

# ЭКСИТОНЫ В ИСКУССТВЕННЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ В РЕЖИМЕ СЛАБОГО ПРОСТРАНСТВЕННОГО КОНФАЙНМЕНТА

*C. B. Зайцев\**

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

*M. K. Вельш\*\*, A. Forchel\*\**

*Technische Physik, Universität Würzburg, Am Hubland  
D-97074, Würzburg, Germany*

*Г. Бахер\*\**

*Lehrstuhl für Werkstoffe der Elektrotechnik, Universität Duisburg-Essen  
D-47057, Duisburg, Germany*

Поступила в редакцию 22 января 2007 г.

Методами стационарной оптической спектроскопии изучены экситонные состояния в индивидуальных квантовых точках, полученных методом селективной интердиффузии в квантовых ямах CdTe/CdMgTe. Индуцированная отжигом диффузия атомов Mg в глубь квантовой ямы, существенно усиленная под SiO<sub>2</sub>-маской, приводит к модуляции ширины запрещенной зоны в плоскости ямы с минимумами потенциала в области апертур маски. Возникающий латеральный потенциал высотой от 30 до 270 мэВ и с характерным масштабом около 100 нм эффективно локализует носители, образующие квазинульмерные экситоны в режиме слабого пространственного конфайнмента. Детальные магнитооптические исследования свидетельствуют о существенной роли кулоновских корреляций в формировании экситонных состояний в таком режиме, что проявляется, в частности, в локализации волновой функции носителей на масштабах, значительно меньших масштаба латерального потенциала. Обсуждены особенности межуровневого расщепления, энергии связи биэкситона и диамагнитного сдвига. Сильная зависимость межуровневой релаксации от величины межуровневого расщепления («фононное горло») указывает на слабость альтернативных механизмов релаксации в изученных квантовых точках. Заполнение возбужденных состояний подчиняется принципу Паули, что свидетельствует о применимости оболочечной модели многоэкситонных состояний в квантовых точках в условиях слабого пространственного конфайнмента.

PACS: 73.21.La, 73.22.Dj, 81.07.Ta

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Низкоразмерные полупроводниковые гетероструктуры вызвали повышенный интерес за последние десятилетия. Возможность контролировать уровни энергии носителей и их пространственную локализацию сделала такиеnanoструктуры идеальным объектом для изучения фундаментальных явлений в твердых телах. Успехи в изучении и применении двумерных систем привели к открытию

как новых физических эффектов [1], так и к появлению многочисленных прикладных оптоэлектронных применений [2, 3].

Квантовые точки (КТ) как нульмерный (0D) объекты привлекли особый интерес, поскольку полная пространственная локализация носителей приводит к наиболее яркому проявлению низкоразмерных эффектов [4–6]. Спектры излучения КТ определяются излучательной рекомбинацией скоррелированных кулоновским взаимодействием электрон-дырочных пар, или экситонов, заполняющих соответствующие состояния (оболочки) в условиях 3D-конфайнмента, а также процессами релаксации

\*E-mail: zaitsev@issp.ac.ru

\*\*M. K. Welsch, A. Forchel, G. Bacher

между состояниями. С практической точки зрения важно знать, как устроены многочастичные электрон-дырочные состояния в квантовой точке, каким образом происходит заполнение этих состояний при увеличении числа электрон-дырочных пар, а также влияние межуровневой релаксации на их равновесное заполнение. В полупроводниковых КТ конфайнмент, удерживающий носители в пределах заданного геометрического масштаба, определяется разрывами энергетических зон на гетерограницах, при этом геометрические формы и симметрийные свойства самого конфайнмента весьма разнообразны. Кроме того, в электрически нейтральных квантовых точках, в отличие от атомов, при увеличении числа экситонов одновременно заполняются как электронные, так и дырочные оболочки. В этом отношении ситуация заполнения оболочек электронно-дырочными парами в квантовых точках более соответствует многоэкситонным комплексам в объемных многодолинных полупроводниках (см., например, [7]).

В настоящее время наиболее полно технологически отработанным и детально изученным типом КТ являются самоорганизованные точки, получаемые методом молекулярно-пучковой эпитаксии с прерыванием роста [5]. Получаемые таким образом КТ обычно находятся в режиме сильного пространственного конфайнмента, когда энергия размерного квантования существенно больше кулоновской энергии взаимодействия электронно-дырочной пары в КТ или, что эквивалентно, характерный размер локализующего потенциала меньше 3D-радиуса Бора экситона.

Теоретическому исследованию экситонных состояний в режиме сильного конфайнмента КТ посвящен целый ряд работ [8–11]. На наш взгляд, детальный теоретический анализ оболочечного устройства многоэкситонных состояний в КТ, а также обсуждение ожидаемых закономерностей в спектрах фотoluminesценции (ФЛ) при аннигиляции экситонов в зависимости от заполнения этих оболочек экситонами, содержится в работе [8]. В экспериментах [5, 12] поведение спектров ФЛ экситонов в зависимости от заполнения соответствующих орбиталей для индивидуальных самоорганизованных КТ согласуется, по крайней мере качественно, с выводами работы [8]. Наблюдаемые расхождения между теорией и экспериментом связаны, в частности, с несимметричностью потенциала межчастичных взаимодействий носителей в КТ. Эта несимметричность проявляется в том, что биэкситон в квантовых точках всегда имеет конечную величину энергии связи, составляющую

вплоть до 10 % от величины экситонного Ридберга.

В противоположность эпитаксиальным методикам роста, применение электронной нанолитографии позволяет получать индивидуальные КТ с контролируемыми размерами. Так, в работе [13] детально исследовались экситоны и многоэкситонные комплексы в КТ цилиндрической и прямоугольной формы, полученных травлением исходной КЯ InGaAs/GaAs. Латеральные размеры КТ варьировались от 5 нм вплоть до 100 нм и таким образом был реализован предельный переход от ситуации 3D к 2D-конфайнменту. Было обнаружено, что величина спинового расщепления оказывается чувствительной к конфайнменту и растет при уменьшении линейных размеров КТ. Также в работе [13] показано, что при числе экситонов в квантовой точке  $N > 2$  происходит заполнение более высоко расположенных по энергии состояний (электронно-дырочных оболочек), происхождение которых связано с размерным квантованием. Важно отметить, что стабильность таких многоэкситонных комплексов обусловлена исключительно 3D-конфайнментом.

В то время как прямое применение нанолитографии с последующим травлением [14] создает поверхностные состояния на краях, приводящие к нерадиационной рекомбинации, перспективным направлением является селективная интердиффузия между барьерами и исходной КЯ [15]. Селективная интердиффузия приводит к модуляции ширины запрещенной зоны в плоскости ямы и, как следствие, к латеральной локализации носителей. Таким образом были впервые получены индивидуальные КТ в гетероструктурах на основе GaAs/AlGaAs, где селективная интердиффузия была вызвана мощным фокусированным лазерным пучком [16]. Другим реализованным на практике способом была селективная ионная имплантация в КЯ CdTe/CdMnTe с последующим кратковременным отжигом [17]. Оба метода приводят к эффективной локализации носителей и образованию квазинульмерных экситонов, отчетливо идентифицированным по узким спектральным линиям основного и возбужденных состояний.

В настоящей работе изучены основные магнитооптические свойства излучательной рекомбинации индивидуальных КТ, полученных методом селективной интердиффузии в КЯ на основе CdTe/CdMgTe в двух предельных случаях мелкого и глубокого латерального локализующего потенциала с характерным масштабом около 100 нм. В обоих случаях реализуется предел слабого конфайнмента. Важный вывод работы состоит в том, что представления об оболочечном строении многоэкситонных комплекс-

сов в квантовой точке оказываются конструктивными и в условиях слабого конфайнмента, когда характерный размер локализующего потенциала больше 3D-радиуса Бора экситона.

Изучение двух предельных случаев слабого конфайнмента глубины локализующего потенциала позволило также исследовать еще такой важный для оптоэлектронных приложений вопрос, как темп межуровневой релаксации, определяющий эффективность сбора носителей в основное состояние. Предсказанный в работе [18] эффект «фононного горла», приводящий к существенному замедлению релаксации, на практике часто не имеет места за счет значительного вклада других механизмов релаксации, таких как оже-процессы, многофононная релаксация и др. Выяснение условий эффективности того или иного механизма представляется чрезвычайно важным для практических приложений [2, 3].

Статья организована следующим образом: в разд. 2 мы кратко опишем методику получения индивидуальных КТ и детали оптических измерений, в разд. 3 — основные спектральные особенности излучательной рекомбинации экситонов при низкой температуре и варьировании мощности фотовозбуждения, в разд. 4 обсудим одночастичные состояния и приведем пример их расчета, в разд. 5 рассмотрим оптические свойства КТ в магнитном поле и в разд. 6 детально обсудим основные физические особенности 0D-экситонов в режиме слабого пространственного конфайнмента.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДЕТАЛИ

В работе изучались КТ, полученные на основе двух номинально недопированных гетероструктур, содержащих КЯ CdTe/CdMgTe. Первая структура (*N*1) имела КЯ шириной  $L_z = 6$  нм и барьеры с составом Cd<sub>0.8</sub>Mg<sub>0.2</sub>Te, вторая структура (*N*2) —  $L_z = 5$  нм и барьеры Cd<sub>0.6</sub>Mg<sub>0.4</sub>Te. Гетероструктуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на толстом буферном слое CdTe, предварительно нанесенном на ориентированную в плоскости (001) подложку Cd<sub>0.96</sub>Zn<sub>0.04</sub>Te. Толщина внутреннего и внешнего барьеров CdMgTe составляла 25 нм.

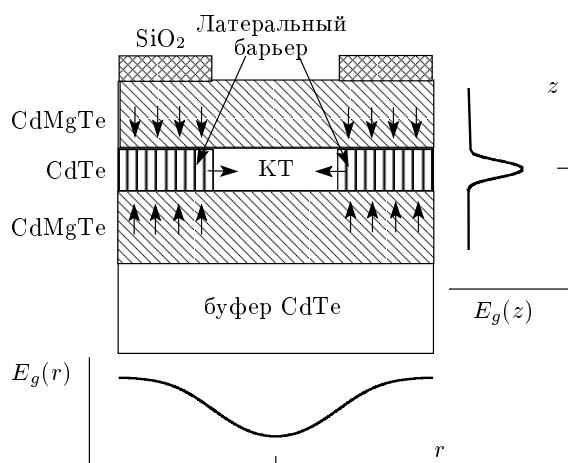
На поверхность гетероструктур термически нанылся тонкий покровный слой SiO<sub>2</sub> толщиной 80 нм. С помощью электронной литографии высокого разрешения в слое формировались круглые от-

верстия диаметром вплоть до  $D = 140$  нм. Детальное описание особенностей этапа химического травления, использованного в процессе литографии, дано в работе [19].

Ранее нами было продемонстрирована возможность получения индивидуальных КТ [19] путем селективной интердиффузии между атомами группы II в КЯ на основе CdTe/CdMgTe, существенно усиленной в присутствии тонкого верхнего покровного слоя SiO<sub>2</sub>. Последующий отжиг в течение двух часов в камере высокого вакуума в атмосфере паров Zn с давлением  $5 \cdot 10^{-7}$  мбар и при температуре 450 °C приводит к сильной селективной диффузии атомов Mg из барьера в глубь КЯ под слоем SiO<sub>2</sub>, что позволяет достичь высоких значений латерального локализующего потенциала вплоть до 270 мэВ. При этом сохраняется оптическое качество — высокий квантовый выход ФЛ гетероструктуры, что позволило успешно применить методику для создания индивидуальных КТ [19]. Именно эта методика использовалась для создания КТ с глубоким локализующим потенциалом на основе гетероструктуры *N*2.

Для получения КТ с малой высотой латерального барьера был применен упрощенный вариант методики селективной интердиффузии. Так, структура *N*1 после нанесения маски из SiO<sub>2</sub> была подвергнута быстрому отжигу в инертной атмосфере аргона в течение одной минуты при температуре 410 °C и при нормальном атмосферном давлении.

