

UNIVERZITET U BEOGRADU
FAKULTET ZA FIZIČKU HEMIJU

DIPLOMSKI RAD

**Rezonantna spektroskopija samoorganizujućih kvantnih
tačaka II i VI grupe periodnog sistema:
Pobuđena stanja i kuplovanje ekscitona sa longitudinalnim
optičkim fononima**

Student:
Jana Radaković 44/01

Beograd, 2008

SADRŽAJ

Uvod.....	4
Niskodimenzione kvantno-konfinirane strukture.....	5
Kvantne tačke.....	7
Optičke osobine.....	9
Fotoluminiscentni prelazi.....	11
Ekscitonski prelazi.....	11
Fononi.....	13
Polaroni.....	14
Fotoluminiscentni procesi u kvantnim tačkama CdTe/ZnTe i CdSe/ZnSe.....	15
Uzorci i eksperimentalni podaci.....	17
Fotoluminiscentna ekscitacija jedne kvantne tačke.....	18
Rezonantna fotoluminiscencija ansambla kvantnih tačaka.....	21
Diskusija.....	26
Zaključak.....	28
Literatura.....	29

Srdačno se zahvaljujem dr Nebojši Romčeviću i dr Miljenku Periću na prijatnoj saradnji i pomoći pruženoj pri izradi ovog diplomskog rada.

UVOD

Fotoluminiscentna spektroskopija je metoda široko korišćena za ispitivanja interakcije između ekscitona i longitudinalnih optičkih fonona u kvantnim tačkama poluprovodnika. Korišćenjem metode rezonantno pojačane fotoluminiscencije zajedno sa fotoluminiscentnom ekscitacijom vršena su ispitivanja CdTe/ZnTe i CdSe/ZnSe samoorganizujućih tačaka, radi dobijanja informacija o njihovim optičkim osobinama.

Spektar fotoluminiscentne ekscitacije jedne CdTe kvantne tačke pokazuje dva mehanizma ekscitacije nosioca. Prvi, povezan sa prisustvom oštih linija u spektru, je direktna posledica ekscitonskih prelaza sa osnovnog na pobuđeno stanje, dok je drugi mehanizam posledica fononski potpomognute apsorpcije direktno u osnovno stanje kvantne tačke. Ispoljava se u vidu minimalno četiri široke ekscitacione linije. Merenja vršena rezonantno pojačanom fotoluminiscencijom omogućavaju da se izdvoje doprinosi ova dva mehanizma. Nađeno je da za CdTe kvantne tačke raspodela energija pobuđenih stanja kuplovana sa osnovnim stanjima reflektuje energiju raspodele emisije kvantne tačke, ali pomeren u energijama za 100 meV. Ovo veliko cepanje između osnovnog i pobuđenog stanja u CdTe kvantnim tačkama sugerise jako prostorno konfiniranje ekscitona. Dok fononski potpomognuta apsorpcija pokazuje značajnu zavisnost od veličine tačke. U slučaju CdTe kvantnih tačaka eksciton-fonon kuplovanje je pojačano zbog manjih tačaka koje imaju veliku emisionu energiju. Za CdSe kvantne tačke jačina kuplovanja je uniformna kroz ceo ansambl, odnosno energijska raspodela tačaka određuje intenzitet fononskih replika. Pokazano je da povećanje energije prosečne kvantne tačke CdTe interakcija ekscitona i fonona utiče na energijsku raspodelu tačke.

NISKODIMENZIONANE KVANTNO-KONFINIRANE STRUKTURE

Smanjivanje dimenzija sistema do reda veličine 100 nm i manje uzrokuje kvantne fenomene koji menjaju elektronsku zonsku strukturu, odnosno električne i optičke osobine materijala. Ako dimenzije sistema redukujemo tako da je kretanje nosilaca naelektrisanja ograničeno u okviru veoma tankog sloja, u jednoj ili više prostornih dimenzija sistem se tretira kvantno mehanički.

