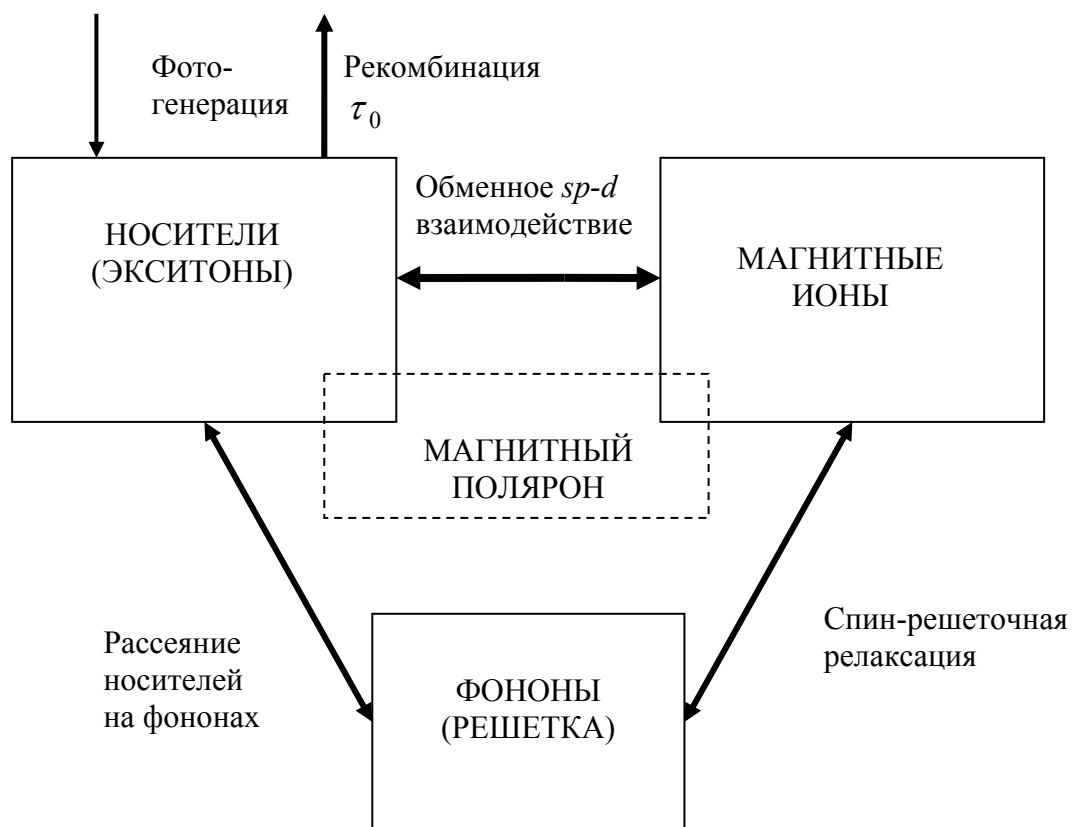


Рис. 1. Основные системы полумагнитного полупроводникового кристалла.

Наши исследования были посвящены подробному изучению фотолюминесценции в полупроводниковых полумагнитных соединениях группы A_2B_6 , а именно, в сверхрешетках $Zn_{1-x}Mn_xSe/ZnS_ySe_{1-y}$. Здесь в роли магнитного иона выступает Mn^{2+} . Магнитный ион Mn^{2+} имеет наполовину заполненную $3d$ оболочку с пятью электронами. В кристаллах A_2B_6 основное состояние иона характеризуется спином $S=5/2$, угловым моментом $L=0$ и пренебрежимо малым спин-орбитальным расщеплением. Как следствие, его магнитный момент имеет чисто спиновую природу (g -фактор равен 2), а спин-решёточное взаимодействие слабо, что отражается в длинных временах спин-решёточной релаксации изолированного иона Mn^{2+} . Уникальные полупроводниковые и магнитные свойства п/м п/п, такие как гигантское Зеемановское расщепление энергетических состояний носителей в валентной зоне и зоне проводимости, сильное Фарадеевское вращение поляризации света, образование магнитных поляронов (МП), определяются сильным $sp-d$ обменным взаимодействием между носителями заряда (электронами и дырками) и локализованными спинами магнитных ионов Mn^{2+} .

Положения ионов Mn^{2+} в пространстве строго фиксировано узлами кристаллической решётки. Однако, если в идеальном кристалле все эквивалентные узлы решетки заняты, то в

твёрдых полумангнитных растворах можно лишь сказать, что вероятность нахождения магнитного иона в данном узле решётки равна их концентрации x [7-10].

Концентрация x ионов Mn^{2+} напрямую влияет на намагниченность. Энергия взаимодействия магнитных ионов с внешним магнитным полем \mathbf{B} дается обычным выражением:

$$\hat{H}_d^{mag} = -\mu_B g_{Mn} \sum_i (\hat{S}_i \mathbf{B}), \quad (1)$$

где g_{Mn} - g-фактор Mn^{2+} , μ_B - магнетон Бора, \hat{S}_i - оператор спина магнитного иона Mn^{2+} .

Из-за сильных спин-спиновых взаимодействий намагниченность п/м п/п \mathbf{M} описывается функцией Бриллюэна лишь в области очень высоких температур или при предельно малых концентрациях x .

$$\mathbf{M} = -N_0 x \mu_B g_{Mn} \langle \mathbf{S} \rangle = N_0 x \mu_B g_{Mn} \frac{5}{2} \frac{\mathbf{B}}{|B|} Br_{5/2}(y); \quad (2)$$

$$Br_{5/2}(y) = \frac{6}{5} cth\left(\frac{6y}{5}\right) - \frac{1}{5} cth\left(\frac{y}{5}\right), \quad y = \frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B T},$$

где N_0 - концентрация узлов в катионной подрешетке, $\langle \mathbf{S} \rangle$ - усредненный спин ионов Mn^{2+} на направление магнитного поля.

Для описания кривой намагничивания при произвольной концентрации магнитных ионов была предложена эмпирическая формула (модифицированная функция Бриллюэна)

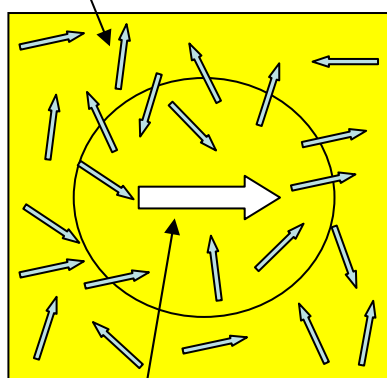
$$M = \mu_B g_{Mn} N_0 x S_0(x) Br_{5/2}\left(\frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B (T + T_0(x))}\right), \quad (3)$$

где S_0 - эффективный спин ($S_0 \leq 5/2$), T_0 - эффективная температура ($T_0 \geq 0$). Значения феноменологических параметров S_0 и T_0 определяются магнитометрическими и/или магнитооптическими методами и зависят от концентрации магнитных ионов и условий приготовления образца. Эти параметры позволяют учесть эффект антиферромагнитного взаимодействия соседних магнитных ионов, которое, в свою очередь, играет определяющую роль в динамических процессах и магнитном упорядочивании спиновой системы ионов Mn^{2+} [11].

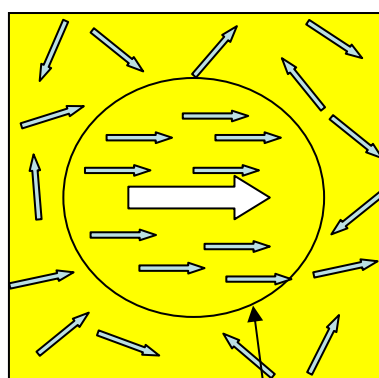
2.2. Магнитные поляроны в полумагнитных полупроводниках.

Термин “полярон” был впервые введён Пекаром для скоррелированного состояния электрона и колебаний решётки (фононов) в полярном кристалле [12]. Позднее он был распространён на все типы автолокализованных состояний носителя в твёрдом теле. В более общем виде этот термин применяется для описания состояния релаксирующей частицы в случае, когда часть энергии связи частицы зарабатывается за счёт поляризации ею окружающей среды. В магнитных и полумагнитных п/п обменное взаимодействие носителей с локализованными магнитными моментами приводит к ферромагнитному выстраиванию последних в области локализации носителя (рис.2). Такое образование (облако) поляризованных магнитных моментов, которое может рассматриваться как квазичастица с магнитным моментом в сотни магнетонов Бора [13], называется магнитным поляроном (МП).

Спины магнитных ионов Mn^{2+}



Спин носителя заряда



Магнитный полярон

Рис. 2. Схематическое представление процесса формирования магнитного полярона в полумагнитном полупроводнике. Спины экситона и ионов Mn показаны большой и малыми стрелками, соответственно.