Спектры магнитофотолюминесценции измерялись в сверхтекучем He ( $T = 1.5$  K) в оптическом криостате со сверхпроводящим магнитом до  $B = 8$  Тл и регистрировались с помощью CCD-камеры на монохроматоре с базой 0.6 м и решеткой 1200 мм<sup>-1</sup>. Для возбуждения использовался непрерывный Ar<sup>+</sup>-лазер с энергией надбарьерного возбуждения 2.41 эВ ( $\lambda_{ex} = 514.5$  нм). Лазерный луч фокусировался в пятно диаметром около 30 мкм в области апертуры маски, расстояние между которыми составляло 200 мкм. Максимальная плотность мощности возбуждающего лазера  $P_{exc}$ , используемая при изучении возбужденных и биэкситонных состояний, составляла около 100 Вт/см<sup>2</sup> для избежания существенного перегрева. Максимальная температура в пятне возбуждения, оцененная из сдвига энергии экситона при максимальной  $P_{exc}$ , не превышала 10 K. Образец *N*2, полученный в условиях длительного отжига, исследовался на другой установке с использованием второй гармоники непрерывного Nd-YAG-лазера ( $\lambda_{ex} = 532$  нм) с меньшей надбарьерной энергией возбуждения, что позволило существенно снизить перегрев.



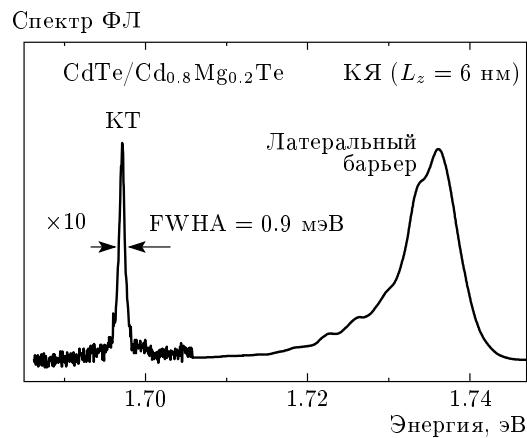
**Рис. 1.** Схема применения селективной интердиффузии для получения индивидуальных КТ. Стрелками показаны места существенного усиления диффузии атомов Mg из барьера под маской  $\text{SiO}_2$ . Тонкие линии показывают возникающий в плоскости КЯ латеральный потенциал под маской  $E_g(r)$  (горизонтально) и вертикальный потенциал  $E_g(z)$  (вертикально)

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

#### 3.1. Основные оптические свойства искусственных квантовых точек

Основная идея применения селективной интердиффузии иллюстрируется на рис. 1. Как указано стрелками, диффузия существенно усиливается под слоем  $\text{SiO}_2$ , оставаясь значительно слабее под открытыми участками гетероструктуры. Это приводит к увеличению ширины запрещенной зоны в плоскости ямы под маской и, как следствие, возникновению латерального локализующего потенциала (показано тонкими линиями) с областью локализации в свободных от слоя  $\text{SiO}_2$  участках КЯ. Возникший латеральный потенциал, как показывают приведенные ниже исследования ФЛ при нерезонансном надбарьерном возбуждении, эффективно локализует фотовозбужденные носители в области апертуры маски, которые связываются в квазинульмерные экситоны.

На рис. 2 приведен спектр ФЛ для КТ с диаметром апертуры  $D = 300$  нм, полученный в структуре N1 методом быстрого отжига. В спектре наблюдаются две линии: первая, более сильная и широкая линия, и вторая, находящаяся ниже по энергии на 40 мэВ, и имеющая интенсивность на порядок меньше. Широкая линия отвечает рекомбинации 2D-экзитонов в области КЯ под маской и



**Рис. 2.** Спектр ФЛ гетероструктуры N1 в открытом месте маски  $\text{SiO}_2$  с апертурой  $D = 300$  нм после отжига (1 мин,  $410^\circ\text{C}$ )

спектрально существенно сдвинута в сторону высоких энергий в результате селективной диффузии. Сдвиг энергии оптического перехода в КЯ составляет почти 90 мэВ относительно линии ФЛ исходной КЯ, что меньше, чем при длительном отжиге (около 300 мэВ) [19], однако также позволяет достигнуть эффективной локализации фотовозбужденных носителей в области апертуры маски. По оценкам из сдвига энергии оптического перехода в результате диффузии увеличение коэффициента диффузии составляет около 30–50 раз по сравнению с КЯ без маски. Причина такого усиления диффузии под слоем  $\text{SiO}_2$  в настоящее время недостаточно изучена и до сих пор дискутируется [20]. Рассматриваются два аспекта проблемы: во-первых, слой  $\text{SiO}_2$  может служить источником дефектов, которые усиливают диффузационный процесс, и, во-вторых, дефекты могут возникать в процессе самого отжига вследствие различия коэффициентов термического расширения маски и гетероструктуры. Метод селективной диффузии позволяет изменять ширину запрещенной энергетической щели в КЯ контролируемым образом с сохранением хорошего оптического качества, что было продемонстрировано нами ранее для другого варианта этого метода, использованного при получении КТ с глубоким локализующим потенциалом (структурой N2) [19].

Отличительной особенностью второй, более узкой и имеющей меньшую энергию линии (рис. 2), является ее малая спектральная полуширина (менее 1 мэВ), что существенно меньше, чем в исходной КЯ (порядка 5 мэВ). Именно эта особенность, наиболее характерная для КТ [5], а также зависи-

мости спектрального поведения от мощности возбуждения  $P_{exc}$  и магнитного поля, обсуждаемые ниже, позволили нам заключить, что данная линия отвечает излучению из КТ, возникшей под апертурой маски в результате селективной диффузии атомов Mg из барьера в глубь КЯ. Уменьшению ширины линии оптического перехода обусловлено полной 3D-локализацией носителей возникшим латеральным потенциалом КЯ и, как следствие, давлением неоднородного механизма уширения линий, присущего КЯ. Тем не менее, ее величина значительно превышает ширину линии, наблюдавшуюся в естественных [21] или самоорганизованных КТ [22]. Ширина линии порядка 1 мэВ также наблюдалась в КТ, полученных методами селективной интердиффузии [16], глубокого химического травления [14], а также в КТ, индуцированных механическим напряжением в плоскости КЯ [23]. Согласно выводам работы [14], механизмом, приводящим к существенно большей ширине линии в КТ исходно большого диаметра (по сравнению с самоорганизованными точками), является квазиупругое рассеяние между близкими, вырожденными уровнями энергии КТ на статических дефектах, таких как флуктуации ширины или состава исходной КЯ. В условиях, когда характерный масштаб дефектов не превышает диаметр КТ, что обычно выполняется для значений  $D \geq 10$  нм [24], такое рассеяние приводит к однородной полуширине линии порядка 1 мэВ и более, что было продемонстрировано экспериментально и подтверждено расчетом в работе [14].

Таким образом, методика быстрого отжига позволяет достичнуть эффективной локализации фотовозбужденных носителей в области апертуры маски, т. е. искусственно получать КТ. Глубина латерально-локализующего потенциала, оцениваемая по разности энергий линий ФЛ латерального барьера и КТ, составляет 30–40 мэВ для методики быстрого отжига и около 300 мэВ при длительном отжиге. Далее мы рассмотрим оптические свойства получаемых таким образом КТ и обсудим те их особенности, которые отражают энергетический спектр носителей, локализованных в них, а также режим их локализации.

### 3.2. Биэкситоны и возбужденные экситонные комплексы в квантовых точках

Стандартным методом изучения возбужденных экситонных состояний и многоэкситонных комплексов в КТ является исследование ФЛ при высоких уровнях оптического возбуждения [12, 13]. На рис. 3

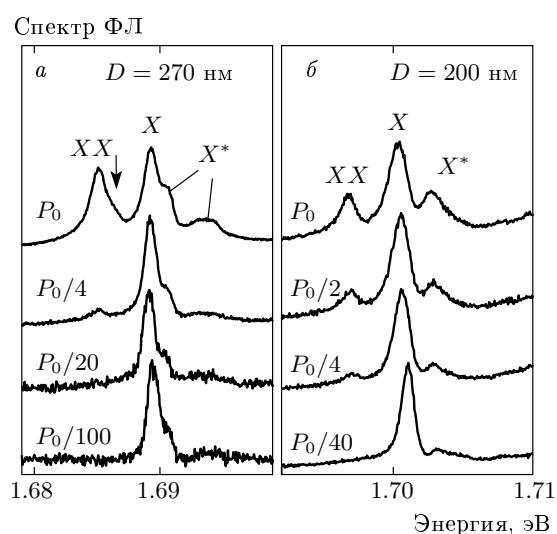
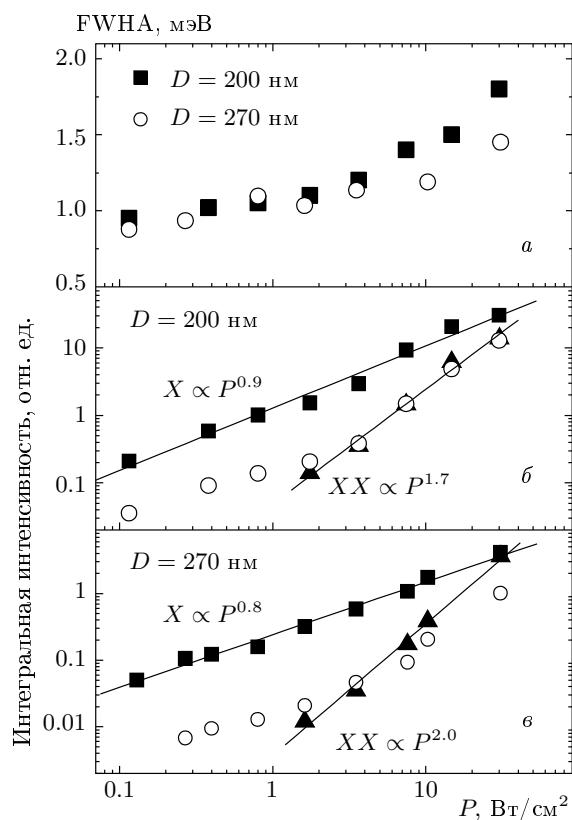


Рис. 3. Спектры ФЛ в структуре N1 с апертурой маски КТ 270 нм (а) и 200 нм (б) при различных уровнях  $P_{exc}$  с максимальной мощностью  $P_0 = 30$  Вт/см<sup>2</sup>. Символы  $XX$ ,  $X$  и  $X^*$  обозначают соответственно биэкситон, основное и возбужденные состояния экситона. Жирная стрелка отмечает плечо у линии  $XX$ , обсуждаемое в тексте

представлены спектры ФЛ двух КТ с разным диаметром апертуры в структуре N1 при различных уровнях фотовозбуждения  $P_{exc}$ . При низких значениях  $P_{exc}$  в спектрах обеих КТ доминирует одна линия  $X$ , отвечающая излучению из основного состояния экситона в КТ, с полушириной линии меньше, чем 1 мэВ.

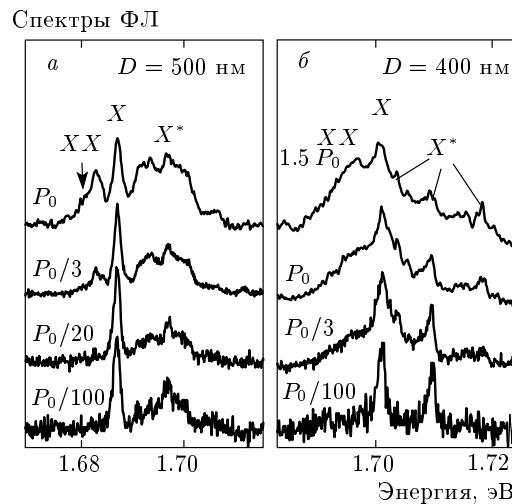
С ростом  $P_{exc}$  в спектре КТ с  $D = 200$  нм со стороны высоких энергий возгорает линия  $X^*$ , отвечающая излучению из возбужденного экситонного состояния (рис. 3б) и отстоящая от линии  $X$  на 2.5 мэВ. Поведение КТ с большим  $D = 270$  нм несколько сложнее. На рис. 3а видно, что у данной КТ структура возбужденных состояний сложнее: первое возбужденное состояние находится выше по энергии на  $\Delta E \approx 1.3$  мэВ и проявляется в виде плеча линии основного перехода  $X$ , следующее — выше на  $\Delta E \approx 4$  мэВ и также состоит по меньшей мере из двух широких (больше 1.5 мэВ) спектрально перекрывающихся линий с разницей энергий около 1.1 мэВ. Причины такого различия для двух КТ с разными  $D$  мы обсудим ниже, когда рассмотрим пример расчета одночастичных состояний, формирующих экситоны в исследованных КТ, и их основные пространственные и энергетические характеристики.