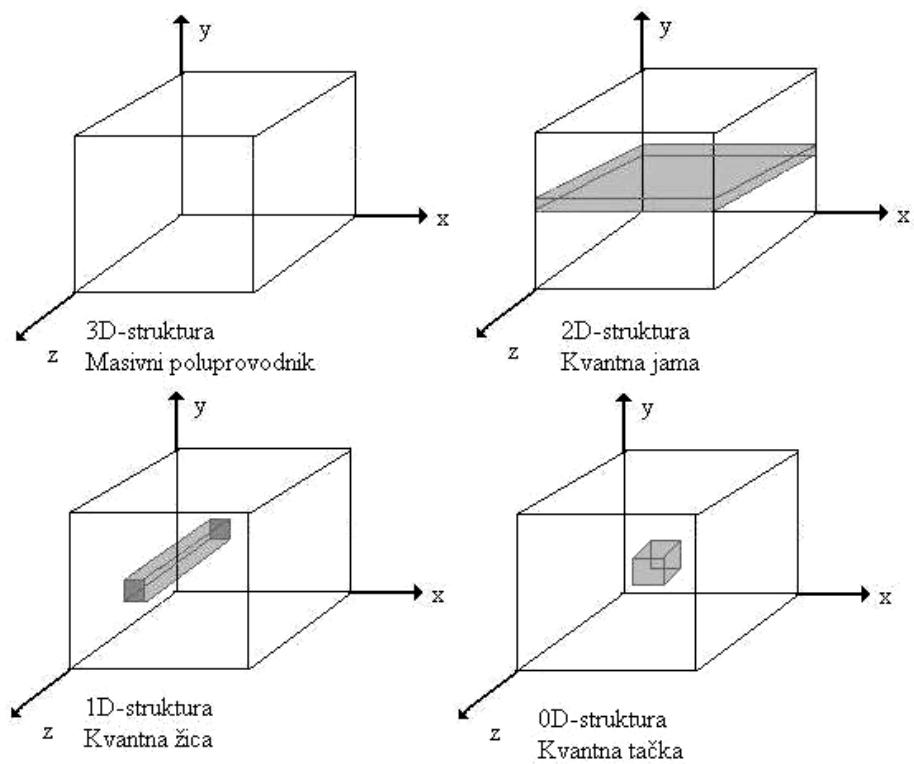
U poluprovodnicima diskretne vrednosti energija se postižu kada debljina posmatranog sloja odgovara De Broglijevoj talasnoj dužini.

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m^*E}} = \frac{h}{\sqrt{3m^*kT}} \quad (1)$$

Iz izraza (1) može da se zaključi da talasna dužina zavisi od efektivne mase elektrona u poluprovodniku, m^* i temperature, pri čemu je h Plankova konstanta, a k Bolzmanova konstanta.

Kvantovanje energijskih stanja, odnosno prostorno ograničavanje nosilaca naelektrisanja se izvodi formiranjem potencijalnih barijera. U zavisnosti od izbora potencijalne barijere konfiniranje može da se vrši u jednom ili više pravaca, tako da se dobije tanak film, odnosno jama (quantum well, QW), zatim žica (quantum wire, QWR), ili tačka (quantum dot, QD), odnosno kutija. Ako je potrebno da se dobije poluprovodnički film prostorno ograničavanje se vrši u jednom pravcu (jednodimenziono kvantno-konfiniranje). Žica je dvodimenziono kvantno-konfinirana struktura, dok se kod tačke kvantni efekat javlja u sva tri pravca. Na slici 1 je predstavljen šematski prikaz ovih struktura, kao i masivni poluprovodnik kod koga ne postoji ovaj efekat.