Добавочная намагничённость в магнитном поляроне индуцируется и поддерживается обменным полем локализованного носителя. При этом энергия самого носителя уменьшается за счет взаимодействия с магнитными ионами на величину, варьирующуюся от единиц до десятков мэВ. Эту величину обычно называют энергией связи магнитного полярона E_{MP} . Обменное взаимодействие носителей с магнитными ионами в области локализации полярона описывается гамильтонианом

$$\hat{H}_{e,h}^{ex} = -\alpha_{e,h} \sum_n (\hat{\mathbf{s}}_{e,h} \hat{\mathbf{S}}_n) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \quad , \quad (4)$$

где $\hat{\mathbf{s}}$, \mathbf{r} и $\hat{\mathbf{S}}_n$, \mathbf{R}_n - операторы спина и радиус-вектор носителя и магнитного иона с номером n соответственно, $\delta(\vec{r} - \vec{R}_n)$ - δ -функция Дирака, а $\alpha_{e,h}$ - параметр обменного взаимодействия электронов и дырок с ионами Mn^{2+} . Для ZnMnSe/ZnSSe $N_0\alpha_e \cong 260$ мэВ, $N_0\alpha_h \cong -1310$ мэВ [14].

Такое взаимодействие эквивалентно действию на носитель внутреннего эффективного магнитного поля B_{MP} (см. формулу (1)). Намагниченность в таком случае будет описываться модифицированной функцией Бриллюэна (см. формулу (3)), учитывающей внутреннее поле B_{MP}

$$M = \mu_B g_{Mn} N_0 x S_0(x) \text{Br}_{5/2} \left(\frac{5\mu_B g_{Mn} (B + B_{MP})}{2k_B (T + T_0(x))} \right) \quad , \quad (5)$$

а энергия связи магнитного полярона при нулевом внешнем магнитном поле

$$E_{MP} = E_Z \text{Br}_{5/2} \left(\frac{5\mu_B g_{Mn} B_{MP}}{2k_B (T + T_0)} \right) \quad , \quad (6)$$

где E_Z - половина энергии зеемановского расщепления экситонов в насыщенных магнитных полях (рис.3).

Таким образом, позиция полосы ФЛ, соответствующая МП, будет сдвинута от позиции полосы ФЛ рекомбинации свободных носителей на величину равную энергии связи магнитного полярона E_{MP} .

Позиция полосы ФЛ экситона в магнитном поле в геометрии Фарадея определяется как

$$E(B) = E_0 - (\alpha_e - \alpha_h) N_0 x S_0(x) \text{Br}_{5/2} \left(\frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B (T + T_0(x))} \right) \quad , \quad (7)$$

где E_0 - энергия экситона в нулевом магнитном поле.

Позиция полосы ФЛ магнитного полярона в магнитном поле будет определяться той же формулой (7), только включающей в себя дополнительно внутреннее эффективное поле B_{MP} :

$$E_{MP}(B) = E_0 - (\alpha_e - \alpha_h) N_0 x S_0(x) \text{Br}_{5/2} \left(\frac{5\mu_B g_{Mn} (B + B_{MP})}{2k_B (T + T_0(x))} \right) \quad (8)$$

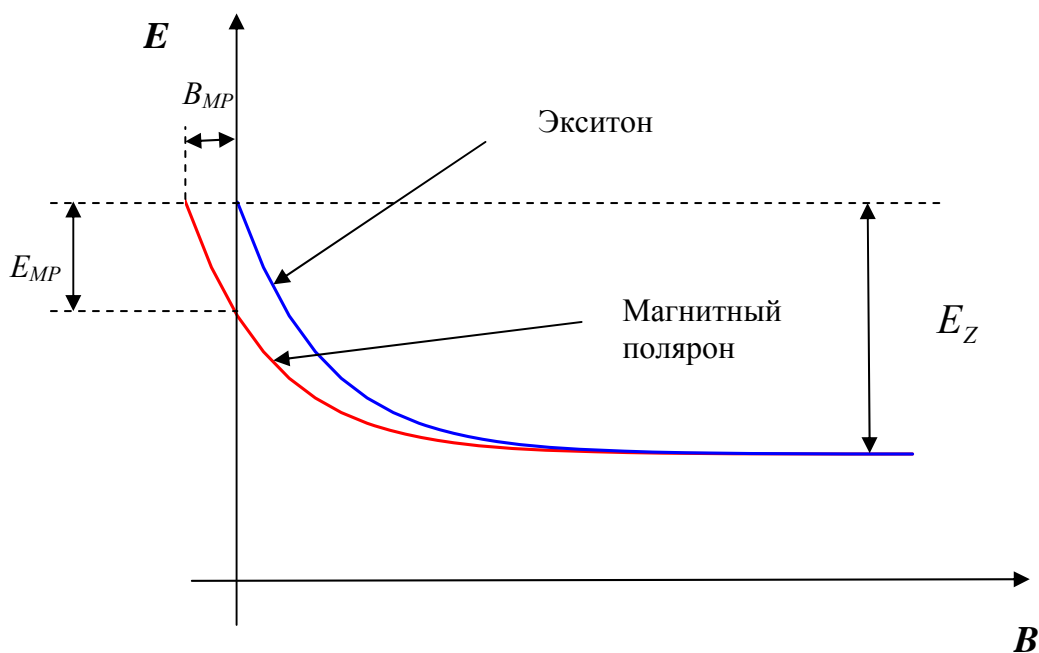


Рис. 3.

Процесс формирования магнитного полярона очень чувствителен к механизму начальной локализации носителя или экситона. Теоретически было показано, что образование трехмерного магнитного полярона с участием свободного носителя или экситона невозможно, тогда как в двумерных структурах (квантовых ямах) возможна автолокализация экситонного магнитного полярона [15]. Проверить это утверждение экспериментально трудно из-за неизбежного наличия немагнитных механизмов локализации. В зависимости от начального механизма локализации различают связанные магнитные поляроны, образованные вокруг носителя, локализованного на примеси, и экситонные магнитные поляроны, образованные вокруг экситона, связанного на примеси или локализованного на композиционных или толщинных флуктуациях в гетероструктурах. Детектируемая энергия связи МП при заданной температуре определяется параметрами материала (константой обменного взаимодействия и эффективной концентрацией магнитных ионов), процессами начальной локализации экситона и кинетикой рекомбинационных и релаксационных процессов. В группе A_2B_6 магнитная локализация определяется в основном свойствами дырки, так как константа обменного взаимодействия в 4-5 раз больше для валентной зоны, чем для зоны проводимости.

После быстрой (в течение нескольких пикосекунд) локализации фотовозбужденного экситона дефектами или флуктуациями (магнитными или немагнитными), кинетика формирования МП определяется конкуренцией двух процессов: (i) радиационной или

нерадиационной рекомбинации и (ii) ферромагнитного упорядочивания магнитных ионов в окрестности экситона. Последний процесс происходит на временах от десятков до сотен пикосекунд. Поэтому в объемных образцах, а также квантовых ямах и сверхрешетках типа I, где радиационная рекомбинация достаточно эффективна, формирование МП часто не достигает равновесной фазы. Для исследования полного формирования МП перспективными представляются образцы с множественными квантовыми ямами типа II, где длинные времена жизни носителей (до нескольких наносекунд) позволяют исследовать все фазы формирования МП.

3. Фотолюминесцентные исследования ZnMnSe/ZnSSe при непрерывном возбуждении.

Образцы для исследований $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se[18\text{нм}]/ZnS_{0.16}Se_{0.84}[8\text{нм}]$ и $Zn_{0.84}Mn_{0.16}Se[19\text{нм}]/ZnS_{0.16}Se_{0.84}[8\text{нм}]$ были выращены на буферном слое GaAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Сверхрешетки содержали 10 периодов и были помещены между двумя толстыми слоями ZnMgSSe с постоянной решетки, согласованной с GaAs. Образцы представляют собой квантовые ямы типа II, где электроны ограничены в слоях ZnSSe, а тяжелые дырки – в слоях ZnMnSe. То есть слой ZnSSe является барьером для дырок и ямой для электронов (рис.4). Оценки величины разрывов зоны проводимости на интерфейсах дают значения $\sim 60 - 80$ мэВ, а для зоны тяжелых дырок разрывы составляли $\sim 90 - 120$ мэВ [16].