При высоких уровнях оптического возбуждения,



**Рис. 4.** а) Зависимость полуширины линии  $X$  от уровня фотовозбуждения  $P_{exc}$  для случаев (б) и (в). Зависимости от  $P_{exc}$  интегральных по спектру интенсивностей линий  $XX$ ,  $X$  и  $X^*$  ФЛ для КТ на рис. 3 с апертурой маски  $D = 200$  нм (б) и  $D = 270$  нм (в)

$P_{exc} \geq 2$  Вт/см<sup>2</sup>, со стороны низких энергий в спектрах ФЛ появляется линия  $XX$ , которую мы относим к излучению биэкситона, т. е. излучательному распаду комплекса из двух экситонов с антипараллельными спинами, находящихся в основном состоянии в КТ. Такое отнесение линии  $XX$  обусловлено двумя обстоятельствами: ее спектральным положением ниже энергии основного состояния  $X$  и сверхлинейной зависимостью ее интенсивности от  $P_{exc}$ , близкой к квадратичной. Такие зависимости, представленные на рис. 4б,в, являются характерными для биэкситона и отражают двухчастичную кинетику его образования. Отметим также тот факт, что одновременно с появлением линии  $XX$  также происходит изменение зависимости интенсивности линии  $X^*$  от  $P_{exc}$  на сверхлинейную, аналогично линии биэкситона. Изменение характера зависимости также указывает на переход к двухчастичному заполнению возбужденного состояния. Такое совпадение не случайно и детально мы его рассмотрим ниже, при об-



**Рис. 5.** Спектры ФЛ в структуре  $N2$  с апертурой маски КТ 500 нм (а) и 400 нм (б) при различных уровнях  $P_{exc}$  с максимальной мощностью  $P_0 = 600$  Вт/см<sup>2</sup>. Жирная стрелка отмечает плечо у линии  $XX$ , обсуждаемое в тексте

суждении оболочечной модели КТ.

Во всех исследованных КТ полуширина линии основного экситонного перехода (линии  $X$ ) возрастает с ростом  $P_{exc}$  (рис. 4а). Для ее нахождения в случае сложной спектральной формы, как на рис. 3а, проводилась спектральная деконволюция линии ФЛ. Как было продемонстрировано в работах [25–27], рост ширины прямо связан с качеством гетероструктуры и определяется флюктуирующими зарядами, возникающими в результате захвата носителей на дефекты и/или ловушки в самой КТ или окружающих КТ областях барьеров. Захваченные носители вследствие эффекта Штарка приводят к спектральной диффузии линии экситона в КТ с характерными корреляционными временами от нескольких секунд до нескольких десятков минут, причем рост  $P_{exc}$  приводит к росту амплитуды флюктуаций спектрального положения линии экситона. Одним из следствий данного механизма является увеличение спектральной ширины линии с ростом  $P_{exc}$ , наблюдаемой при длительном времени накопления сигнала, которое в наших экспериментах варьировалось от одной минуты при минимальных уровнях фотовозбуждения до десяти секунд при максимальном.

На рис. 5 приведены спектры ФЛ при различных  $P_{exc}$  для двух КТ с разным диаметром апертуры в структуре  $N2$ . Отметим существенное отличие от случая КТ в структуре  $N1$ : возбужденные состо-

ияния наблюдаются даже при минимальных уровнях фотовозбуждения, при этом интенсивность группы линий  $X^*$  уже сравнима с интенсивностью линии  $X$ , что непосредственно указывает на подавленную межуровневую энергетическую релаксацию носителей в таких КТ. Кроме того, характерные значения межуровневого расщепления  $\Delta E \sim 10$  мэВ, что в несколько раз больше, чем в структуре  $N1$ . С ростом  $P_{exc}$  относительная интенсивность линий  $X^*$  в спектрах растет, причем более сильный рост наблюдается для линий, ближайших к линии основного перехода  $X$ , что, по-видимому, отражает сложную межуровневую кинетику, а также появляется линия биэкситона.

Причины такого различия двух структур мы обсудим ниже, отметим, что они отражают фундаментальные свойства энергетической релаксации в КТ.

#### 4. РАСЧЕТ

В настоящее время развито несколько подходов для расчета и описания экситонных состояний в КТ [6]. Наиболее распространенный из них — метод конфигурационного взаимодействия, в котором экситонные состояния строятся в виде линейной комбинации произведений одночастичных состояний электронов и дырок. В случае «больших» КТ, с характерными размерами  $D$ , большими, чем объемный радиус Бора экситона  $a_B^*$ , реализуется так называемый режим слабого пространственного конфайнмента, при котором межуровневая разница энергии носителей становится меньше кулоновской и аккуратный расчет требует выбора большого одночастичного базиса, что приводит к значительным вычислительным трудностям [28, 29]. Другой подход основывается на адекватном выборе вариационной волновой функции экситона [30, 31]. Интересный и важный результат работ [30, 31] состоит в том, что рассмотрение квантования движения экситона как целой частицы с общей суммарной массой электрона и дырки в потенциале КТ оказывается неверным и реальная область движения сужается на величину порядка  $a_B^*$  в силу большей массы дырки и сильных кулоновских корреляций. Окончательный результат существенно зависит от отношения масс носителей и асимптотически приближается к простой формуле квантования центра масс экситона в пределе очень больших значений  $D > 10a_B^*$  [30, 31]. В целом, можно заключить сложность количественного описания экситонных состояний в режиме слабого пространственного конфайнмента.

Для понимания характерных особенностей оптических свойств и спектров, а также природы экситонных состояний в КТ, полученных методикой селективной интердиффузии, мы провели расчет низших одночастичных состояний носителей в Г-точке, формирующих экситоны в исследованных КТ: электронов в зоне проводимости  $\Gamma_6$  и тяжелых дырок в валентной зоне  $\Gamma_8$ , поскольку CdMgTe является прямозонным полупроводником со структурой цинковой обманки. Зависимость ширины запрещенной зоны  $E_g$  (1) от концентрации атомов Mg в тройном соединении  $Cd_{1-x}Mg_xTe$  хорошо известна [32]. Для расчета были использованы эффективные массы электронов  $m_e = 0.088m_0$  и тяжелых дырок в плоскости  $m_h^r = 0.145m_0$  и по оси роста  $z - m_h^z = 0.485m_0$  [33]. Предполагается также, что пространственное квантование и латеральное напряжение достаточно сильно расщепляют состояния легких и тяжелых дырок [33, 34]. Важный для расчетов параметр, такой как отношение разрывов потенциала в зоне проводимости и валентной зоне для гетерограницы CdTe/Cd(Mn,Mg)Te, также подробно исследовался в работе [33] и, как было показано, подчиняется обычному для соединений II-VI групп правилу 2:1. Зависимость ширины запрещенной зоны  $E_g$  от концентрации  $x_{Mg}(r)$  атомов Mg в тройном соединении (Cd,Mg)Te выражается в виде [32]

$$E_g(r) [\text{эВ}] = 1.606 + 1.755x_{Mg}(r). \quad (1)$$

Расчет проведен в рамках адиабатического приближения [35], разделяющего движение носителей в направлении роста гетероструктуры ( $z$ ) и в плоскости КЯ. Рассматривается задача с цилиндрической симметрией, что отражает круглую форму апертур маски и изотропию диффузии, приводящей к появлению латерального потенциала. В этом случае огибающая волновой функции носителей представляется в виде произведения нормальной и радиальной компонент,  $\psi(r, \theta, z) = (1/\sqrt{2\pi})e^{im\theta}g(z)f_m(r)$ , где  $m$  — проекция орбитального момента импульса на ось  $z$ , отражающая аксиальную симметрию задачи, а уравнение Шредингера для электронов и дырок распадается на два уравнения, зависящих соответственно только от нормальной координаты  $z$  и радиуса-вектора  $r$  в плоскости, отсчитываемого от центра КТ:

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^z} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(r, z) \right] g(z) = E(r)g(z), \quad (2)$$

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^r} \frac{1}{r^2} \left( r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} - m^2 \right) + E(r) \right] f_m(r) = E_0 f_m(r), \quad (3)$$

где  $E_0$  — энергия одночастичного состояния. Для простоты мы не пишем индекса подзоны размерного квантования по оси роста КЯ, поскольку отщепление первой возбужденной подзоны составляет несколько десятков мэВ как для электронов, так и для дырок, что заведомо больше характерных значений расщеплений состояний в КТ, и поэтому в данной задаче эти подзоны могут не рассматриваться. Потенциальный профиль зоны проводимости и валентной зоны структуры в направлении  $z$  был аппроксимирован потенциалом прямоугольной формы для всех значений  $r$ , отсчитываемого от центра КТ. Такой выбор потенциала является предельно упрощенным, поскольку реальный потенциальный профиль сложнее и зависит от условий роста, а также послеростовых изменений [36]. Использованное упрощение является обычным для расчета одночастичных состояний в КТ и дает хорошее количественное и качественное описание картины экситонных состояний в случае высоких потенциальных барьеров по оси роста  $z$  как в одиночных, так и в двойных КТ [35, 37, 38], что дает нам основание считать его применимым к описанию экситонных состояний в исследованных гетероструктурах, поскольку разрыв зон  $E_g$  ( $\text{Cd}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{Te}$ )– $E_g$  ( $\text{CdTe}$ ) > 300 мэВ.

Характерной особенностью адиабатического приближения является тот факт, что на первом этапе решается уравнение (2) при фиксированном значении радиуса-вектора  $r$  и находится энергия нормального квантования  $E(r)$ , которая зависит от  $r$  и является эффективным латеральным потенциалом для движения носителя в плоскости (3). Используя тот факт, что величина разрыва зон значительно больше энергий нормального квантования в основной подзоне КЯ ( $E_e^0 = 50$  мэВ и  $E_h^0 = 12$  мэВ для электронов и дырок в структуре N1, соответственно), а также тем, что концентрация продиффундировавших атомов Mg мала, можно воспользоваться приближением «жестких» зон и написать для  $E(r)_{e,h}$

$$E_e(r) = E_e^0 + \frac{2}{3} \Delta E_g(r), \quad E_h(r) = E_h^0 + \frac{1}{3} \Delta E_g(r). \quad (4)$$

Профиль концентрации атомов  $x_{\text{Mg}}(r)$  приближенно описывается решением одномерного уравнения диффузии, выражаемым через функцию ошиб-

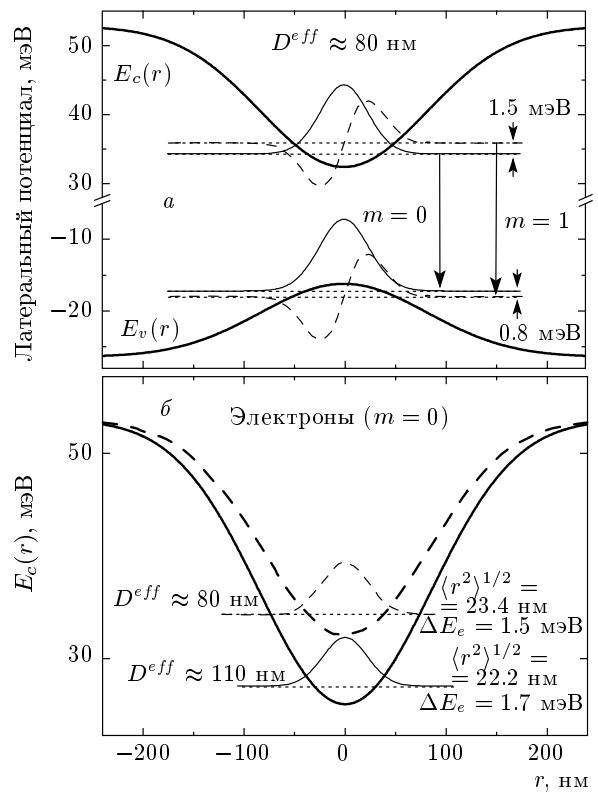


Рис. 6. a) Рассчитанные латеральный потенциал и радиальные компоненты волновой функции электронов и дырок  $f_m(r)$  с проекциями орбитального момента  $m = 0$  и  $1$ . б) Волновые функции основного состояния электронов  $f_0(r)$  ( $m = 0$ ) для разных значений эффективного диаметра  $D_{eff}$

бок erf [20]:

$$x(r) = x(0) + (x(\infty) - x(0)) \times \left\{ 1 + 0.5 \operatorname{erf} \left( \frac{r - D_{eff}/2}{2L_d} \right) - 0.5 \operatorname{erf} \left( \frac{r + D_{eff}/2}{2L_d} \right) \right\}, \quad (5)$$

где параметры  $D_{eff}$  и  $L_d$  — эффективный диаметр КТ и диффузационная длина, выражаяющаяся через коэффициент диффузии  $D_d$  и время отжига  $t_a$  как  $L_d = \sqrt{D_d t_a}$ . Такая форма латерального потенциала также является упрощением сложного трехмерного характера диффузии Mg в глубь КЯ на границе маски и строго верна только в предельном случае  $D_{eff} \gg L_d$ .