U pravcima slobodnim od kvantnog-konfiniranja naelektrisanja se kreću slobodno, tako da se formira, takozvani, elektronski ili šupljinski gas. Kod kvantnih jama elektronski ili šupljinski gas se javlja su dve dimenzije, tako da se one ove nazivaju i 2D-strukture. Kvantne žice su 1D, a kvantne tačke 0D-strukture. Postojanje šupljinskog gasa kod kvantnih jama i žica uzrokuje formiranje energijskih podzona, dok se kod kvantnih tačaka javljaju diskretna stanja, analogna energijskim stanjima u atomu, pa se ove strukture nazivaju i **veštački atomi**.



Slika 1. Šematski prikaz kvantno-konfiniranih struktura

KVANTNE TAČKE

Kvantne tačke predstavljaju poluprovodne nanostrukture čiji su nosioci naelektrisanja prostorno ograničeni u sve tri dimenzije. Kao posledica toga osobine ovakvih sistema se prilično razlikuju od osobina makroskopskih poluprovodnika.

U poslednje vreme kvantne tačke su izučavane u tranzistorima, solarnim ćelijama, LED diodama i diodnim laserima. Takođe postoji primena ovih sistema u medicini. Neke kvantne tačke su čak i komercijalno dostupne.

U makroskopskim poluprovodnicima nosioci naelektrisanja elektroni i šupljine su obično vezani u okviru karakteristične dužine, takozvanog Borovog radijusa. U slučaju njihovog razdvajanja osobine poluprovodnika se znatno menjaju. Ovaj efekat je oblik kvantnog ograničavanja (konfiniranja) i postoji težnja da se koristi u različitim elektronskim strukturama.

Proizvodnja poluprovodničkih nanostrukturna struktura naglo se razvila sedamdesetih godina prošlog veka kada je omogućeno nanošenje tankih slojeva poluprovodničkih materijala sa preciznošću koja odgovara dimenzijama pojedinih atoma. Tehnologije koje su doprinele njihovom razvoju su *epitaksija tankih slojeva molekularnim snopom* (Molecular-Beam Epitaxy, MBA) i *metal-organsko hemijsko naparavanje* (Metal-Organic Chemical Vapour Deposition, MOCVD).

Materijali koji se koriste pri izradi ovih sistema u kombinaciji sa pomenutim tehnologijama su aluminijum arsenid (AlAs) i galijum arsenid (GaAs), koje karakterišu slične vrednosti konstanti kristalnih rešetki. Takođe, kombinacija indijum galijum arsenida ($\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$) i indijum fosfida (InP) se pokazala vrlo povoljnom. Podešavanjem masenog udela indijuma ili galijuma u $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ moguće je formirati strukturu sa napregnutom ili nenapregnutom kristalnom rešetkom. Korišćenjem indijum galijum arsenid fosfida ($\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_z\text{P}_{1-z}$) uvodi se još jedan stepen slobode. Promenom molskog udela arsenida, z, moguće je dobijanje strukture sa nenapregnutom kristalnom rešetkom, kao i kontrola diskontinuiteta provodnih, odnosno valentnih zona.

U prvom momentu bilo je moguće formiranje samo kvantnih jama, dok je razvoj kvantnih žica i tačaka omogućen nešto kasnije. Glavni problem pri izradi 1D i 0D-struktura predstavljala je poteškoća pri formiranju sistema odgovarajućih kristalnih karakteristika i malih dimenzija. Primena različitih tehnika, kao što su anizotropno nagrizanje i litografija, selektivna epitaksija, rast na zakošenom supstratu i konfiniranje

mehaničkim naprezanjem, zatim hemijska sinteza i samoorganizovano narastanje omogućila je proizvodnju kvantnih žica nanometarskih dimenzija, a samim tim i proizvodnju poluprovodničkih lasera sa optičkim i električnim pumpanjem na bazi 1D kvantnih nanostrukture.

Glavne tehnike izrade kvantnih tačaka su elektronska litografija, samoorganizacija i međupovršinska fluktuacija.