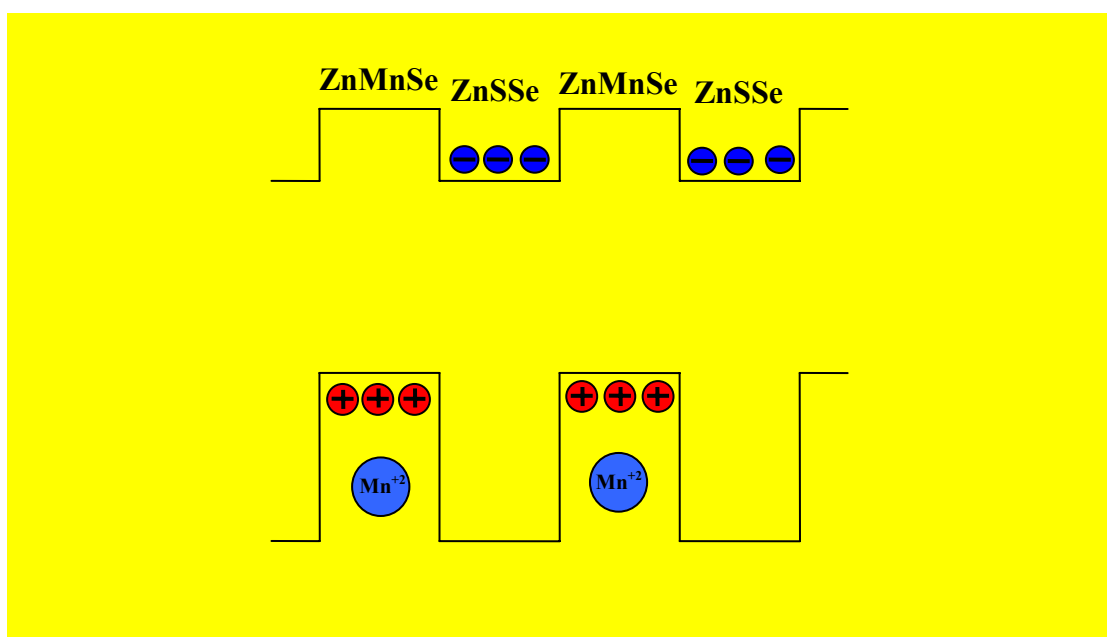


Рис. 4. Схема зон гетероструктуры второго типа ZnMnSe/ZnSSe

Перекрытие электронных волновых функций с волновыми функциями тяжелых дырок, ограниченных в слоях ZnMnSe, в исследованных образцах оказывается существенным, что определяет относительно большую силу осциллятора экситона, несмотря на то, что соответствующие переходы в структуре типа II являются пространственно непрямыми. Достаточно большая сила осциллятора обуславливает относительно быстрые времена рекомбинации. Типичные значения времен рекомбинации для различных полос, наблюдаемых в спектрах фотолюминесценции, изменялись от ~ 150 пс до нескольких десятков наносекунд. Полосы ФЛ, отвечающие излучению магнитного полярона, как раз обладают длинными временами рекомбинации, что позволяет проводить исследование МП в наших образцах при равновесных условиях.

Фотолюминесценция гетероструктур ZnMnSe/ZnSSe в магнитных полях и при различных температурах ранее изучались в работах [16-18]. В образцах с квантовыми ямами $Zn_{1-x}Mn_xSe/ZnS_ySe_{1-y}$, где содержание марганца в $Zn_{1-x}Mn_xSe$ превышает 3-4%, при нулевом магнитном поле в спектрах экситонной ФЛ вблизи края поглощения наблюдаются два пика, сдвинутые на 20 мэВ друг от друга. С включением магнитного поля оба пика ФЛ во всех образцах становятся практически полностью σ^+ поляризованными и сдвигаются в сторону меньших энергий, демонстрируя эффект гигантского Зеемановского расщепления экситонных уровней. В спектрах σ^- поляризованной ФЛ можно также заметить слабый пик, соответствующий излучению верхней отщепленной спиновой подзоны. Энергия этого пика увеличивается с ростом магнитного поля. Величины сдвигов для двух σ^+ поляризованных пиков оказываются разными – нижний по энергии пик сдвигается медленнее, так что, начиная с определенных магнитных полей $\sim 1 - 3$ Т оба пика сливаются в один. В работах [16-18] были высказаны соображения, по которым верхний по энергии пик объяснялся излучением экситонов, локализованных, в основном, немагнитным образом, тогда как поведение нижнего пика связывалось с формированием МП.

На рис.5 представлены спектры фотолюминесценции образца $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$, полученные нами при возбуждении полосой 325 нм непрерывного He-Cd лазера, при различных температурах. Отметим, что эти спектры совпадают с приведенными в работе [17].

При низкой температуре интенсивность полосы излучения МП вблизи энергии 2.78 эВ значительно выше, чем интенсивность экситонной полосы с энергией ~ 2.80 эВ. Видно, что повышение температуры приводит к быстрому уменьшению интенсивности полосы с энергией ~ 2.78 эВ. Это отвечает ожидаемому температурному разрушению поляронного состояния. Однако, были обнаружены определенные противоречия: в спектрах не наблюдается заметного сдвига этой полосы в сторону больших энергий, как должно быть в случае разрушения МП (см. формулы (5) и (6)). Спектральная полоса остается на одном месте (рис. 5). По-видимому,

объяснение этого эффекта требует более полного учета процессов локализации неравновесных носителей немагнитного происхождения.

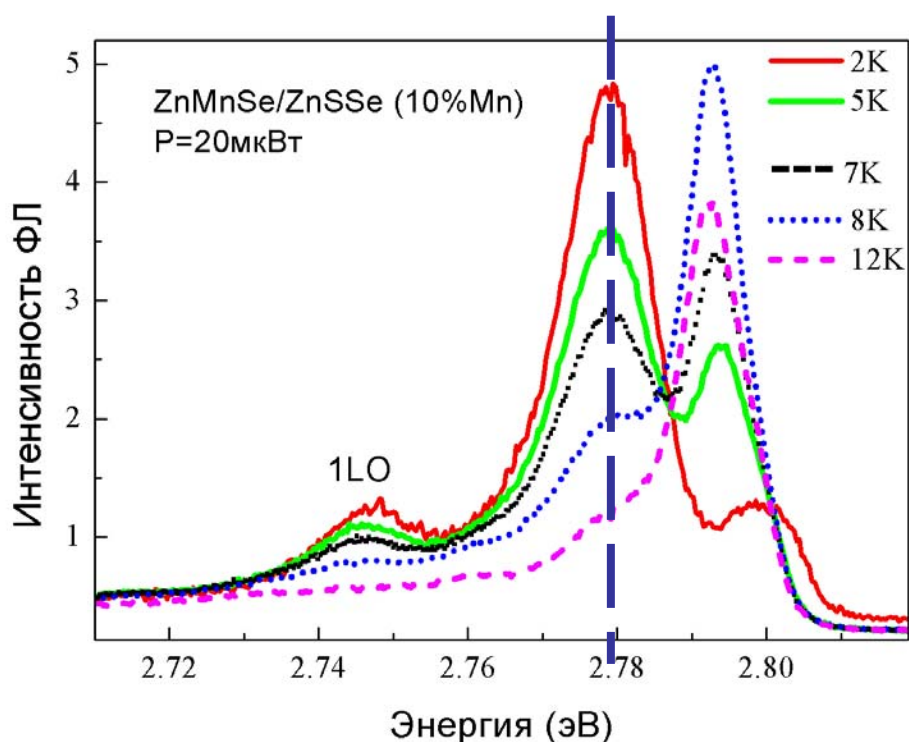


Рис. 5. Спектры ФЛ образца $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$ при разных температурах. Пунктирной линией показано, что нижняя полоса не сдвигается при увеличении температуры.

В связи с этим, одной из основной из задач данной дипломной работы являлось детальное исследование процессов локализации неравновесных носителей немагнитного происхождения в п/м п/п структурах второго типа на основе $ZnMnSe/ZnSSe$. Для более глубокого понимания процессов локализации магнитной и немагнитной природы в наших образцах были выполнены эксперименты по изучению спектров ФЛ с временным разрешением.

4. Фотолюминесцентные исследования ZnMnSe/ZnSSe с временным разрешением.

4.1. Экспериментальная установка.