Расчеты также показывают, что локализующий латеральный потенциал в изучаемых КТ, выражаемый через функцию ошибок erf (5), с хорошей точностью может быть описан параболической зависи-

мостью вблизи центра КТ (рис. 6). Решения для такого потенциала хорошо известны и имеют вид 2D-гармонических осцилляторов Дарвина–Фока с эквидистантным энергетическим спектром [39, 40]. Состояния Дарвина–Фока классифицируются радиальным и азимутальным квантовыми числами  $n(0, 1, 2, \dots)$  и  $m(0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ , соответственно, с энергией, отсчитываемой от дна потенциала:

$$E_{n,m} = (2n + |m| + 1)\hbar\omega - \frac{1}{2}\hbar\omega_c m, \quad (6)$$

где  $\hbar\omega_c = eB/m_{eff}$  — циклотронная энергия носителя с эффективной массой в плоскости  $m_{eff}$ ,  $\hbar\omega_0$  — энергия размерного пространственного квантования в параболическом потенциале, а  $\hbar\omega = \hbar\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}$  — полная энергия [40]. Полученные в результате точного решения уравнений Шредингера (2), (3) значения энергии совпадают с вычисленными по формуле (6) с точностью 0.2 мэВ для первых трех уровней ( $B = 0$ ).

Основное состояние носителя отвечает значениям  $n = 0$  и  $m = 0$ , первое возбужденное состояние —  $n = 0$  и  $m = \pm 1$ . В нулевом магнитном поле основное состояние дважды вырождено по спину, первое возбужденное — еще дважды по азимутальному квантовому числу  $m$  и находится выше по энергии на  $\Delta E = \hbar\omega_0$ . Оптические переходы в силу симметрии задачи разрешены только между состояниями электронов и дырок с одинаковыми значениями квантовых чисел  $n$  и  $m$ . Нижние по энергии экситонные состояния, построенные из этих одиночественных состояний, обычно классифицируются по азимутальному числу  $m$  [12]. По аналогии с атомами, эти состояния называют оболочками:  $s$ -оболочка для набора квантовых чисел  $n = 0$  и  $m = 0$ ,  $p$ -оболочка — для  $n = 0$  и  $m = \pm 1$ ,  $d$ -оболочка — для  $n = 0$  и  $m = \pm 2$  и т. д. Возникновение такой терминологии связано с тем, что в оптических спектрах самоорганизованных КТ экситонные переходы из этих оболочек проявляются в виде четко выраженных, отдельных линий [8, 12]. Отметим, что энергия экситонного перехода в основном состоянии  $E_{0,0}$  определяется двумя факторами: концентрацией  $x(0)$  Mg в центре КТ, задающей фиолетовый сдвиг ширины запрещенной зоны в силу диффузии, и энергией размерного квантования  $\Delta E$  в латеральном потенциале. Первая причина приводит к фиолетовому сдвигу линии ФЛ с уменьшением апертуры маски, как видно на рис. 3 и 5. В то же время  $\Delta E$  независимо складывается из энергий размерного квантования электронов  $\hbar\omega_e$  и дырок  $\hbar\omega_h$ .

На рис. 6а представлены рассчитанные в рамках описанного приближения радиальные компоненты

волновой функции электронов и дырок  $f_m(r)$  для проекций орбитального момента  $m = 0, 1$ . Параметры расчета, такие как  $D^{eff} = 80$  нм и  $L_d = 55$  нм, а также концентрации атомов Mg в центре КТ и в глубине латерального барьера соответственно  $x(0) \approx 2.8\%$  и  $x(\infty) \approx 4.6\%$ , являются типичными для изучаемых КТ в структуре N2, со значениями энергии оптического перехода основного экситонного состояния, лежащими в диапазоне 1.69–1.71 эВ, и расщеплением основного  $X$  и первого возбужденного  $X^*$  состояний  $\Delta E \approx 2.5$ –5 мэВ. В данном расчете значения этих параметров подобраны так, чтобы описать энергетические характеристики КТ с  $D = 200$  нм с  $\Delta E \approx 2.3$  мэВ (рис. 4б). С учетом соотношения разрыва зон 2:1 расчет дает отдельно для электронов и дырок соответственно  $\hbar\omega_e = 1.5$  мэВ и  $\hbar\omega_h = 0.8$  мэВ.

Подчеркнем, что  $D^{eff}$  и  $L_d$  также *a priori* неизвестны и подгонялись. Это связано с тем, что номинальное значение диаметра апертуры  $D$  дает заведомо заниженные значения  $\Delta E < 1$  мэВ. Установленные ранее [20] значения  $L_d$  не применимы в измененных условиях методики отжига и требуют нового определения. Такое положение дел связано с отсутствием полного понимания механизма диффузии и зависимости его основных параметров от технологических условий. Однако, несмотря на большой набор свободных параметров, они могут быть однозначно определены для каждой КТ подгонкой к экспериментальным значениям энергий переходов, поскольку энергия основного экситонного состояния определяется главным образом концентрацией Mg в центре КТ  $x(0)$ , а расщепление возбужденных состояний —  $\Delta E$ -формой и высотой латерального потенциала, также зависящих от данных параметров. Это утверждение подтверждает расчет для двух значений  $D^{eff} = 80, 110$  нм, представленных на рис. 6б. Видно, что с уменьшением  $D^{eff}$  потенциал в центре КТ движется вверх по энергии,  $\Delta E$  уменьшается от 1.7 до 1.5 мэВ, а среднеквадратичное значение радиуса волновой функции  $\langle r_e^2 \rangle^{1/2}$ , в данном случае электрона, увеличивается лишь незначительно, от 22.2 до 23.4 нм. Данный расчет указывает также на тот факт, что масштаб локализации основного состояния слабо зависит от  $D^{eff}$ .

Полученные в результате подгонки значения  $D^{eff}$  дают значение диаметра апертуры маски SiO<sub>2</sub> значительно меньше номинального. Этот факт свидетельствует о сильной диффузии в плоскости КЯ, приводящей к резкому сужению эффективной апертуры маски. Как показывает приведенное выше сравнение расчета и экспериментальных данных, в

эксперименте реализуется случай  $D^{\text{eff}} \geq L_d$ , что ставит под сомнение правомерность использования решения 1D-уравнения диффузии (5). Однако и в этом случае, как показывает расчет с использованием точного 2D-решения уравнения диффузии на круглой апертуре [41], форму потенциала вблизи минимума с хорошей точностью можно аппроксимировать параболой, а спектр первых трех одночастичных состояний является эквидистантным с точностью лучше 10% (0.2 мэВ при  $\Delta E = 2\text{--}5$  мэВ). Таким образом, использование основных свойств классических решений Дарвина–Фока [39] является обоснованным и в этом случае, а полученные в результате такой подгонки значения  $D^{\text{eff}}$  и  $L_d$  можно рассматривать как оценочные. В то же время полученные из расчетов характерные радиусы областей локализации волновой функции в КТ как электронов, так и дырок с хорошей точностью совпадают и составляют  $\langle r_{e,h}^2 \rangle^{1/2} \sim 20$  нм, что существенно меньше  $D^{\text{eff}}$  и является следствием специфической формы латерального потенциала. Вместе с тем,  $\langle r_{e,h}^2 \rangle^{1/2}$  в несколько раз превышает радиус Бора экситона  $a_B^* \approx 9$  нм в CdTe [42], что указывает на необходимость учета кулоновских корреляций для корректного описания экситонных состояний в исследуемых КТ в режиме слабого пространственного конфайнмента. В связи с этим мы хотим еще раз подчеркнуть, что приведенные расчеты носят качественный, оценочный характер и служат для иллюстрации характерных особенностей волновых функций и энергетического спектра изучаемых КТ. Как будет видно из дальнейшего, влияние кулоновских корреляций, играющих важную роль в формировании экситонных состояний в данном классе КТ, оказывается существенным.

## 5. МАГНИТОФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ

Магнитооптические спектры ФЛ для КТ с  $D = 200$  нм в структуре N1, приведенные на рис. 7a, демонстрируют характерное для немагнитных КТ поведение [43, 44]: слабое зеемановское расщепление циркулярно поляризованных компонент (около 1 мэВ при  $B = 8$  Тл) и общий диамагнитный сдвиг в сторону высоких энергий того же порядка величины (рис. 7b). При этом для всех трех линий, наблюдаемых при высоких  $P_{exc}$ ,  $\sigma^+$ -поляризованная компонента выше по энергии, чем  $\sigma^-$ -компоненты, что соответствует положительному значению  $g$ -фактора экситона согласно определению, данному в работе [34]. Магнитополе-

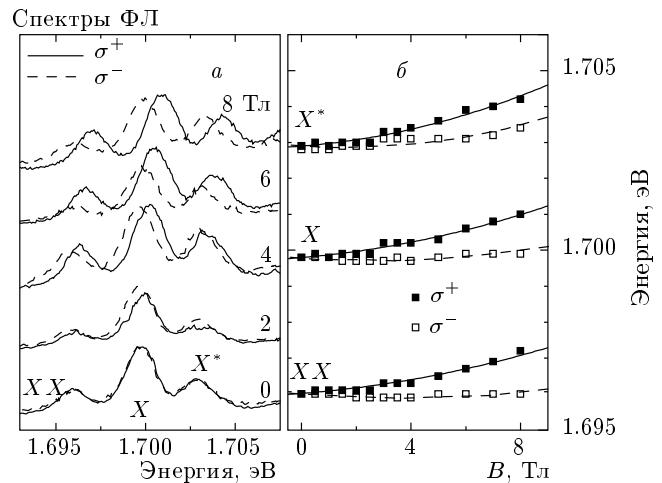


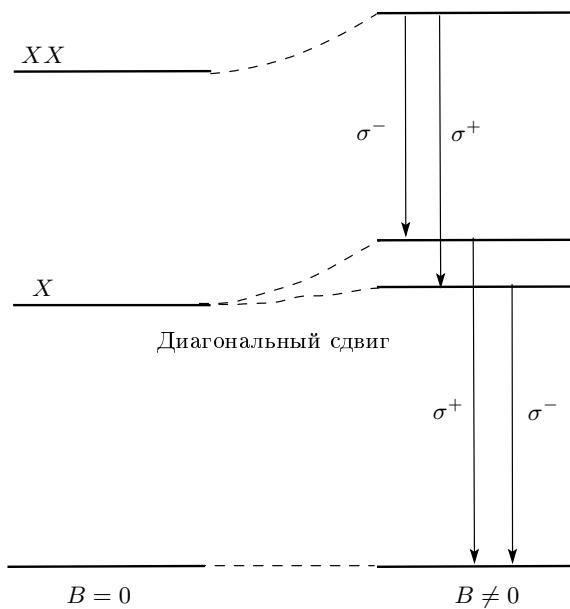
Рис. 7. a) Спектры магнитофотолюминесценции для КТ с  $D = 200$  нм в структуре N1. б) Магнитополевые зависимости энергий биэкситона, основного и возбужденного состояний экситона (соответственно  $XX$ ,  $X$  и  $X^*$ ) в  $\sigma^+$ -поляризации и  $\sigma^-$ -поляризации. Линии — результаты подгонки по формуле (7)

вые зависимости поведения линий анализировались по формуле

$$E^{\sigma^\pm} = E_{B=0} \pm \frac{1}{2} g \mu_B B + \gamma_2 B^2, \quad (7)$$

где  $g$  —  $g$ -фактор соответствующего перехода,  $\mu_B = 0.05788$  мэВ/Тл — магнетон Бора и  $\gamma_2$  — константа диамагнитного сдвига.

Результаты подгонки по формуле (7) для КТ с  $D = 200$  нм приведены на рис. 7b. Полученные значения  $g$ -фактора для биэкситона, основного и возбужденного состояний экситона равны соответственно  $g_{XX} = 2.14 \pm 0.15$ ,  $g_X = 2.25 \pm 0.1$  и  $g_{X^*} = 1.8 \pm 0.2$ . Близкие значения  $g$ -фактора для биэкситона и основного состояния экситона не вызывают удивления: поскольку основное состояние биэкситона представляет собой спиновый синглет, наблюдаемое дублетное зеемановское расщепление соответствующей биэкситонной линии отражает спиновое расщепление экситона в основном состоянии, как иллюстрирует схема переходов (рис. 8). Несколько меньшее значение величины  $g_{X^*}$  по сравнению с  $g_X$  также находит объяснение, если учесть больший характерный диаметр волновой функции носителей в возбужденном состоянии (рис. 6), что соответствует общей тенденции роста абсолютной величины  $g$ -фактора с уменьшением области пространственного конфайнмента носителей. Так, например, в КТ с  $D = 270$  нм имеем  $g_X = 1.94$ , а при  $D = 180$  нм —



**Рис. 8.** Схема уровней энергий биэкситона и основного состояния экситона ( $XX$  и  $X$ ), иллюстрирующая последовательность переходов в нулевом магнитном поле и при  $B \neq 0$

$g_X = 2.53$ . Зависимости  $g$ -фактора от характерных размеров в КЯ, квантовых проводах и КТ были систематически исследованы в работах [45, 46]. Было обнаружено сильное возрастание  $g$ -фактора при уменьшении размеров КТ, начиная с  $D \sim 5a_B^*$ . Рост  $g$ -фактора при уменьшении  $D$  был объяснен сильным спин-орбитальным взаимодействием и примешиванием возбужденных состояний с отличной от нуля проекцией момента  $m$ , которые, согласно уравнению (6), имеют сильную зависимость от  $B$ , что также соответствует теоретическим расчетам в различных моделях как для соединений групп II–VI [47], так и для соединений групп III–V [46, 48].