Proces samoorganizacije kvantnih tačaka se naziva SK prelaz, sa obzirom da podrazumeva Stranski-Krastanov metod rasta. Samoorganizujuće kvantne tačke su veličine između 10 nm i 50 nm, mada u zavisnosti od načina izrade mogu dostići i veličine preko 100 nm.

Samoorganizujuće kvantne tačke spontano mogu da nastanu pod određenim uslovima u toku epitaksije tankih slojeva ili metal-organskog hemijskog naparavanja, prilikom nanošenja materijala na supstrat čije se kristalne rešetke ne podudaraju. Pri povećavanju debljine kristalnih slojeva dolazi do pojačavanja napregnutosti, odnosno unutrašnjeg napona. Kako bi se kompenzovao unutrašnji napon, nakon dostizanja kritične vrednosti debljine sloja, formiraju se klasteri, odnosno trodimenziona ostrvca rastućeg kristala.

Radi formiranja kvantnih tačaka ovom tehnikom neophodno je da se prvo izvrši epitaksijalno narastanje barijernog sloja na supstratu. Nakon toga se uzgaja nekoliko monoslojeva materijala manje vrednosti energijskog procepa. Po završetku celog procesa postavlja se gornji barijerni sloj i time formira kvantna tačka.

Ograničenja ove metode su cena izrade i nedostatak kontrole tačnih pozicija pojedinih tačaka. Bez obzira na te probleme tehnologija samoorganizacije kvantnih tačaka ima potencijal za intenzivnu primenu u kvantnoj kristalografiji, kao i pri izradi kvantnih kompjutera.

OPTIČKE OSOBINE

Jedna od interesantnijih osobina kvantnih tačaka je njihova obojenost. Materijal od koga su tačke izrađene definiše njihove karakteristične energijske vrednosti, međutim tačne vrednosti energijskog procepa su određene veličinom tačke, odnosno jačinom kvantnog konfiniranja. Posledica ovoga je činjenica da tačke izrađene od istog materijala, ali različitih veličina emituju zračenje različitih talasnih dužina. Veće tačke emituju zračenje većih talasnih dužina u fluorescentnim spektrima, što je posledica veličine njihovih energijskih procepa.

Vrednosti energijskog procepa između valentne i provodne zone poluprovodnika, na sobnoj temperaturi, za obrađivane elemente su date u tabeli 1.

Tabela 1.

CdSe	CdTe	ZnSe	ZnTe
$E_g = 1.74 \text{ eV}$	$E_g = 1.45 \text{ eV}$	$E_g = 2.70 \text{ eV}$	$E_g = 2.40 \text{ eV}$

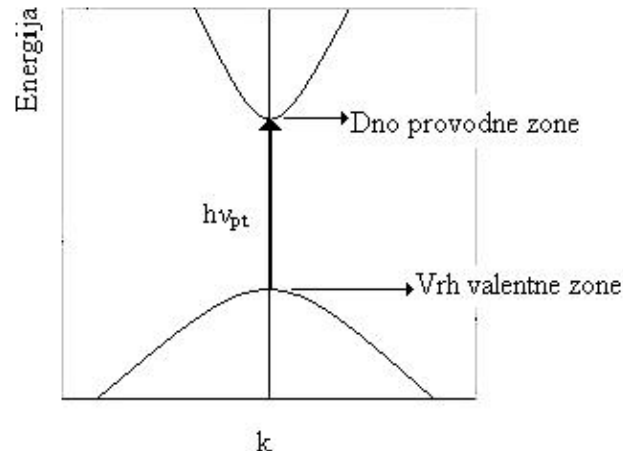
Novija istraživanja u nanotehnologiji navode na zaključak da veličina tačke može da ima značajan uticaj na njenu obojenost, odnosno karakteristike njenog spektra. Pokazano je da veličina tačke direktno utiče na vreme života fluorescencije. Parovi elektron-šupljina u većim tačkama žive duže, jer im je potrebno manje energije za pobuđivanje, [1].