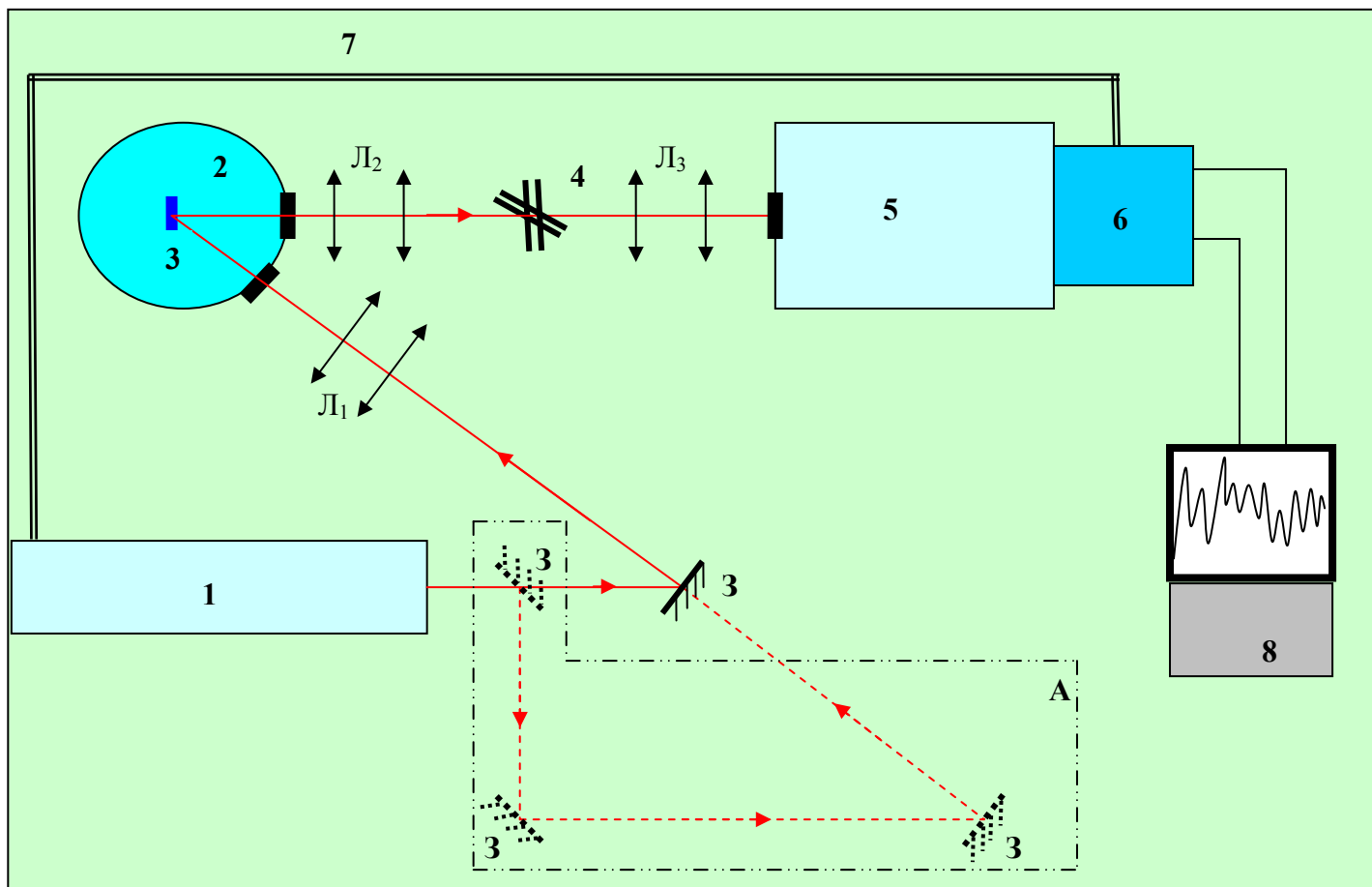


Схема экспериментальной установки.

Обозначения:

3 – зеркало

Л1- система линз для фокусировки лазера на образец

Л2- система линз для передачи изображения сигнала с образца на скрещенные щели

Л3- система линз для передачи изображения со скрещенных щелей на входную щель спектрометра

[1] Лазер

[2] Криостат

[3] Образец

[4] Скрещенные щели

[5] Спектрометр

[6] Оптический многоканальный анализатор (ОМА)

[7] Канал синхронизации лазера и ОМА

[8] Компьютер

Блок А - линия задержки импульса лазера

Образцы (3) помещались в оптический криостат (2). В эксперименте использовались два типа оптических криостатов:

1) магнитный, где образцы размещались в сверхпроводящем соленоиде в геометрии Фарадея (магнитное поле направлено вдоль роста структуры). Измерение проводилось во внешних магнитных полях до $B = 10 \text{ T}$, $T = 1.7 \text{ K}$;

2) криостат с блоком регулировки температуры, что позволяло проводить измерения при температурах $T = 2 - 30 \text{ K}$.

Возбуждение образца (3) производилось с помощью импульсного лазера (1). Луч лазера фокусировался на образце с помощью системы линз L_1 . Сигнал фотолюминесценции собирался системой линз L_2 и передавался на скрещенные щели. Скрещенные щели позволяли выбирать сигнал ФЛ с определенного участка образца. Далее со скрещенных щелей изображение с помощью системы линз L_3 передавалось в спектрометр (5). Сигнал детектировался оптическим многоканальным анализатором (ОМА) (6) и передавался на обработку в компьютер (8).

В эксперименте использовались два типа импульсных лазеров и, соответственно, два типа ОМА:

1. При измерениях с высоким временным разрешением использовался титан-сапфировый лазер (2-я гармоника) с субпикосекундной длительностью импульсов ($\Delta\tau \approx 80 \text{ фс}$) и периодом между импульсами $\sim 13 \text{ нс}$, работающего в режиме самосинхронизации мод. Диаметр пятна возбуждающего света на образце составлял $\sim 0.5 \text{ мм}$. В качестве ОМА использовалась Streak-camera "Hamamatsu". Для получения разрешенных по времени сигналов импульсный лазер (1) и ОМА (6) синхронизированы посредством электронного канала синхронизации (7). Оборудование позволяло производить измерение спектров ФЛ с временным разрешением $\sim 15 \text{ пс}$, на временных задержках вплоть до 13 нс .

2. При измерениях с наносекундным временным разрешением и большим временным интервалом между импульсами использовался YAG-лазер (3-я гармоника) с относительно длинными импульсами $\Delta\tau \approx 8 \text{ нс}$, с частотой следования импульсов до 10 кГц и длиной волны возбуждения $\lambda = 355 \text{ нм}$. Разрешенные по времени спектры ФЛ регистрировались с помощью чувствительной gated CCD камеры, обеспечивавшей временное разрешение $\sim 2 \text{ нс}$. Данная установка позволяла регистрировать спектры ФЛ при временных задержках после импульса возбуждающего лазера вплоть до нескольких сотен наносекунд.

Блок А предназначен для увеличения времени задержки импульса лазера. Связанно это с тем, что в эксперименте минимальное время, необходимое для запуска gated CCD камеры, составляет $\sim 150 \text{ нс}$. Для компенсации этой задержки использовался оптоволоконный кабель длиной $\geq 30 \text{ метров}$. В результате имелась возможность исследовать спектры ФЛ образцов в

различные моменты времени, как во время действия возбуждающего лазерного импульса, так и после его окончания.

4.2. Исследования с временным разрешением.

На рис.6 представлена картина временной эволюции спектра ФЛ образца $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$, полученная при измерениях с высоким временным разрешением на Streak-camera “Hamamatsu”. На рис.7 показаны спектры ФЛ образца в различные моменты времени после возбуждения лазером. Как и в случае непрерывного возбуждения, в спектрах ФЛ при возбуждении импульсным лазером одновременно наблюдаются две полосы. Экситонная полоса с энергией ~ 2.80 эВ доминирует в спектрах время-разрешенной люминесценции в начальные моменты времени после возбуждения лазерным импульсом. Затухание интенсивности этой полосы происходит с характерным временем порядка ~ 150 пс и сопровождается слабым сдвигом вниз по энергии на величину $\sim 3-4$ мэВ. Полоса, связываемая с МП, начинает полностью доминировать в спектрах ФЛ, начиная с задержек ~ 500 пс. Характерное время затухания ее интенсивности носит явно неэкспоненциальный характер, и изменяется от долей наносекунды до десятка наносекунд.