Полученные значения  $g$ -фактора близки к значению 2.3, полученному в контрольной КЯ (часть образца без маски), а также к наблюдаемым в немагнитных КЯ на основе CdTe/CdMgTe [34], что указывает на слабую пространственную локализацию и близость к предельному режиму 2D-конфайнмента. Подробнее мы обсудим этот факт в следующем разделе.

Найденные из подгонки к эксперименту константы диамагнитного сдвига  $\gamma_{2,XX} = 9.2 \pm 2.0$  мкэВ/Тл,  $\gamma_{2,X} = 10.7 \pm 2.5$  мкэВ/Тл<sup>2</sup> и  $\gamma_{2,X^*} = 14.6 \pm 5$  мкэВ/Тл<sup>2</sup> соответственно для линий  $XX$ ,  $X$  и  $X^*$  в КТ с  $D = 200$  нм, дают информацию о пространственном конфайнменте

носителей в КТ. Так, в режиме сильного конфайнмента диамагнитный сдвиг экситона  $\Delta E_{dia}^X$  в КТ и константа  $\gamma_{2,X}$  выражаются через средний радиус области латеральной локализации волновой функции электронов  $\langle r_e^2 \rangle^{1/2}$  и дырок  $\langle r_h^2 \rangle^{1/2}$  в следующем виде [49]:

$$\Delta E_{dia}^X = \gamma_{2,X} B^2, \quad (8)$$

где

$$\gamma_{2,X} = \frac{e^2}{8} \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle}{m_e} + \frac{\langle r_h^2 \rangle}{m_h} \right), \quad (9)$$

куда входят массы носителей  $m_e$  и  $m_h$  в плоскости. Предполагая одинаковые области локализации электронов и дырок в КТ, из  $\gamma_{2,X} = 10.7$  мкэВ/Тл<sup>2</sup> получаем оценку для масштаба области латеральной локализации носителей:

$$D_{loc} = 2 \cdot \langle r_{e,h}^2 \rangle^{1/2} \approx 10.5. \quad (10)$$

Величина  $\gamma_{2,X^*} = 14.6$  мкэВ/Тл<sup>2</sup> для линии возбужденного состояния  $X^*$  позволяет оценить размер области локализации носителей в первом возбужденном состоянии  $D_{loc}^* \approx 13$  нм, который естественно больше соответствующей величины для основного состояния. Близкие значения диамагнитных констант получены для КТ с  $D = 270$  нм:  $\gamma_{2,XX} = 8.6$  мкэВ/Тл<sup>2</sup> и  $\gamma_{2,X} = 9.5$  мкэВ/Тл<sup>2</sup>, из которых получаем для  $D_{loc} \approx 9.9$  нм, что близко к значению (10) в КТ с  $D = 200$  нм.

Полученные в эксперименте значения  $D_{loc}$  несколько больше  $3D$ -радиуса Бора экситона  $a_B^* \approx 9$  нм в CdTe [42] и значительно меньше значения  $D_{loc} \sim 40$  нм, полученного в рамках одиночичных расчетов. Такое соотношение величин является прямым экспериментальным указанием на важную роль кулоновских корреляций в формировании экситонных состояний КТ в режиме слабого пространственного конфайнмента. Можно сказать, что сильное кулоновское взаимодействие, которое в исследуемых КТ оказывается сильнее пространственного квантования, как бы «стягивает» волновые функции носителей к центру КТ, который является центром локализации.

В то же время ситуация отлична от случая свободного 2D-экситона в КЯ с определяющей ролью именно кулоновского взаимодействия электрона и дырки. Так, если предположить преобладающее кулоновское взаимодействие носителей, связывающее их в экситон с эффективным радиусом в плоскости  $(x, y)$  КЯ

$$r_X = \langle (x_e - x_h)^2 + (y_e - y_h)^2 \rangle^{1/2},$$

то константа диамагнитного сдвига  $\gamma_{2,X}$  в этом случае выражается через  $r_X$  аналогично случаю независимых носителей в виде [49]

$$\gamma_{2,X} = \frac{e^2}{8} \left( \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right) \langle r_X^2 \rangle. \quad (11)$$

Оценка дает значение  $r_X \approx 5.0$  нм, что в два раза меньше оценки (10) в пределе полного конфайнмента независимых электронов и дырок, а также меньше  $a_B^*$ , что указывает на трудности такого подхода при рассмотрении экситонных состояний в КТ в режиме слабого пространственного конфайнмента. В то же время в контрольной КЯ (образец без маски)  $\gamma_{2,X} = 61.4$  мкэВ/Тл<sup>2</sup>, откуда следует  $r_X \approx 12.4$  нм, что является предельной величиной для  $\gamma_{2,X}$  при  $D \rightarrow \infty$ .

Существенное влияние масштаба области локализации носителей на диамагнитный сдвиг ранее было обнаружено в работе [50], где было проведено систематическое изучение зависимости  $\gamma_{2,X}$  от размеров цилиндрических КТ, полученных глубоким химическим травлением КЯ из  $\text{In}_{0.10}\text{Ga}_{0.90}\text{As}/\text{GaAs}$ . Было установлено отклонение величины  $\gamma_{2,X}$  от значения в КЯ начиная с диаметра КТ, превышающего  $a_B^*$  почти на порядок. В целом, данный анализ указывает на эффективную локализацию носителей в КТ и неприменимость подхода свободных 2D-экситонов.

Таким образом, по данным диамагнитного сдвига экситона можно заключить, что конкуренция 0D-конфайнмента и кулоновских корреляций в электронно-дырочной паре ( $e-h$ ) приводят к локализации носителей в области с характерным размером меньше, чем масштаб локализующего потенциала и соответствующих одночастичных состояний, но большим радиуса Бора 3D-экситона.

Заслуживает внимания величина константы диамагнитного сдвига линий  $XX$   $\gamma_{2,XX}$ , которая близка к значению константы экситона. Измеряемая в эксперименте энергия биэкситонного перехода есть разница между энергиями биэкситонного состояния и экситонного состояния (рис. 8), поэтому наблюдаемая величина диамагнитного сдвига линии  $XX$  есть

$$\Delta E_{dia}^{XX} = \gamma_{2,XX} B^2 = (\gamma_{XX} - \gamma_{2,X}) B^2. \quad (12)$$

В рамках подхода независимой локализации носителей в КТ константа  $\gamma_{XX}$  диамагнитного сдвига энергии биэкситонного состояния выражается через средние радиусы локализации двух пар носителей  $e_1, e_2, h_1$  и  $h_2$  аналогично уравнению (9):

$$\gamma_{XX} = \frac{e^2}{8} \left( \frac{\langle r_{e1}^2 \rangle}{m_e} + \frac{\langle r_{e2}^2 \rangle}{m_e} + \frac{\langle r_{h1}^2 \rangle}{m_h} + \frac{\langle r_{h2}^2 \rangle}{m_h} \right). \quad (13)$$

В предположении равенства радиусов локализации для экситона и биэкситона,

$$\langle r_{e1}^2 \rangle = \langle r_{e2}^2 \rangle = \langle r_{h1}^2 \rangle = \langle r_{h2}^2 \rangle = \langle r_{e,h}^2 \rangle, \quad (14)$$

получим

$$\gamma_{XX} = 2\gamma_{2,X}, \quad (15)$$

откуда немедленно следует  $\gamma_{2,XX} = \gamma_{2,X}$ , что приближенно выполняется в эксперименте. Экспериментальное значение  $\gamma_{2,XX}$  несколько меньшее, чем  $\gamma_{2,X}$ , что, по-видимому, свидетельствует о более сильном поджатии волновых функций носителей к центру КТ для биэкситонного состояния.

## 6. ОБСУЖДЕНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ ЭКСИТОНОВ В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ В РЕЖИМЕ СЛАБОГО ПРОСТРАНСТВЕННОГО КОНФАЙНМЕНТА

Отметим отсутствие расщепления в магнитном поле дважды вырожденных состояний с  $m = \pm 1$  (рис. 7), которое является одним из прямых доказательств особенностей энергетического спектра и симметрии состояний в КТ. Согласно формуле (6), вследствие взаимодействия азимутального орбитального момента с магнитным полем для экситонных переходов между состояниями с  $m \neq 0$  возникает почти линейная зависимость энергии от поля, равная циклотронной энергии, которая более сильная, чем обусловленная зонным  $g$ -фактором Ланде. Такая сильная зависимость наблюдалась как в индуцированных механическим напряжением КТ [51], так и в КТ, полученных химическим травлением КЯ на основе соединений III–V групп [52]. Отсутствие данного расщепления в спектрах ФЛ исследуемых КТ (рис. 7) вызвано нарушением цилиндрической симметрии КТ. Два наиболее вероятных механизма ответственны за такое нарушение симметрии: это модуляция латерального потенциала полями упругих напряжений и/или флюктуаций границы раздела. Сильно анизотропные латеральные упругие напряжения характерны для гетероструктур на основе более полярных соединений II–VI групп, что приводит, например, к анизотропии  $g$ -фактора в плоскости как в случае КЯ [53, 54], так и для КТ [55]. Более того, нарушение цилиндрической симметрии, приводящее к спектральному проявлению оптически неактивных («темных») экситонов, наблюдалось и в самоорганизованных КТ на основе соединений III–V групп [56]. Анизотропия полей упругих напряжений, которые предполагаются ответственными за гигантское усиление диффу-

зии в используемой методике создания искусственных КТ, может приводить к анизотропии диффузионного процесса из барьеров, а также в плоскости КЯ в пределах апертуры маски. В свою очередь, это приводит к модуляции состава тройного соединения и понижению симметрии локализующего латерального потенциала КТ. Свидетельством существенной роли предполагаемого механизма в данных гетероструктурах может быть наблюдаемое сильное неоднородное уширение линии латерального барьера (рис. 2).

### 6.1. Рассеяние экситонов и ширина линии

Как уже отмечалось в п. 3.1, к большой ширине линии  $X$  приводят носители, захваченные на дефекты и/или ловушки в окрестности КТ. В силу эффекта Штарка захваченные носители вызывают спектральную диффузию линии экситона с характерными корреляционными временами захвата от нескольких секунд до нескольких десятков минут, причем рост  $P_{exc}$  приводит к росту амплитуды флуктуаций спектрального положения линии экситона. В работе [14] был предложен другой механизм, приводящий к большой ширине линии  $X$  даже при низких  $P_{exc}$ : квазиупругое рассеяние экситона на статических дефектах в КТ. Одним из следствий данного механизма в условиях низких  $P_{exc}$ , когда в КТ находится не более одного экситона, является рост однородной полуширины линии с ростом размеров КТ, что было продемонстрировано экспериментально и подтверждено расчетом в работе [14]. Данное правило в действительности не выполняется для изучаемых КТ: полуширина линии составляет  $1.0 \pm 0.1$  мэВ во всех изученных КТ в структуре  $N1$  и несколько больше,  $1.5 \pm 0.2$ , в структуре  $N2$  (рис. 2, 3), т. е. практически не зависит от диаметра апертуры КТ. Объяснение такого несоответствия мы видим в независимости эффективного масштаба локализации носителей в латеральном потенциале от диаметра апертуры КТ, что является характерной особенностью данных КТ в условиях слабого пространственного конфайнмента экситонов. Следующее из магнито-оптических исследований диамагнитного сдвига равенство  $D_{loc}$  в КТ с разными  $D$  также коррелирует с экспериментальным результатом независимости полуширины линии  $X$  от апертуры маски при малых  $P_{exc}$ .