Da bi kristal imao intenzivnu boju, on mora da ima dozvoljene dipolne elektronske ili fononske prelaze u vidljivoj oblasti spektra.

Prag kontinualne optičke apsorpcije, za određenu frekvenciju, definiše vrednost energijskog procepa:

$$E_g = h\nu_g \quad (2)$$

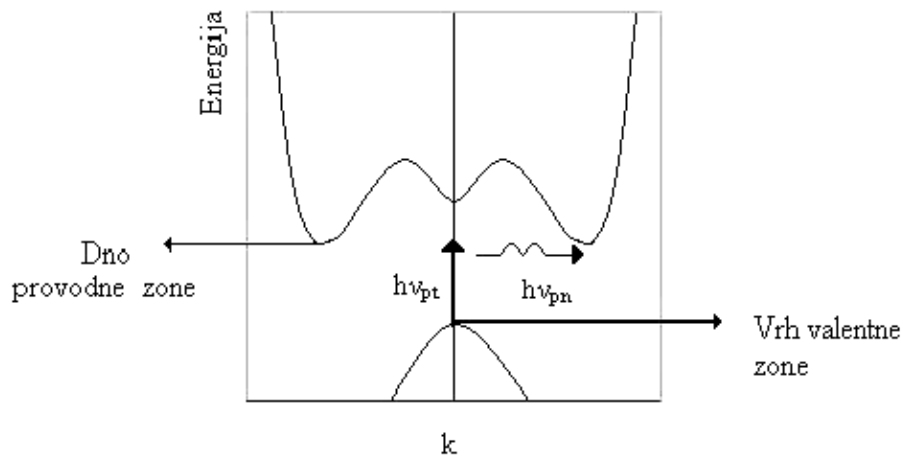
Prilikom apsorpcije fotona frekvencije ν_g elektron prelazi iz valentne u provodnu zonu i za sobom ostavlja upražnjeno mesto. U zavisnosti od oblika energijskog procepa i vrednosti energije upadnog fotona razlikuju se direktan i indirektan proces apsorpcije, slika 2 i 3.



Slika 2. Direktan optički prelaz apsorpcijom fotona, iz valentne u provodnu zonu

U slučaju prikazanom na slici 3 energija fotona, $h\nu_{pt}$, ne odgovara energijskoj vrednosti procepa, prema tome, da bi bio zadovoljen uslov održanja talasnog vektora stvara se fonon odgovarajuće frekvencije, ν_{pn} :

$$h\nu_{pt} = E_g + h\nu_{pn} \quad (3)$$



Slika 3. Indirektan optički prelaz pri kome dolazi do emisije fonona

Po pravilu energije fonona iznose oko 0.01 eV do 0.03 eV i znatno su manje od energije procepa. Ukoliko je temperatura dovoljno visoka i potrebni fononi su već prisutni, može da dođe i do procesa fononske apsorpcije.