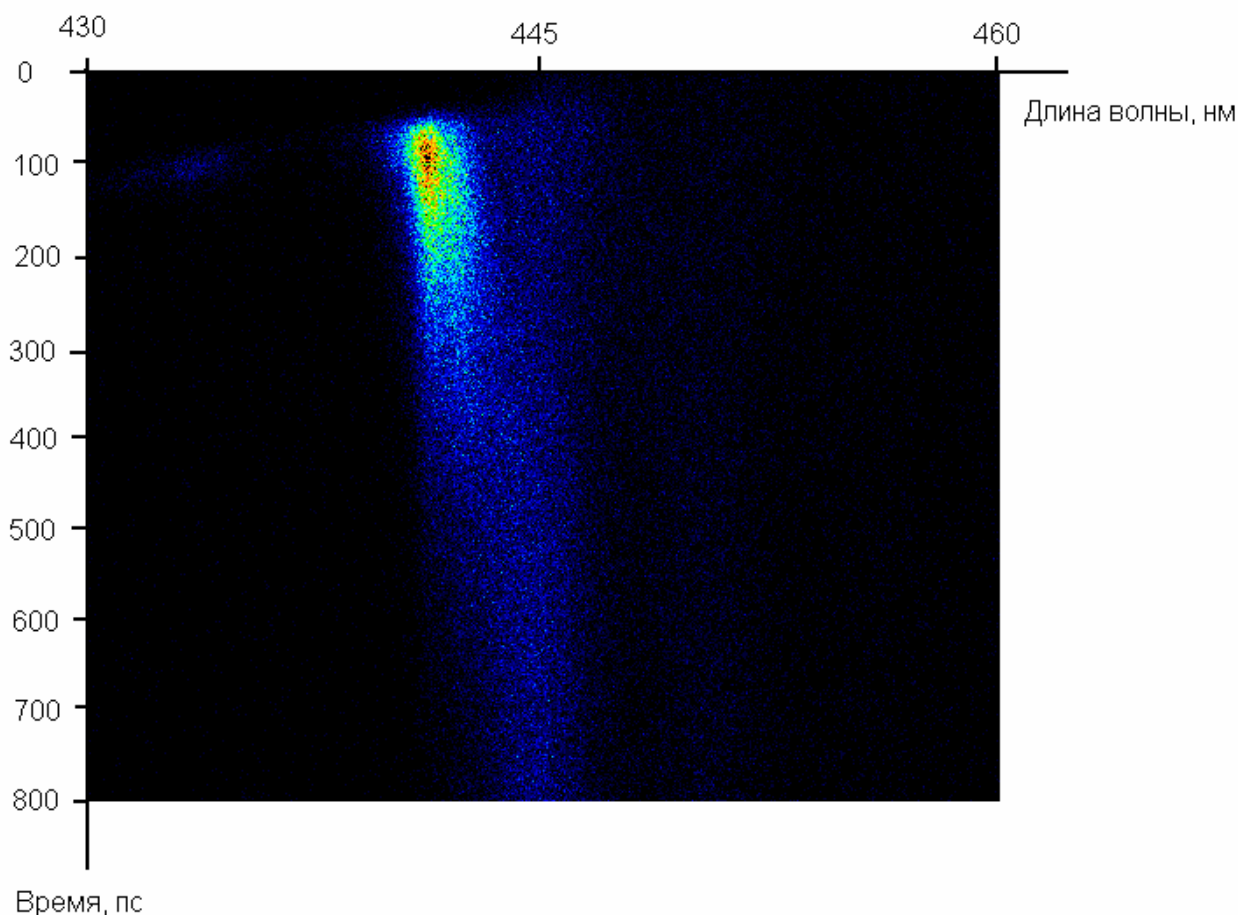


Рис. 6. Трехмерный спектр ФЛ образца $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$, развернутый во времени. (интенсивность ФЛ выделена цветом). $T=2$ К. $B=0$ Т.

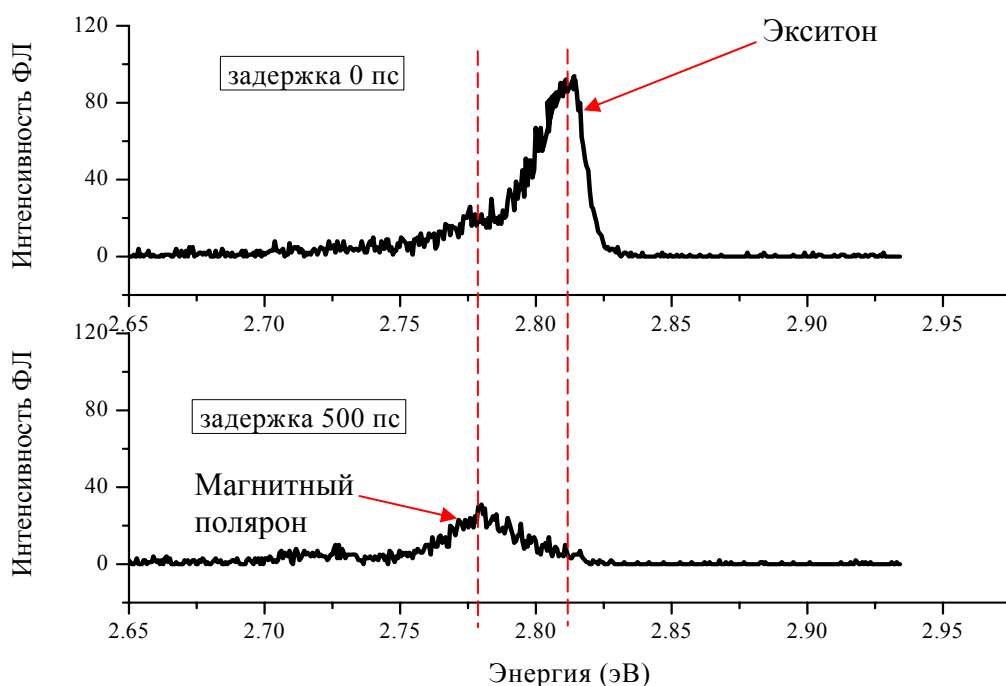


Рис. 7. Спектры ФЛ образца $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$ в различные моменты времени после действия короткого фемтосекундного лазерного импульса. $T=2\text{ K}$. $B=0\text{ T}$.

На рис.8 показаны зависимости позиции доминирующей в данный момент времени полосы в спектре ФЛ при различных задержках после возбуждающего лазерного импульса от магнитного поля при температуре 1.7 К. Данные, полученные в самые первые моменты времени (задержка от 0 до 30 пс), относятся к полосе рекомбинации свободных носителей, а остальные – при задержках $\sim 0.75\text{ нс}$ и $\sim 13\text{ нс}$ - отвечают полосе излучения МП. При всех значениях магнитного поля увеличение времени задержки, вплоть до максимально возможных в этих измерениях 13 нс, приводит к постепенному уменьшению энергии излучения полосы МП на величину $\sim 10\text{ мэВ}$. Все полосы ФЛ по мере увеличения внешнего магнитного поля сдвигаются в красную сторону, что связано с эффектом гигантского Зеемановского расщепления энергетических состояний носителей в полумагнитных полупроводниковых материалах. При этом характер сдвига более низкоэнергетической полосы имеет вид, характерный для полос излучения МП, а именно, ее сдвиг с полем несколько меньше по величине, чем в экситонной полосе, что связано с внутренним эффективным магнитным полем B_{MP} внутри области локализации полярона (см. формулы (7,8)). Из данных, представленных на рис.7, можно оценить поле магнитного полярона как $B_{MP} \approx 1 - 2\text{ T}$.

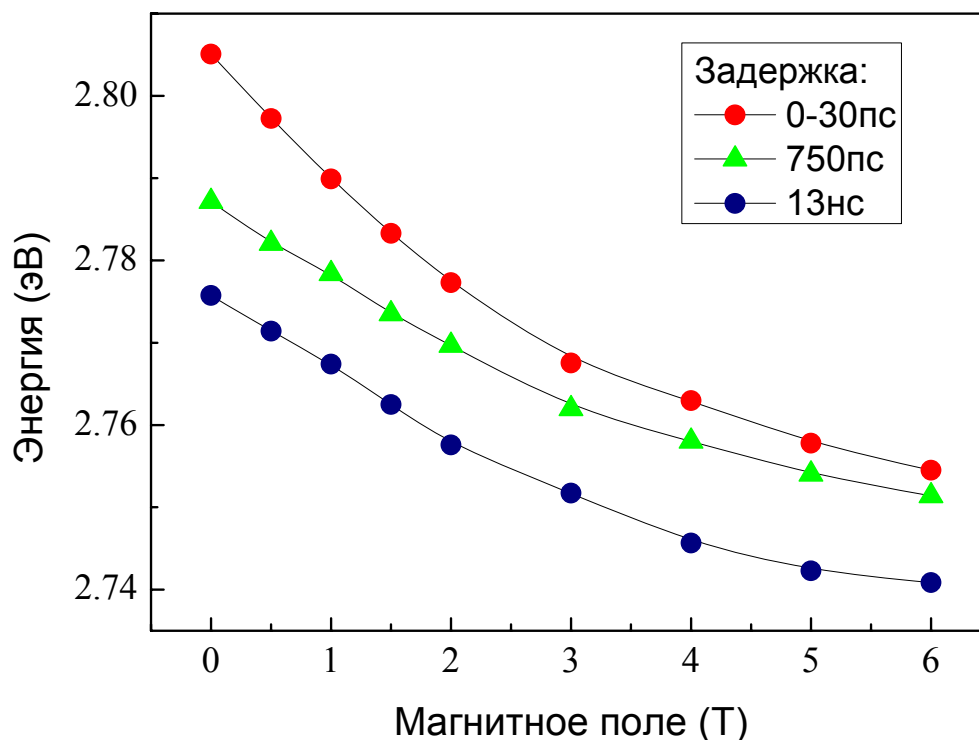


Рис. 8. Зависимость спектрального положения полосы с максимальной интенсивностью в спектре ФЛ образцов $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$ от магнитного поля при различных задержках после возбуждающего лазерного импульса. $T = 1.7 K$.