Изменение характера зависимости полуширины линии  $X$  от  $P_{exc}$  при высоких  $P_{exc}$  (рис. 4б) мы относим к включению нового механизма уширения. Поскольку такое изменение непосредственно коррелирует с появлением линии биэкситона (рис. 3, 4), сви-

детельствующей о двухэкситонном режиме заполнения КТ, естественно связать новый механизм уширения с кулоновским рассеянием двух пар носителей в КТ. На этот механизм указывает также более сильная зависимость полуширины линии  $X$  от  $P_{exc}$  в КТ меньшего диаметра. Действительно, согласно расчетам в модели цилиндрической КТ [14], вклад двухэкситонного кулоновского рассеяния имеет зависимость от диаметра КТ, близкую к  $1/D^2$ . С другой стороны, вызывает удивление разница в чувствительности механизма кулоновского рассеяния к размеру КТ и, наоборот, нечувствительность в случае одноэкситонного режима заполнения. На наш взгляд, объяснение заключается в разной чувствительности основного и возбужденного состояний экситона к пространственному масштабу латерального потенциала. При одноэкситонном заполнении КТ, когда уширение определяется захваченными на дефектах зарядами и/или механизмом квазиупругого рассеяния на статических дефектах, полуширина линии  $X$  определяется количеством дефектов на масштабе основного состояния экситона, который слабо зависит от номинального диаметра апертуры КТ. В случае механизма двухэкситонного кулоновского рассеяния, когда в процесс вовлечены возбужденные экситонные состояния, более чувствительные к характеристикам латерального потенциала, влияние масштаба потенциала существенно сильнее. На это также указывают результаты одночастичных расчетов (разд. 4). Более подробное обсуждение деталей данного механизма мы отложим до п. 6.4 при рассмотрении многоэкситонного заполнения оболочек в КТ.

### 6.2. Энергетическая релаксация носителей в квантовых точках

На рис. 5 видно, что возбужденные состояния  $X^*$  наблюдаются в спектрах излучения КТ структуры  $N2$  с глубоким латеральным локализующим потенциалом даже при минимальных уровнях фотовозбуждения. При этом интенсивность  $X^*$  сравнима с интенсивностью линии  $X$ . Данный факт указывает на замедленную межуровневую энергетическую релаксацию носителей в данных КТ [16, 17]. В то же время в КТ, полученных методом быстрого отжига (структуре  $N1$ ), интенсивность линии  $X^*$  на порядок слабее интенсивности основного перехода  $X$  при низких  $P_{exc}$  (рис. 3, 4). Главное различие этих двух случаев с различающимися технологическими условиями приготовления состоит в разных параметрах локализующего латерального потенциала, приводящих к разным значениям межуровневого расщепле-

ния  $\Delta E$ . В КТ с глубоким латеральным потенциалом (структура N2) характерное межуровневое расщепление  $\Delta E \sim 10$  мэВ, что в 2–3 раза больше, чем в КТ с мелким латеральным потенциалом (структура N1). Именно эта разница, как следует из дальнейшего рассмотрения, и определяет эффективность энергетической релаксации.

Когда  $\Delta E$  в КТ становится меньше энергии оптического фона, теоретическое рассмотрение и численные расчеты предсказывают существенное ослабление релаксации носителей в 0D-системах (КТ) по сравнению с системами более высокой размерности (1D и 2D), что связано с дискретной структурой энергетического спектра носителей и слабой эффективностью рассеяния на продольных акустических (LA) фонарах [18, 40, 57]. Качественно такое ослабление объясняется тем, что электрон-фононный формфактор взаимодействия, пропорциональный интегралу перекрытия волновой функции носителя и звуковой волны, будет существенно мал при масштабе области локализации носителя в КТ, большем длины волны фонара, необходимого для неупругой релаксации [40]. Данный эффект так называемого «фононного горла» и приводит к наблюдению в экспериментальных спектрах линий ФЛ, отвечающих оптическим переходам возбужденных экситонных состояний как в исследуемых КТ, так в некоторых случаях и в самоорганизованных КТ [58]. Несмотря на то, что плотность фононных состояний растет пропорционально квадрату  $\Delta E$ , формфактор взаимодействия имеет более резкую убывающую зависимость [40], в совокупности приводя к более эффективной релаксации в случае КТ с неглубоким локализующим потенциалом (структура N1).

Количественным критерием возникновения «фононного горла» служит соотношение наименьшего размера КТ и длины волны фонара  $\lambda_{ph}$ , необходимого для межуровневой релаксации носителей [18, 40]. В исследуемых КТ с большими значениями как номинального размера апертуры, так и фактической области локализации волновой функций носителей, такой характерной длиной служит толщина исходных КЯ,  $L_z = 6$  нм (структура N1) и  $L_z = 5$  нм (структура N2). Так, в структуре N2 с межуровневым расщеплением  $\Delta E \sim 10$  мэВ энергии латерального квантования электронов ( $\Delta E_e$ ) и дырок ( $\Delta E_h$ ) могут быть оценены из соотношения  $\Delta E_e/\Delta E_h \approx \sqrt{m_h^r/m_e}$ , что дает  $\Delta E_e \approx 6$  мэВ и  $\Delta E_h \approx 4$  мэВ. При скорости звука  $c_s$  для LA-фонара, равной в CdTe  $5.3 \cdot 10^3$  м/с, оценка  $\lambda_{ph} = 2\pi\hbar c_s/\Delta E$  дает для электронов и дырок со-

ответственно приблизительно 3.3 нм и 5.0 нм. В то же время, для КТ в структуре N1 с неглубоким латеральным потенциалом при  $\Delta E = 2.5$  мэВ (КТ с  $D = 200$  нм) для электронов и дырок получаем соответственно 13 нм и 20 нм. Таким образом, данный критерий непосредственно объясняет разницу в режимах релаксации в КТ с глубоким и мелким латеральным потенциалами: в первом случае  $\lambda_{ph} \leq L_z$  и эффект «фононного горла» уже существен и играет определяющую роль в сильном спектральном проявлении возбужденных состояний, во втором случае  $\lambda_{ph} \gg L_z$  и замедление релаксации еще не проявляется так ярко.

В этой связи необходимо сделать одно важное замечание. Во многих экспериментальных ситуациях эффект «фононного горла» не проявляется, несмотря на номинальное выполнение его критерия [59, 60]. Объяснение такому несоответствию было дано в работе [61], где было указано на важность учета оже-процессов (т. е. кулоновского рассеяния) при рассмотрении релаксации в КТ. На основании расчетов показано, что при типичных условиях фотовозбуждения, когда в окружающем КТ 2D-слое создается достаточно высокая плотность носителей, около  $10^{10}$ – $10^{11}$  см $^{-2}$ , кулоновское взаимодействие с плазменными колебаниями приводит к эффективной релаксации носителей с характерными временами менее 10 пс. При меньшей плотности носителей кулоновское взаимодействие с одночастичными возбуждениями также может быть достаточно для эффективной релаксации носителей в КТ [61].

На наш взгляд, объяснение слабой эффективности оже-процессов в исследованных КТ состоит в сильном пространственном разнесении центральной области КТ, где локализуются экситоны, и окружающего 2D-слоя (латерального барьера), как результат используемого метода получения КТ. Такое пространственное разделение существенно понижает эффективность кулоновского рассеяния [61]. Аналогичное подавление эффективности оже-процессов также наблюдается в КТ, полученных из КЯ путем селективной интердиффузии под действием фокусированного лазерного пучка [16] или селективной ионной имплантации с последующим отжигом [17].

В то же время, прямое сравнение КТ в структуре N1 с разными  $\Delta E$  дает обратную связь  $\Delta E$  и отношения интенсивностей линий  $X^*$  и  $X$  при низких  $P_{exc}$ , которое даже несколько меньше в КТ с  $D = 270$  нм с большим  $\Delta E$  (рис. 3). Такое, на первый взгляд, несоответствие отражает более сложный характер процессов релаксации и может быть объяснено сложной структурой возбужденных состояний,

ускоряющих релаксацию в этой КТ.

Таким образом, на примере исследованных КТ непосредственно продемонстрирован эффект «фононного горла». Показано, что кроме такого критерия, как соотношение наименьшего размера КТ и длины волны акустического фонона, необходимого для межуровневой релаксации, важную роль играет форма и характерный масштаб локализующего потенциала, приводящего к подавлению эффективности оже-процессов за счет пространственного разделения экситонов в КТ и фотовозбужденных носителей в латеральном барьере.

### 6.3. Смешивание одночастичных состояний и запрещенные оптические переходы

Возбужденные состояния в сферической КТ с произвольным размером были детально проанализированы в работе [62]. В зависимости от соотношения объемного радиуса Бора экситона  $a_B^*$  и  $D_{loc}$ , носители в КТ находятся в режиме сильной ( $D_{loc} < a_B^*$ ) или слабой ( $D_{loc} > a_B^*$ ) пространственной локализации. В первом случае наиболее существенно пространственное квантование носителей и эффекты кулоновского взаимодействия являются поправкой на их фоне. В обратном случае слабого конфайнмента, когда  $\Delta E$  меньше экситонного Ридберга — энергии связи экситона  $E_X$ , что эквивалентно условию  $D_{loc} > a_B^*$ , — кулоновские корреляции наиболее сильны и приводят к примешиванию в экситонной волновой функции более высоких по энергии уровней одночастичных состояний, отвечающих оптическим переходам без изменения проекции азимутального квантового числа  $m$ , поскольку цилиндрическая симметрия сохраняется. Смешивание состояний тем сильнее, чем больше  $D_{loc}$ , и существенно уже при слабом выполнении неравенства  $D_{loc} \geq a_B^*$  [62]. Более того, численные расчеты, проведенные в работе [63], показали, что даже в случае достаточно сильного конфайнмента с энергией  $\hbar\omega_{0,e} + \hbar\omega_{0,h} = 45$  мэВ, превышающей кулоновскую энергию  $E_X = 25$  мэВ, перераспределение силы осцилляторов в пользу лежащих ниже по энергии оптических переходов существенно настолько, что проявляется как значительное уширение разрешенных переходов и уменьшение силы осцилляторов переходов более высоких уровней КТ.

Одночастичный расчет, приведенный выше, указывает на выполнение неравенства  $a_B^* < D_{loc}$ . Данные по диамагнитному сдвигу линий ФЛ экситона, из которого получено значение области латеральной локализации электронов и дырок  $D_{loc} \approx 10$  нм (10), также свидетельствуют о режиме слабого конфайн-

мента носителей. Для оценки кулоновского взаимодействия электронов и дырок  $E_X$  мы воспользовались формулами для предельного 2D-случая [64]. Так, для КЯ в структуре N1 с параметрами 2D-потенциала в направлении оси роста  $z$  как в центре КТ, решение квазидвумерного экситонного уравнения Шредингера дает значения  $E_X \approx 18$  мэВ и радиус Бора 2D-экситона в плоскости  $a_B^{2D} \approx 7$  нм. Это также указывает на следующий из экспериментальных данных вывод о режиме слабого конфайнмента и существенной роли кулоновских корреляций:  $E_X > \Delta E$  и  $a_B^{2D} < D_{loc}$ .

Таким образом, экситонные эффекты в исследуемых КТ наиболее сильны и, как следствие, должны приводить к сильному смешиванию экситонных состояний. При этом спектральные линии не обязательно будут эквидистантно разделены по энергии [62]. Для оценки степени локализации мы использовали подход, развитый в работе [49], согласно которому режим латеральной локализации может быть охарактеризован безразмерным параметром  $\lambda$  (формула (3.4) из работы [49]):

$$\lambda = \frac{\langle r_e^2 \rangle + \langle r_h^2 \rangle - \langle r_X^2 \rangle}{2 \left( \frac{\mu}{m_h} \langle r_e^2 \rangle + \frac{\mu}{m_e} \langle r_h^2 \rangle \right)}, \quad (16)$$

где  $1/\mu = 1/m_e + 1/m_h$  — приведенная масса экситона на тяжелой дырке. Минимальное значение  $\lambda = 0$  соответствует пределу независимого движения электрона и дырки в локализующем потенциале, некоррелированного кулоновским взаимодействием, обратный случай — полностью скоррелированной паре электрон–дырка, связанной в экситон и не «чувствующей» внешний потенциал [49].