FOTOLUMINISCENTNI PRELAZI

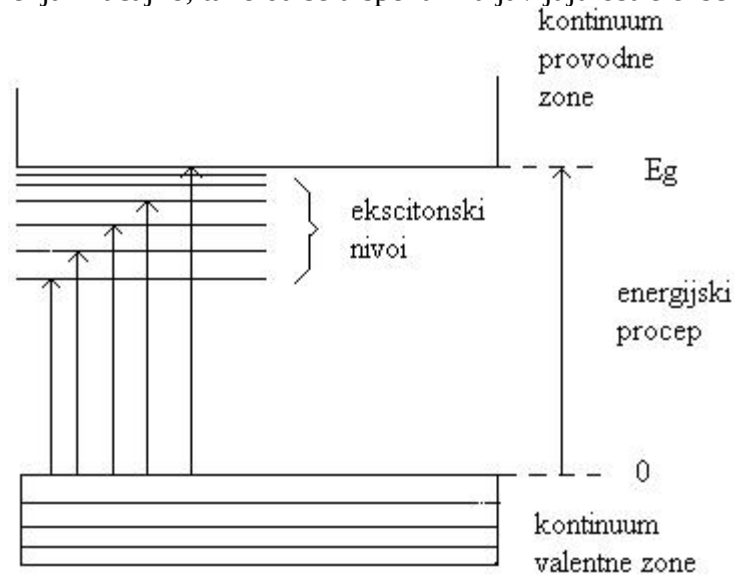
Luminiscencija je zajednički naziv za niz fizičkih, hemijskih i biohemijskih procesa koji za posledicu imaju zračenje svetlosti. Ovaj fenomen je karakterističan samo za medijume koji imaju diskretna elektronska stanja. U zavisnosti od načina pobuđivanja luminiscentni procesi mogu da se podele na nekoliko kategorija. Apsorpcijom svetlosti, nakon čega se javlja emisija zračenja iz vidljive ili ultraljubičaste oblasti spektra, pobuđuju se takozvani fotoluminiscentni procesi.

Fotoluminiscencija smeša II i VI grupe periodnog sistema obuhvata nekoliko tipova prelaza, između ostalih takozvane ekscitonske prelaze. Oštre linije, širine od 0.01 meV do 1 meV, srednjeg i slabijeg intenziteta glavna su karakteristika ekscitonskih prelaza.

EKSCITONSKI PRELAZI

U poluprovodnicima elektroni se nalaze u valentnim trakama. Apsorbovanjem fotona energije veće od energijskog procepa, elektroni se pobuđuju iz valentne u provodnu traku, pri čemu ostaje upražnjeno mesto, kvazičestica šupljina. Tada elektron i šupljina mogu slobodno da se kreću kroz kristalnu rešetku, nezavisno jedan od drugog. U slučaju da je energija fotona manja od ove vrednosti elektron i šupljina su povezani Kulonovim silama, pri čemu mogu da rotiraju oko zajedničkog centra mase u takozvanim kvazivodoničnim orbitalama. Nastalo stabilno, vezano stanje elektrona i šupljine se zove **eksciton** i ima nešto nižu vrednost energije nego što bi imao slobodni elektron. Eksciton može slobodno da se kreće kroz kristalnu rešetku prenoseći ekscitacionu energiju, ali ne i naelektrisanje, dok se ne raspadne ili dok ga ne zarobi defekt kristalne rešetke. Eksciton može da ima translacionu kinetičku energiju, ali ako je njena vrednost veća od energije veze ekscitona on je potencijalno metastabilan u odnosu na emisivnu rekombinaciju, pri kojoj elektron 'upada' u stanje šupljine u valntnoj zoni, što je praćeno emisijom fotona ili fonona.

Na slici 4 su prikazani energijski nivoi ekscitona čiji je centar mase u mirovanju. Optički prelazi su prikazani strelicama, pri čemu najduža odgovara jonizaciji ekscitona, odnosno energijskom procepu između granica provodne i valentne zone. Postoji kontinualan skup nivoa, pridruženih svakom od prikazanih ekscitonskih nivoa, pošto centar mase može da poseduje translacionu energiju. Kod direktnih optičkih prelaza ukupna translaciona energija se ne menja značajno, tako da se u spektrima javljaju oštre ekscitonske linije.



Slika 4. Energijski nivoi ekscitona

Energija jonizacije slobodnog ekscitona u odnosu na provodnu zonu posmatranog materijala je data izrazom:

$$E_{ex}^{free} = -\frac{\mu e^4}{2h^2 \epsilon^2} \frac{1}{n^2} \quad (4)$$

pri čemu je redukovana masa μ jednaka:

$$\mu = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*} \quad (5)$$

m_e^* i m_h^* su efektivna masa elektrona i šupljine, respektivno, a ϵ je dielektrična konstanta materijala.