Именно на такую величину необходимо сдвинуть данные вдоль оси поля, полученным при задержке 750 пс, чтобы они хорошо совпали с позицией экситонной полосы, измеренной при задержках 0–30 пс. Однако, подобного соответствия спектральной позиции данной полосы ФЛ в магнитном поле на временных задержках, превышающих 1 нс после возбуждающего импульса, уже не удастся получить с помощью одного только сдвига нижней кривой на величину $B_{MP} \approx 1 - 2 T$. Для описания поведения этой полосы на больших временах задержки, как будет показано ниже, необходимо учитывать также кинетику локализации носителей немагнитной природы.

Для того, чтобы более детально изучить природу полос ФЛ, обладающих длинной кинетикой излучения, и глубже понять роль различных процессов локализации в формировании этого излучения в сверхрешетках $ZnMnSe/ZnSSe$ для генерации фотовозбужденных носителей использовался YAG-лазер (3-я гармоника) с большим временным интервалом между импульсами.

На рис.9 представлены временные зависимости позиции максимума полосы излучения МП при трех различных температурах. Из полученных данных видно, что спектральная позиция

линии излучения МП остается практически постоянной во время действия импульса накачки, а затем в течение нескольких наносекунд после окончания возбуждения демонстрирует значительный красный сдвиг на величину порядка 20 мэВ. Поведение спектрального положения полосы ЭМП со временем сохраняется и при относительно высоких температурах, при которых происходит разрушение полярного состояния. Это позволяет сделать вывод о важности учета процессов локализации носителей немагнитной природы, которые, в частности, и определяют кинетику спектрального положения линии излучения после окончания импульса накачки.

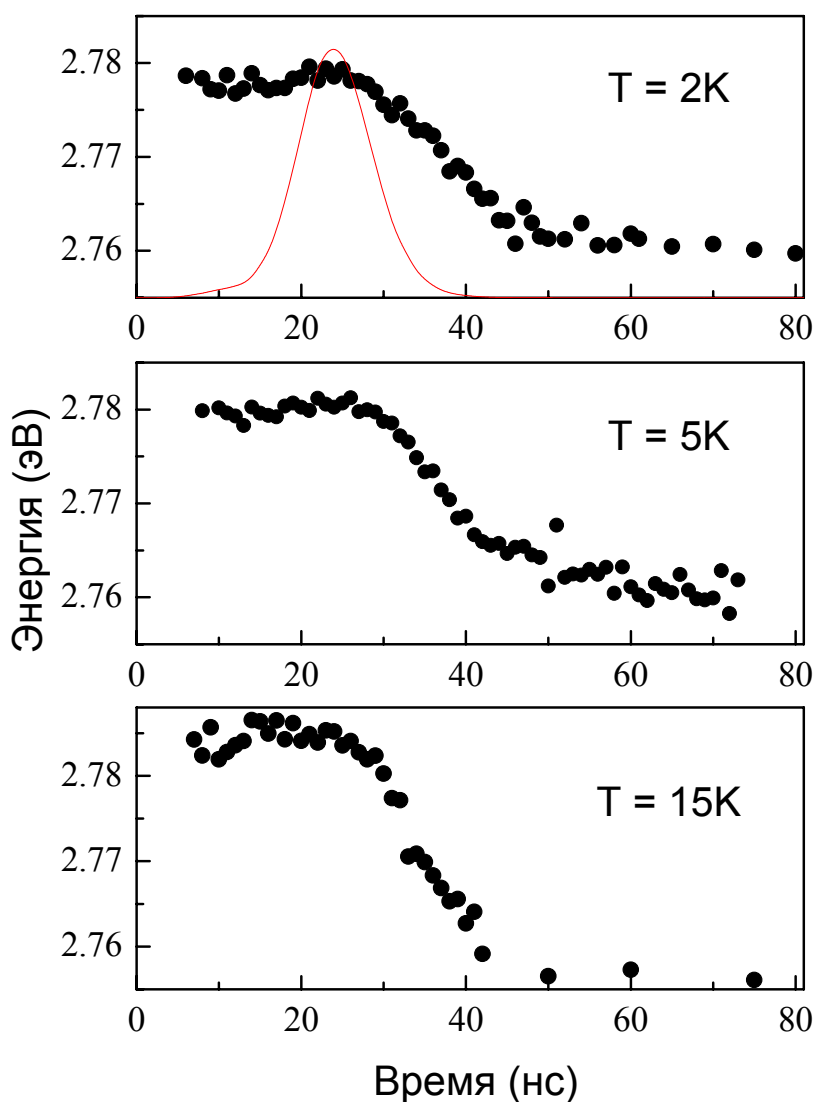


Рис. 9. Временные зависимости позиции максимума полосы излучения магнитного полярона в образце $\text{Zn}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{Se}/\text{ZnS}_{0.16}\text{Se}_{0.84}$ при температурах $T = 2, 5$ и 15K . Красной сплошной кривой показана форма импульса возбуждающего YAG-лазера.

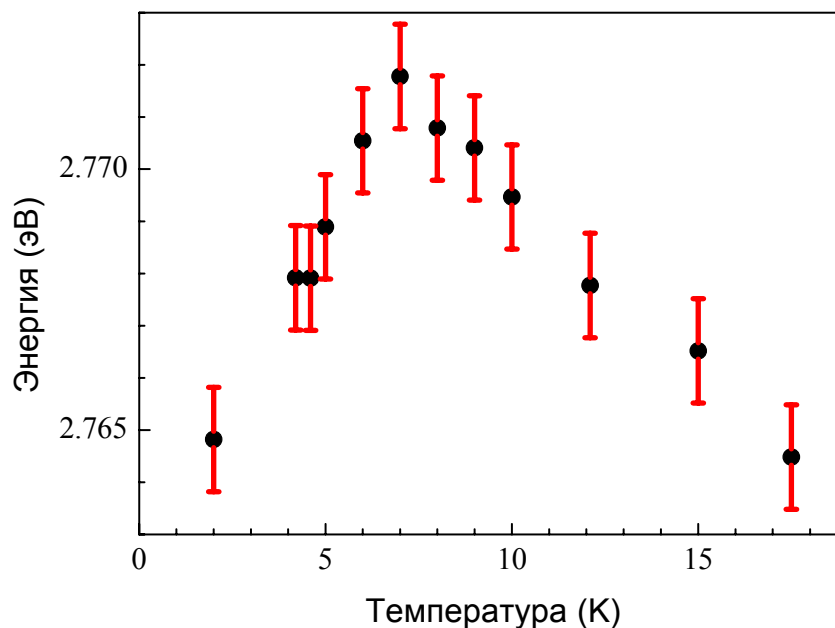


Рис. 10. Зависимость положения линии излучения магнитного полярона в образце $Zn_{0.9}Mn_{0.1}Se/ZnS_{0.16}Se_{0.84}$ от температуры, измеренной при временах задержки 10-20 нс после возбуждения импульсом YAG-лазера.

На рис.10 представлена зависимость положения линии излучения магнитного полярона от температуры, измеренной при временах задержки 10-20 нс после возбуждения импульсом лазера. При таких временных задержках в температурном интервале 2÷7 К удается наблюдать «классическое» поведение полосы излучения МП – сдвиг в сторону высоких энергий с повышением температуры, связанный с постепенным разрушением поляронного состояния и уменьшением его энергии связи. Фиолетовый сдвиг при дальнейшем повышении температуры сменяется достаточно резким сдвигом полосы в сторону меньших энергий. Такой большой сдвиг в красную сторону не может быть объяснен эффектом уменьшения величины запрещенной зоны, который пренебрежимо мал в рассматриваемом температурном диапазоне, и является еще одним подтверждением важности учета процессов локализации носителей немагнитной природы в изучаемых наноструктурах.

5. Обсуждение результатов.

Для объяснения полученных результатов необходимо рассмотреть какие процессы локализации носителей могут проходить в гетероструктурах второго типа ZnMnSe/ZnSSe и влияния на них изменения температуры образца и магнитного поля.

Дырки, локализованные в слоях ZnMnSe, имеют сильное обменное взаимодействие с ионами Mn^{2+} . Именно это взаимодействие приводит к образованию магнитного полярона. С другой стороны, в слоях ZnMnSe есть ловушки, не связанные с магнитной примесью, и имеющие разную энергетическую глубину залегания. При возбуждении светом в образце появляются дырки как свободные, так и локализованные на ловушках разной глубины залегания, приводящие к образованию МП (рис. 11).