Воспользовавшись результатами численных расчетов основного состояния экситона в КТ в рамках метода конфигурационного взаимодействия [28] и оценкой радиуса основных одночастичных состояний электрона и дырки  $L = \sqrt{\hbar/m_{e,h}\omega_{e,h}} \approx 23$  нм, данной в конце разд. 4, можно оценить отношение  $\langle r_X^2 \rangle^{1/2}/L$  (рис. 2 в работе [28]). Поскольку расчет в работе [28] проведен для КТ на основе GaAs, для корректной оценки мы использовали безразмерный параметр  $L/a_B^* \approx 2.5$ . Сравнение с расчетом в работе [28] дает  $\langle r_X^2 \rangle^{1/2}/a_B^* \approx 0.6$ , откуда  $\langle r_X^2 \rangle^{1/2} \approx 5.6$  нм, что практически совпадает с оценкой  $\langle r_X^2 \rangle^{1/2}$ , полученной в предположении полностью скоррелированной электронно–дырочной пары на основе уравнения (11). Используя значения  $\langle r_{e,h}^2 \rangle^{1/2} \approx 5.2$  нм (10), полученные из диамагнитного сдвига в предположении сильного пространственного конфайнмента, окончательно получаем для па-

раметра (16) значение  $\lambda \approx 0.45$ , промежуточное между предельными случаями режимов сильного и слабого пространственного конфайнмента. Подчеркнем, что найденное значение параметра локализации носит оценочный характер и также указывает на существенную роль кулоновских корреляций в формировании экситонных состояний в изученных КТ.

Как уже отмечалось, нарушение цилиндрической симметрии КТ, вызванное понижением симметрии латерального потенциала, приводит к отсутствию расщепления в магнитном поле дважды вырожденных состояний с  $m = \pm 1$  в структуре  $N1$  (рис. 7). Такое понижение симметрии в плоскости должно приводить к появлению ранее запрещенных оптических переходов между одиночественными состояниями электронов и дырок. При этом нарушение запрета будет сильнее проявляться в КТ большого диаметра, в которых влияние возмущений потенциала, таких как флуктуации поверхности раздела или поля упругих напряжений, выражено сильнее. Тенденция к сильному смешиванию с ростом  $D$  также характерна для КТ в структуре  $N2$  с глубоким локализующим потенциалом (рис. 5), что свидетельствует о существенной роли низкосимметричных возмущений потенциала в КТ, независимо от конкретных деталей латерального потенциала.

С этой точки зрения, становится понятной разница в спектральном проявлении возбужденных состояний  $X^*$  для двух КТ с разными диаметрами апертур маски (рис. 3). Так, в КТ с  $D = 270$  нм, которая демонстрирует более сложную спектральную картину по сравнению с  $D = 200$  нм, смешивание экситонных состояний ярко выражено. Интересно отметить тот факт, что в спектрах КТ, которые демонстрируют смешивание экситонных состояний, у линий биэкситона при максимальных  $P_{exc}$  также появляются дополнительные широкие плечи, спектрально перекрывающиеся с основной линией биэкситона (рис. 3 и 5, отмечено жирной стрелкой). Такое поведение, наблюдаемое в обеих структурах, на наш взгляд, также может быть следствием обсуждаемого смешивания экситонных состояний в режиме слабой пространственной локализации и отвечать близким по энергии синглетным состояниям биэкситона с подмешиванием запрещенных переходов.

#### 6.4. Возбужденные экситонные состояния и заполнение оболочек в КТ

При низких  $P_{exc}$  линия  $X^*$  имеет близкую к линейной зависимость интенсивности от  $P_{exc}$  (рис. 4).

При этих уровнях фотовозбуждения КТ в каждый момент времени заселена не более чем одной электронно-дырочной ( $e-h$ ) парой и линия  $X^*$  соответствует излучению из  $p$ -оболочки экситона, не успевшего срелаксировать в  $s$ -оболочку. Появление линии биэкситона свидетельствует об одновременном заселении нижайшего состояния,  $s$ -оболочки, двумя экситонами с противоположно направленными спинами, где, согласно принципу Паули, могут находиться не более двух  $e-h$ -пар в соответствии с двукратным спиновым вырождением этой оболочки. Одновременно с появлением биэкситона происходит изменение зависимости интенсивности  $X^*$  от  $P_{exc}$ , которая также становится близкой к квадратичной и, более того, имеет интенсивность близкую к интенсивности биэкситона (рис. 5). Эти два факта свидетельствуют о двухчастичной кинетике заполнения также и возбужденного состояния, когда в КТ находится одновременно два экситона: один в основном состоянии, в  $s$ -оболочке, другой — в возбужденном, в  $p$ -оболочке. Такую двухэкситонную конфигурацию иногда интерпретируют как возбужденное состояние биэкситона [13].

В условиях двухэкситонного заполнения КТ, когда в спектрах одновременно присутствуют линии биэкситона и возбужденного состояния, линия  $X^*$  не испытывает заметного дополнительного сдвига, кроме общего монотонного красного сдвига, связанного с перегревом в пятне возбуждения (рис. 3). Такое поведение свидетельствует о том, что влияние электронных корреляций между  $s$ - и  $p$ -оболочками на энергетический спектр экситонов в КТ в режиме слабого конфайнмента пренебрежимо мало, что наблюдалось ранее и в работе [17]. Представляется важным подчеркнуть, что наблюдаемое поведение противоположно случаю сильного конфайнмента, реализующемуся в случае самоорганизованных КТ, в которых происходит существенный сдвиг линий экситонных переходов при изменении степени заполнения экситонных оболочек в КТ [8, 12]. Данный факт является одним из немногочисленных и поэтому важным экспериментальным свидетельством электронных корреляций в КТ в пределе слабого конфайнмента. Так, например, в работе [13] не удалось реализовать двухэкситонную конфигурацию возбужденного состояния биэкситона ввиду быстрой межуровневой релаксации носителей.

При линейно-поляризованном фотовозбуждении гетероструктуры в латеральном барьере с равной вероятностью образуются экситоны с обеими проекциями момента, которые затем захватываются в КТ. Поэтому при высоких  $P_{exc}$ , в режиме двухэкситонно-

го заполнения КТ, с равной вероятностью возможен захват пары экситонов как с параллельной конфигурацией спинов, соответствующей линии  $X^*$ , так и с антипараллельной конфигурацией, отвечающей линии  $XX$ , что объясняет их одинаковые интенсивности в этом режиме. Более того, такое поведение отражает медленную спиновую релаксацию экситона в  $s$ -оболочке, когда в силу принципа Паули, из-за отталкивания между экситонами с одинаковой спиновой ориентацией, данный экситон не может срелаксировать в  $s$ -оболочку без изменения спина. Спиновая релаксация в КТ существенно замедлена, как в самоорганизованных [65, 66], так и в полученных методом селективной ионной имплантации КЯ с последующим отжигом [17]. Таким образом, медленная спиновая релаксация является общей характерной особенностью КТ в обоих предельных случаях сильного и слабого конфайнмента, что связано с полной пространственной локализацией носителей и с дискретностью их спектра в  $0D$ -системах [67]. Применение магнитного поля (рис. 7) не изменяет картины двухэкситонного заполнения КТ вплоть до максимальных значений  $B = 8$  Тл. Эти исследования независимо дают ценную информацию о масштабе пространственной локализации волновой функции носителей  $D_{loc}$ . Так, с уменьшением магнитной длины  $l_B$  менее  $D_{loc}$  перестает быть справедливым принцип Паули, регулирующий заполнение оболочек КТ, и поведение системы изменяет свой характер на двумерный с заполнением уровней Ландау, как это было продемонстрировано в работе [13] на примере КТ с размерами более 100 нм, полученных селективным травлением. Это позволяет провести оценку сверху для величины  $D_{loc} < l_B$ , которая при  $B = 8$  Тл составляет  $l_B \sim 10$  нм, что находится в согласии с данными, полученными из диамагнитного сдвига линий  $X$  и  $XX$ . Таким образом, понятие энергетических оболочек КТ, установленное и наиболее изученное на примере КТ в режиме сильной пространственной локализации носителей, также остается актуальным и в режиме слабой пространственной локализации, а принцип Паули играет определяющую роль в заполнении оболочек экситонами.

Теперь мы более детально обсудим наблюдаемое изменение характера зависимости полуширины линии  $X$  от  $P_{exc}$  и его связь с новым механизмом рассеяния в условиях двухэкситонного режима заполнения КТ (п. 6.1). Действительно, кулоновское взаимодействие двух пар носителей в основном состоянии дискретного спектра КТ (биэкситон) не может привести к уширению (дефазировке). К дополнительному уширению в данном случае приводит кулонов-

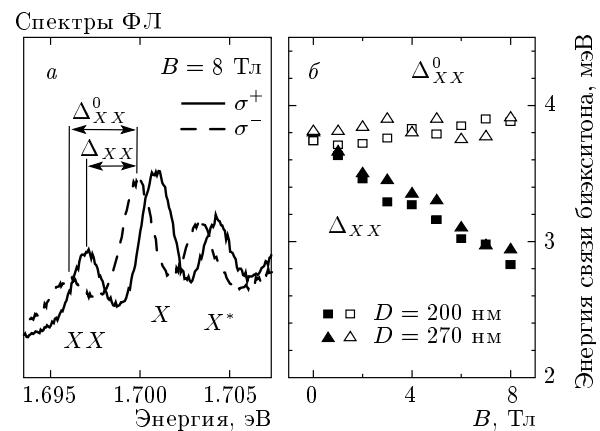


Рис. 9. а) Циркулярно поляризованные спектры ФЛ при  $B = 8$  Тл для КТ с  $D = 200$  нм в структуре N1 и иллюстрация определения энергии связи биэкситона  $\Delta_{XX}$  и расщепления  $\Delta_{XX}^0$  при  $B \neq 0$ . б) Магнитополевые зависимости энергии связи  $\Delta_{XX}$  и расщепления  $\Delta_{XX}^0$  в  $\sigma^+$ -поляризации для КТ с  $D = 270, 200$  нм в структуре N1

ское взаимодействие экситона в основном состоянии и экситона в возбужденном состоянии КТ, который не успел срелаксировать в основное состояние. В силу медленной спиновой релаксации носителей в КТ, существенно более медленной, чем излучательная рекомбинация, каждый экситон в такой конфигурации скорее рекомбинирует излучательно, при этом экситон в более высокой оболочке может испытывать рассеяние между квазивырожденными состояниями с различными значениями  $t$ . Рассеяние происходит в статическом кулоновском поле экситона из  $s$ -оболочки, у которого в силу различия эффективных масс электрона и дырки возникает ненулевая результирующая плотность заряда. Именно этот механизм рассматривался в работе [14] и для него была показана зависимость от диаметра КТ, близкая к  $1/D^2$ . Отметим, что данный механизм приводит к уширению линий излучения как основного (линия  $X$ ), так и возбужденного состояний (линия  $X^*$ ) [14].

## 6.5. Биэкситонные состояния

Из схемы переходов (рис. 8) следует, что линия  $XX$  в  $\sigma^+$ -поляризации соответствует переходу из основного двухэкситонного состояния (спиновый синглет) в основное спиновое состояние экситона  $X$  ( $\sigma^-$ ). Согласно подходу многоэкситонных комплексов в КТ, развитому в работе [13], разницу энергий переходов  $X$  ( $\sigma^-$ ) и  $XX(\sigma^+)$  можно рассматривать как эффективную энергию связи биэкситона  $\Delta_{XX}$ .

Величину  $\Delta_{XX}$  можно сравнить с разницей энергий между линиями  $X$  и  $XX$  ( $\Delta_{XX}^0$ ) в одинаковых поляризациях, как это представлено на рис. 9б для  $\sigma^+$ -поляризации в КТ с  $D = 270, 200$  нм. При этом значения  $\Delta_{XX}^0$  в обеих поляризациях практически совпадают в пределах погрешности. На рисунке видно, что  $\Delta_{XX}$  уменьшается с ростом магнитного поля практически линейно от 3.8 мэВ при  $B = 0$  до 2.9 мэВ при  $B = 8$  Тл. Это уменьшение в пределах ошибки равно спиновому расщеплению экситона  $X$  (рис. 7). Величина  $\Delta_{XX}^0$ , напротив, демонстрирует независимость от  $B$ . Слабый рост  $\Delta_{XX}^0$  в поле (около 0.1 мэВ при  $B = 8$  Тл) связан, по-видимому, с незначительным изменением  $g$ -фактора экситона. В целом, магнитооптическое поведение линий экситона и биэкситона свидетельствует о том, что уменьшение энергии связи биэкситона в магнитном поле происходит из-за зеемановского расщепления экситона, а перестройка волновой функции носителей в исследуемом диапазоне магнитных полей незначительна. Такое заключение на основе анализа экспериментальных данных подтверждается также результатами численных расчетов на основе метода конфигурационного взаимодействия с использованием большого базиса одночастичных состояний (несколько сот состояний) [29]. Эти расчеты показали, что с ростом магнитного поля среднее расстояние между электроном и дыркой  $\langle (r_e - r_h)^2 \rangle^{1/2}$  незначительно уменьшается как при сильном, так и при слабом конфайнменте в КТ, причем эффект сильнее выражен в случае слабого конфайнмента и достигает около 10% в поле  $B = 10$  Тл для КТ с параметрами GaAs и  $\hbar\omega_0 = 5$  мэВ.