Основная часть электронной волновой функции расположена в слое ZnSSe. В силу значительно меньшего проникновения в слой, содержащий магнитные ионы, и меньшей в пять раз по сравнению с дырками константы обменного взаимодействия с ионами марганца, электроны испытывают значительно меньшее влияние магнитной локализации.

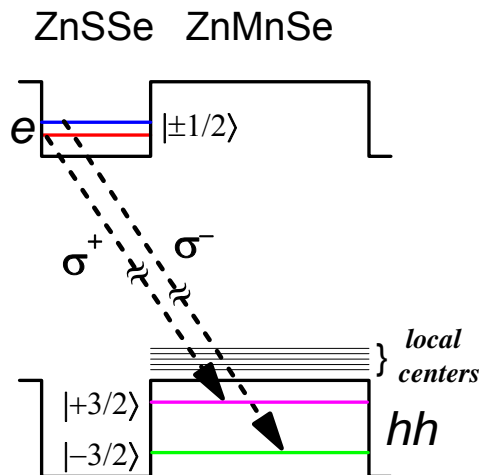


Рис. 11. Схема оптических переходов ФЛ в гетероструктурах 2-го типа $Zn_{1-x}Mn_xSe/ZnS_ySe_{1-y}$.

Рассмотрим, как будет влиять температура на процесс локализации дырок немагнитной природы на ловушках с разной глубиной залегания. Повышение температуры будет вызывать в первую очередь, высвобождение носителей из ловушек с наименьшей глубиной залегания, и, тем

самым вызывать спектральную диффузию их на более глубокие центры, определяя сдвиг полосы излучения, связанных с этими носителями, в красную сторону.

С другой стороны, повышение температуры будет разрушать поляронное состояние, тем самым сдвигая полосу свечения в сторону больших энергий – в фиолетовую область (см. формулу (6)).

Конкуренция этих двух механизмов: спектральная диффузия носителей на более глубокие центры залегания и разрушение магнитного полярона при повышении температуры - может объяснить особенности температурного поведения спектров ФЛ гетероструктуры на основе ZnMnSe/ZnSSe в экспериментах с непрерывным фотовозбуждением и во время действия лазерного излучения (независимость спектрального положения полосы МП от температуры). В экспериментах с временным разрешением на временах порядка нескольких десятков наносекунд после окончания импульса возбуждения, когда основную роль уже играют носители, локализованные на достаточно глубоких ловушках, в области низких температур удается наблюдать процесс разрушения магнитного полярона (сдвиг полосы магнитного полярона в фиолетовую сторону), а в области высоких температур - процесс спектральной диффузии носителей по ловушкам с различной глубиной залегания (рис.10).

Таким образом, временная эволюция спектров ФЛ гетероструктур второго типа ZnMnSe/ZnSSe будет выглядеть следующим образом (рис.8). В первоначальный момент времени после возбуждения лазером высвечиваются свободные электроны и дырки. Время высвечивания составляет ~ 150 пс. Затем происходит рекомбинация дырок, заселенных на ловушках разной глубины залегания, со свободными электронами. Соответственно, данное свечение длится порядка 500 пс. За это время успевает образоваться магнитный полярон на дырке (так как ионы Mn^{2+} находятся в слое ZnMnSe, где локализованы дырки). Таким образом, полоса с меньшей энергией отвечает рекомбинации магнитного полярона (рис 7.).

И, наконец, свечение третьей долгоживущей полоса относится к рекомбинации глубоко связанных локализованных электронов и дырок, чем и объясняется ее спектральное положение и долгая неэкспоненциальная кинетика свечения.

6. Феноменологическая модель.

Для описания всех спектральных, временных и температурных особенностей была построена феноменологическая модель. Модель учитывала распределение ловушек N для дырок с различной глубиной залегания. Распределение выбрано в виде гауссова распределения с положение максимума E_0 и шириной ΔE (рис. 12):

$$N = N_0 e^{-\left(\frac{E-E_0}{\Delta E}\right)^2}$$

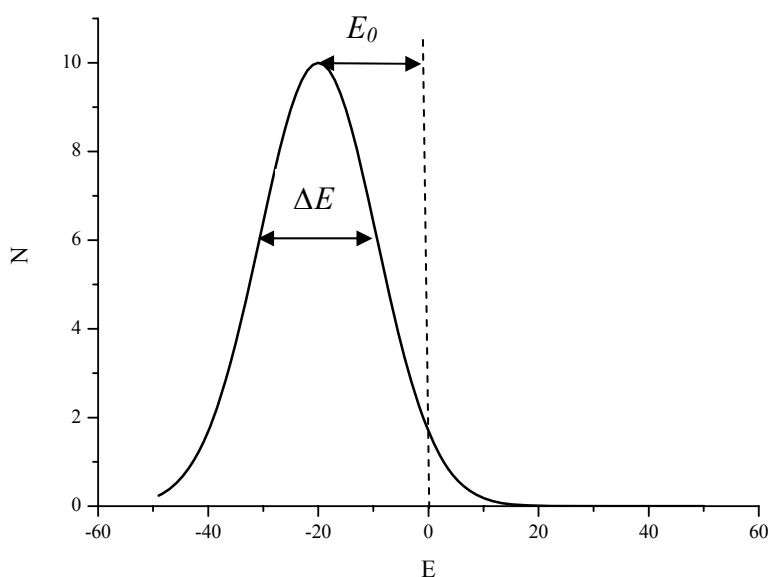


Рис. 12. Распределение (гауссово) ловушек для дырок по глубине залегания.

На первом этапе релаксации носители – дырки – полностью заселяют ловушки. Повышение температуры приводит к тому, что в первую очередь начинают высвобождаться носители с небольшой глубиной залегания, тем самым вызывая спектральную диффузию их на более глубокие центры. Таким образом, полоса ФЛ будет сдвигаться в сторону больших энергий — в красную область.

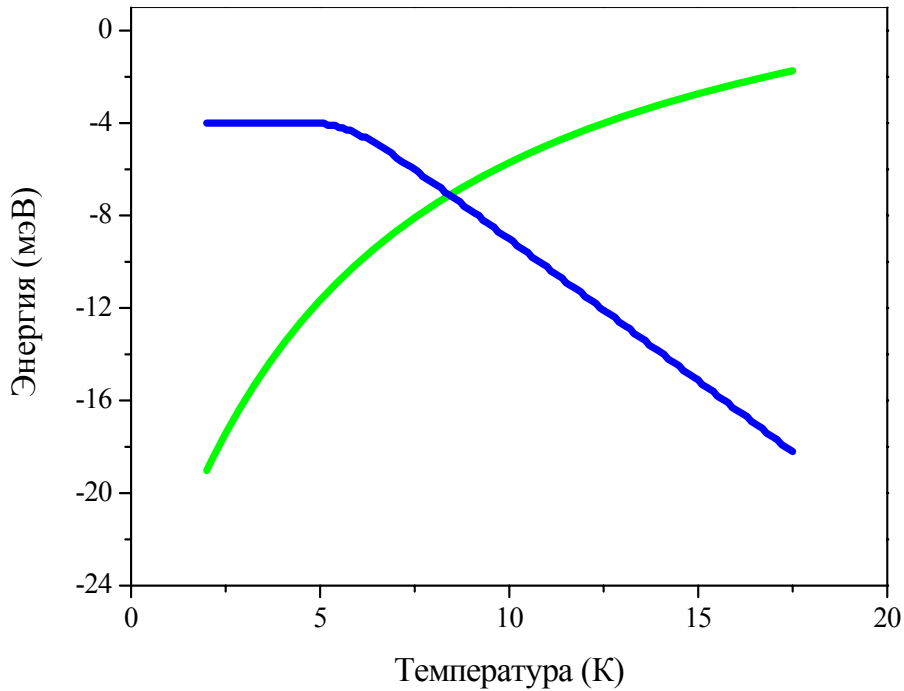


Рис. 13. Зависимость смещения пика полосы свечения от температуры. Синяя кривая определяет последовательную рекомбинацию носителей сначала из менее глубоких центров, а затем из более глубоких. Зеленая кривая – модифицированная функция Бриллюэна – описывает разрушение поляронного состояния под действием температуры.

Получившаяся зависимость смещения полосы ФЛ от температуры показана на рис.13. синей кривой. Первая часть кривой – горизонтальный участок – относится к высвобождению носителей из ловушек, залегающих на глубине до $\sim E_0$. При дальнейшем увеличении температуры начинают высвобождаться дырки, расположенные на более глубоких ловушках, что и приводит к значительному сдвигу полосы свечения в красную область.

С другой стороны, при повышении температуры поляронное состояние разрушается, приводя к смещению полосы свечения в фиолетовую область (рис.13). Этот сдвиг описывается модифицированной функцией Бриллюэна (см. формулу (6)), где для наших образцов $E_z = 60 \text{ meV}$, $B_{MP} = 1.5 \text{ T}$, $T_0 = 4.2 \text{ K}$.

Таким образом, накладывая эти два механизма: постепенное высвобождение носителей из более глубоких ловушек и температурное разрушение поляронного состояния, и варьируя параметры модели E_0 ($\sim 10 \text{ мэВ}$) и ΔE ($\sim 20 \text{ мэВ}$), можно описать полученную на эксперименте температурную зависимость положения линии излучения МП (рис.14).

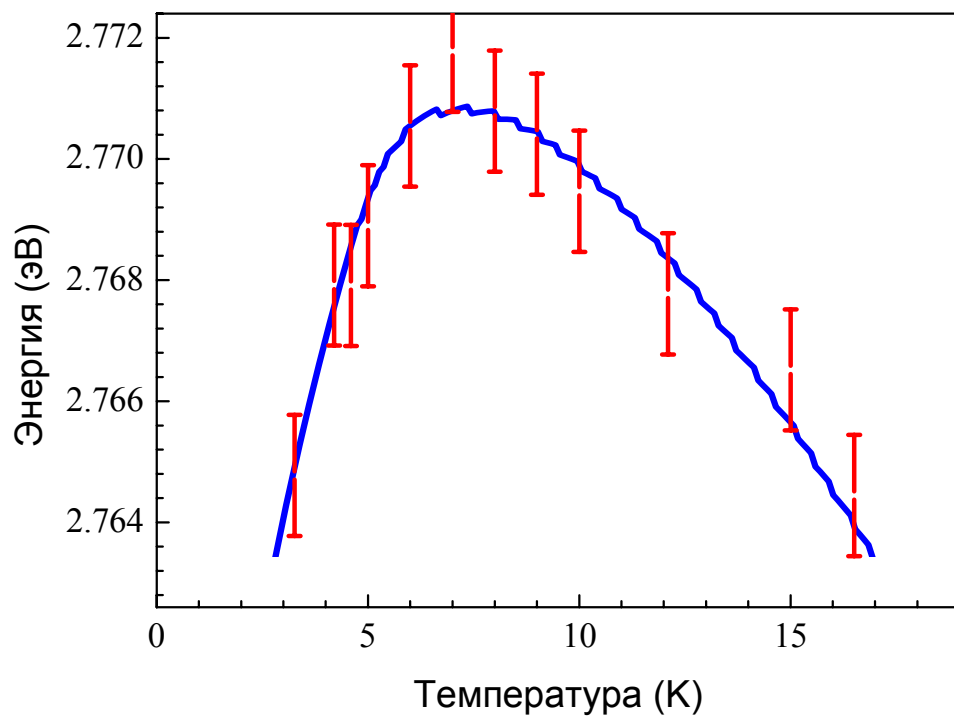


Рис. 14. Результирующая модельных кривых (синей и зеленой кривых на рис.12) совпадает с полученной экспериментальной температурной зависимостью.

7. Заключение.

На основании анализа приведенной выше модели уточненная интерпретация основных полос ФЛ в квантовых ямах $Zn_{1-x}Mn_xSe/ZnS_ySe_{1-y}$ выглядит следующим образом. Полоса ФЛ с наибольшей энергией отвечает рекомбинации почти свободных электронов и дырок, характеризуется очень коротким временем свечения и отсутствием влияния магнитной локализации. Полоса ФЛ с меньшей энергией во время действия фотовозбуждения отвечает рекомбинации почти свободных электронов и локализованных дырок. Поскольку роль магнитной локализации в формировании этой полосы велика, она может быть названа полосой излучения связанного экситонного магнитного полярона. После окончания действия импульса фотовозбуждения полоса связанного МП определяется рекомбинацией глубоко связанных локализованных электронов и дырок, чем и объясняется ее спектральное положение и долгая неэкспоненциальная кинетика свечения.

Таким образом, в результате проведенных исследований было изучено влияние долгоживущих (более 10нс), связанных на локализованных тяжелых дырках магнитных поляронов на формирование спектральных особенностей и температурное поведение магнитофотолюминесценции в сверхрешетках второго типа на основе $ZnMnSe/ZnSSe$. Показано, что все наблюдаемые на эксперименте особенности определяются конкуренцией магнитной локализации (образование МП) тяжелых дырок в слое $ZnMnSe$ и спектральной диффузией носителей по ловушкам с различной глубиной залегания. Построенная феноменологическая модель позволяет количественно описать все наблюдаемые на эксперименте особенности ФЛ.

8. Литература.

- [1] P.Recher, E.V.Sukhorukov, D.Loss. “Quantum Dot as Spin Filter and Spin Memory” //Phys. Rev. Lett. **85**, 1962-1965 (2000).
- [2] S.A. Wolf, D.D. Awschalom, R.A. Buhrman, J.M. Daughton, S. von Molnár, M.L. Roukes, A.Y. Chtchelkanova, and D.M. Treger. “Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future” //Science **294**, 1488 - 1495 (2001).
- [3] D.D. Awschalom, J.M. Kikkawa. //Physics Today **52**, 33 (1999).
- [4] P. Ball. “Meet the spin doctors” //Nature **404**, 918-921 (2000).
- [5] K.Furdyna. “Diluted magnetic semiconductors” //J. Appl. Phys. **64**, R29-R64 (1988).
- [6] С.М. Рябченко, Ю.Г. Семенов. //ЖЭТФ **84**, 1419 (1983).
- [7] I.A. Merkulov, G. R. Pozina, D. Coquillat, N. Paganotto, J. Siviniant, J.P. Lascaray, and J. Cibert. “Parameters of the magnetic polaron state in diluted magnetic semiconductors Cd-Mn-Te with low manganese concentration” //Phys. Rev. B **54**, 5727-5731 (1996).
- [8] T.Dietl. “Diluted magnetic semiconductors” //in: *Handbook of semiconductors*, Vol.3b, ed. by S.Mahajan (North-Holland, Amsterdam 1994), p.1252-1342.
- [9] Diluted magnetic semiconductors ed. by J.K.Furdyna and J.Kossut// Vol.25 in: *Semiconductors and Semimetals*, (Academic Press, London 1988), p.1-460.
- [10] J.K.Furdyna. “Diluted magnetic semiconductors” //J.Appl.Phys. **64**, R29-R64 (1988).
- [11] D. Keller, D. R. Yakovlev ^{*}, B. König, W. Ossau, Th. Gruber, A. Waag, L. W. Molenkamp, A. V. Scherbakov. “Heating of the magnetic ion system in (Zn, Mn)Se/(Zn, Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation” //Phys. Rev. B **65**, 035313 (2001).
- [12] С.И.Пекар. “Локальные квантовые состояния электронов в идеальном тонном кристалле” //ЖЭТФ **16**, 341 (1946).
- [13] A.Golnik, J.Gaj, M.Nawrocki, R.Planel, and C.Benoit a la Guillaume, “Optical observation of a magnetic molecule in (Cd,Mn)Te” //J. Phys. Soc. Japan, Suppl. **A49**, 819-822 (1980).
- [14] A. Twardowski, M. von Ortenberg, M. Demianiuk, R. Pauthenet. //Sol. St. Commun., **51**, 849 (1984).

- [15] C. Benoit a` la Guillaume, Yu. G. Semenov, M. Combescot. “Free magnetic polaron: A nonlinear Hamiltonian approach” //Phys. Rev. B, **51**, 14124-14133 (1995).
- [16] А.А. Торопов, А.В. Лебедев, С.В. Сорокин, Д.Д. Салнышков, С.В. Иванов, П.С. Копьев, И.А. Буянова, В.М. Чен, Б. Монемар. “Полумагнитные сверхрешетки типа II ZnMnSe/ZnSSe: рост и магнитолюминесцентные свойства” //ФТП **36**, 1372 – 1378 (2002).
- [17] A.A. Toropov, Ya.V. Terent'ev, A.V. Lebedev, S.V. Sorokin, V.A. Kaygorodov, S.V. Ivanov, P.S. Kor'ev, I.A. Buyanova, P. Bergman, B. Monemar, and W.M. Chen. “Exciton magnetic polarons in a type II ZnMnSe/ZnSSe superlattice” //Phys. Stat. Sol. (c) **1**, 847 – 850 (2004).
- [18] А.А.Торопов. Докторская диссертация. “Электронные и оптические свойства нерегулярных сверхрешеток на основе полупроводниковых соединений групп A_3B_3 и A_2B_6 ”, Санкт-Петербург, 2005г.