Таким образом, можно утверждать, что перестройка волновой функции носителей в исследуемом диапазоне магнитных полей ( $B = 0$ –8 Тл) несущественна как для экситона, так и для биэкситона, что, наряду с равенством их диамагнитного сдвига, приводит также к выводу о равенстве радиуса пространственной локализации носителей у экситона и биэкситона (14), (15) и его независимости от поля.

Энергия связи биэкситона  $\Delta_{XX}$  при  $B = 0$  слабо зависит от размера КТ и составляет примерно 4 мэВ в обеих структурах. Эти значения  $\Delta_{XX}$  значительно меньше энергии связи биэкситона в самоорганизованных КТ на основе соединений II–VI групп (15–20 мэВ) [65, 68, 69], в том числе и в КТ CdTe/ZnTe [27]. В то же время  $\Delta_{XX}$  близка к наблюдавшейся в искусственных КТ, полученным методами фокусированной ионной имплантации в КЯ CdTe/CdMnTe (около 3.5 мэВ) [17], а также в 2D-гетероструктурах на основе соединений

II–VI групп (3.5–8 мэВ) [70, 71]. В целом, такое низкое значение энергии связи биэкситона в полученных КТ, близкое к двумерному случаю, также свидетельствует о слабой пространственной локализации носителей и определяющей роли кулоновских 2D-корреляций в синглетном состоянии пары экситонов. Численные расчеты волновой функции биэкситона для модельного случая прямоугольных КТ с бесконечно высокими барьерами [65] показали, что в случае  $a_B^* < D_{loc}$  влияние пространственного конфайнмента слабо выражено и кулоновские корреляции играют определяющую роль в формировании волновой функции биэкситона, аналогично предельному 2D-случаю [72]. Сравнение отношения  $\Delta_{XX}$  к 3D-экситонному Ридбергу  $E_X^{3D}$  с результатами модельного расчета для сферической КТ [73] дает оценку ее радиуса около  $2a_B^* \approx 18$  нм, что находится в согласии с оценками  $D_{loc}/2 \approx 20$  нм на основе одиночастичных расчетов и в два раза превышает значение, полученное из диамагнитного сдвига. Таким образом, по-видимому, можно сделать общий вывод о несущественном влиянии конкретных характеристик локализующего потенциала КТ, в частности  $\hbar\omega_0$ , на биэкситонное состояние в режиме слабого конфайнмента.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом селективной интердиффузии в квантовой яме реализованы индивидуальные квантовые точки, соответствующие режиму слабого пространственного конфайнмента экситонов, с эффективным масштабом латерального локализующего потенциала много большим 3D-радиуса Бора экситона. Полученные данным способом КТ демонстрируют специфические черты, демонстрирующие эффективный 0D-конфайнмент и близость 2D-предела.

С одной стороны, сохраняются основные характерные черты квантовых точек: дискретность уровней энергии, медленная спиновая релаксация, применимость концепции экситонных оболочек КТ с определяющей ролью принципа Паули в заполнении оболочек. С другой стороны, малая величина энергии пространственного квантования, меньше энергии связи 2D-экситона, приводит к существенной роли кулоновского взаимодействия в формировании экситонных состояний. Конкуренция конфайнмента и кулоновских корреляций в паре приводят к локализации носителей в области с характерным размером, существенно меньшим масштаба локализующего потенциала, а также расчетного масштаба одночастичных состояний, но большим характерного размера 2D-экситона. Специфическим свойством основ-

ного состояния носителей в КТ является его слабая чувствительность к масштабу потенциала, что проявляется как равенство полуширины линии экситонного перехода в условиях одноэкситонного заполнения КТ, а также близость коэффициентов диамагнитного сдвига в КТ разного диаметра. В совокупности с равенством диамагнитного сдвига у экситона и биэкситона, это приводит также к выводу о равенстве масштаба локализации носителей в этих состояниях и его независимости от магнитного поля.

Эффект слабого пространственного конфайнмента в сочетании с понижением симметрии в плоскости, характерном для гетероструктур II-VI групп, приводит к появлению в спектрах ФЛ запрещенных оптических переходов между одночастичными состояниями электронов и дырок. При этом нарушение запрета сильнее выражено в КТ большего диаметра, в которых влияние возмущений потенциала сильнее. В то же время, значения  $g$ -фактора экситона и энергия связи биэкситона, близкие к  $2D$ -пределу, свидетельствуют о слабом влиянии локализующего потенциала на состояния носителей в условиях слабого пространственного конфайнмента в КТ.

Сильная зависимость межуровневой релаксации от величины межуровневого расщепления демонстрирует определяющую роль эффекта «фононного горла» в подавлении релаксации при уменьшении длины волны фонона. При этом эффективность альтернативных механизмов релаксации, в первую очередь, оже-процессов, также существенно подавлена за счет пространственного разделения экситонов и  $2D$ -носителей в латеральном барьере.

В целом можно заключить, что полная пространственная локализация носителей в потенциале с масштабом, значительно превышающим  $a_B^*$ , является существенным фактором и вносит качественные изменения в природу экситонных состояний при переходе от режима  $2D$ -конфайнмента в КЯ к режиму полного  $3D$ -конфайнмента в КТ.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-17404, 07-02-01299).

## ЛИТЕРАТУРА

1. E. L. Ivchenko and G. E. Picus, *Superlattices and Other Heterostructures. Symmetry and Optical Phenomena*, 2nd ed., Springer-Verlag, Berlin (1997).
2. C. Weisbuch and B. Vinter, *Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications*, Academic Press, Boston (1991).
3. J. Singh, *Physics of Semiconductors and Their Heterostructures*, McGraw Hill, New York (1993).
4. L. Bányai and S. W. Koch, *Semiconductor Quantum Dots*, World Scientific, Singapore (1993).
5. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Щукин и др., ФТП **32**, 385 (1998).
6. *Semiconductor Quantum Dots: Physics, Spectroscopy, and Applications*, ed. by Y. Masumoto and T. Takagahara, Springer-Verlag, Berlin (2002).
7. А. С. Каминский, Я. Е. Покровский, ЖЭТФ **76**, 1727 (1979); В. Д. Кулаковский, Г. Е. Пикус, В. Б. Тимофеев, УФН **135**, 237 (1981).
8. P. Hawrylak, Phys. Rev. B **60**, 5597 (1999).
9. A. Barenco and M. A. Dupertuis, Phys. Rev. B **52**, 2766 (1995).
10. A. Wojs and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **55**, 13066 (1997).
11. U. Banin, Y. Cao, D. Katz, and O. Mills, Nature **400**, 542 (1999).
12. M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard et al., Nature **405**, 923 (2000).
13. M. Bayer, T. Gutbrod, A. Forchel et al., Phys. Rev. B **58**, 4740 (1998).
14. R. Steffen, A. Forchel, T. L. Reinecke et al., Phys. Rev. B **54**, 1510 (1996).
15. J. Cibert, P. M. Petroff, G. J. Dolan et al., Appl. Phys. Lett. **49**, 1275 (1986).
16. K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 3216 (1992).
17. G. Bacher, T. Kümmell, D. Eisert et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 956 (1999).
18. U. Bockelmann and G. Bastard, Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990).
19. S. Zaitsev, M. K. Welsch, H. Schömöig et al., Semicond. Sci. Technol. **16**, 631 (2001).
20. M. K. Welsch, H. Schömöig, M. Legge et al., Appl. Phys. Lett. **78**, 2937 (2001).
21. D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
22. M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
23. C. Obermüller, A. Deisenrieder, G. Abstreiter et al., Appl. Phys. Lett. **74**, 3200 (1999).

- 24.** A. Zrenner, L.V. Butov, M. Hagn et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 3382 (1994).
- 25.** J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher et al., Appl. Phys. Lett. **76**, 1872 (2000).
- 26.** P. G. Blome, M. Wenderoth, M. Hübler et al., Phys. Rev. B **61**, 8382 (2000).
- 27.** L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal et al., Phys. Rev. B **65**, R121314 (2002).
- 28.** W. Que, Phys. Rev. B **45**, 11036 (1992).
- 29.** V. Halonen, T. Chackraborty, and P. Pietiläinen, Phys. Rev. B **45**, 5980 (1992).
- 30.** S. V. Nair, S. Sinha, and K. C. Rustagi, Phys. Rev. B **35**, 4098 (1987).
- 31.** Y. Kayanuma, Phys. Rev. B **38**, 9797 (1988).
- 32.** D. R. Yakovlev and K. V. Kavokin, Comm. Cond. Matter Phys. **18**, 51 (1996).
- 33.** B. Kuhn-Heinrich, W. Ossau, T. Litz et al., J. Appl. Phys. **75**, 8046 (1994).
- 34.** A. A. Sirenko, T. Ruf, M. Cardona et al., Phys. Rev. B **56**, 2114 (1997).
- 35.** M. Korkusinski and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **63**, 195311 (2001).
- 36.** M. K. Welsch, H. Schömöig, M. Legge et al., Appl. Phys. Lett. **78**, 2937 (2001).
- 37.** A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard et al., Phys. Rev. B **54**, 5604 (1996).
- 38.** H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 057402 (2005).
- 39.** V. Fock, Z. Phys. **47**, 446 (1928).
- 40.** U. Bockelmann, Phys. Rev. B **50**, 17271 (1994).
- 41.** M. K. Welsch, Ph. D. thesis, Universität Würzburg, Germany (2005).
- 42.** A. El Moussaouy, D. Bria, A. Nougauoi et al., J. Appl. Phys. **93**, 2906 (2003).
- 43.** A. Kutler, M. Bayer, A. Forchel et al., Phys. Rev. B **58**, R4740 (1998).
- 44.** G. Bacher, H. Schömöig, J. Seufert et al., Phys. Stat. Sol. (b) **229**, 415 (2002).
- 45.** M. Bayer, V. B. Timofeev, T. Gutbrod et al., Phys. Rev. B **52**, R11623 (1995).
- 46.** R. Kotlyar, T. L. Reinecke, M. Bayer et al., Phys. Rev. B **63**, 85310 (2001).
- 47.** S. J. Prado, C. Trallero-Giner, A. M. Alcalde et al., Phys. Rev. B **69**, 201310 (2004).
- 48.** T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi et al., Phys. Rev. B **70**, 235337 (2004).
- 49.** S. N. Walck and T. L. Reinecke, Phys. Rev. B **57**, 9088 (1998).
- 50.** M. Bayer, S. N. Walck, T. L. Reinecke et al., Phys. Rev. B **57**, 6584 (1998).
- 51.** R. Rinaldi, P. V. Giugno, R. Cingolani et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 342 (1996).
- 52.** M. Bayer, A. Schmidt, A. Forchel et al., Phys. Rev. Lett. **74**, 3439 (1995).
- 53.** Yu. G. Kusrayev, A. V. Koudinov, I. G. Aksyanov et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 3176 (1999).
- 54.** C. Gourdon and P. Lavallard, Phys. Rev. B **46**, 4644 (1992).
- 55.** A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Yu. G. Kusrayev et al., Phys. Rev. B **70**, 241305 (2004).
- 56.** M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1748 (1999).
- 57.** U. Bockelmann, Phys. Rev. B **48**, 17637 (1993).
- 58.** K. Mukai, N. Ohtsuka, H. Shoji et al., Phys. Rev. B **54**, R5243 (1996).
- 59.** U. Bockelmann, Phys. Rev. B **55**, 4456 (1997).
- 60.** R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov et al., Phys. Rev. B **56**, 10435 (1997).
- 61.** U. Bockelmann and T. Egeler, Phys. Rev. B **46**, 15574 (1992).
- 62.** T. Takagahara, Phys. Rev. B **47**, 4569 (1993).
- 63.** A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard et al., Phys. Rev. B **54**, 5604 (1996).
- 64.** R. P. Leavitt and J. W. Little, Phys. Rev. B **42**, 11774 (1990).
- 65.** G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 4417 (1999).
- 66.** A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel et al., Phys. Rev. B **58**, R7508 (1997).
- 67.** A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov, Phys. Rev. B **61**, 12639 (2000).
- 68.** V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1780 (1999).
- 69.** P. S. Dorozhkin, A. S. Brichkin, V. D. Kulakovskii, et al., Phys. Stat. Sol. (a) **202**, 2609 (2005).
- 70.** H. Mino, S. Takeyama, S. Adachi et al., Physica B **298**, 421 (2001).
- 71.** I.-K. Oh and Jai Singh, Phys. Rev. B **60**, 2528 (1999).
- 72.** D. S. Citrin, Phys. Rev. B **50**, 17655 (1994).
- 73.** Y. Z. Hu, M. Lindberg, and S. W. Koch, Phys. Rev. B **42**, 1713 (1990).