Energijski nivoi ekscitona, u odnosu na vrh valentne zone su dati modifikovanom Ridbergovom jednačinom:

$$E_n = E_g - \frac{\mu e^4}{2h^2 \epsilon^2 n^2}$$

Energija osnovnog stanja ekscitona se dobija ako se za vrednost glavnog kvantnog broja uzme 1, ova energija odgovara jonizacionoj energiji, potrebnoj da se eksciton u svom najnižem stanju 'raspadne'.

Teško je ostvariti uslove pri kojima bi se posmatrali direktni prelazi između ekscitonskih nivoa, ali je zato kod optičkog apsorbovanja moguće zapaziti prelaze između vrha valentne zone i nekog ekscitonskog nivoa.

Prilikom rekombinacije slobodnog ekscitona emituje se zračenje energije:

$$h\nu = E_g - E_{ex}^{free} \quad (6)$$

E_g predstavlja energijsku razliku između valentne i provodne trake. U datom izrazu je zanemarena kinetička energija slobodnog ekscitona.

Kada u poluprovodnicima postoje nečistoće lako može da se formira kompleks vezanog ekscitona. Kao što je napomenuto eksciton može da bude zarobljen defektom ili nečistoćom kristalne rešetke, takođe slobodna šupljina može da se kombinuje sa neutralnim donatorom i formira pozitivan jon. Elektron tada rotira oko atoma donora po širokoj orbiti. Analogna situacija se javlja u slučaju kombinacije slobodnog elektrona sa neutralnim akceptorom. Vezane ekscitone karakterišu znatno oštrije linije koje se javljaju na nižim vrednostima energija. Ako je energija veze ekscitona za defekt E_{ex}^B , tada emisiona energija vezanog ekscitona iznosi:

$$h\nu = E_g - E_{ex}^{free} - E_{ex}^B \quad (7)$$

FONONI

Minimalan iznos energije koji kristalna rešetka može da emituje ili apsorbuje pri toplotnom oscilovanju odgovara prelazu normalne oscilacije rešetke sa datog energijskog nivoa na najbliži susedni. Ova količina energije, odnosno kvant energije toplotnih oscilacija rešetke se zove **fonon**.

Kuplovanje ekscitona sa kristalnom rešetkom može da izazove radijativne procese praćene emisijom fonona. Posledica toga je pojava serija ekvidistantnih linija u luminiscentnim spektrima poluprovodnika II i VI grupe periodnog sistema. Emisiona energija ekscitona u ovom slučaju iznosi:

$$h\nu = E_g - E_{ex}^{free} - nE_p \quad (8)$$

$n = 1, 2, 3, \dots$ E_{ex}^{free} je energija jonizacije ekscitona, a E_p energija posmatranog fonona.

U slučaju poluprovodnika II i VI grupe periodnog sistema emitovan fonon je najčešće longitudinalni optički. Pokazano je da intenzitet fononske replike najbolje opisan sledećom relacijom:

pri čemu I_n predstavlja relativni intenzitet n -linije koja potiče od emisije fotona plus n -longitudinalnih optičkih fonona. \bar{N} je eksperimentalno određen broj emitovanih longitudinalnih optičkih fonona, kojim je određena jačina kuplovanja defekta sa kristalnom rešetkom.
$$I_n = \frac{\bar{N}^n}{n!} I_0 \quad (9)$$

POLARONI

Elektron u kristalu interaguje posredstvom naelektrisanja sa jonima ili atomima kristalne rešetke i stvara lokalnu deformaciju rešetke. Deformacija teži da sledi elektron u toku njegovog kretanja kroz kristal. Kombinacija elektrona i polja deformacije koju stvara je poznata kao **polaron**. Najvažniji efekat koji prati ovu deformaciju je povećanje efektivne mase elektrona.

Mera jačine interakcije elektrona i rešetke je određena bezdimenzionalnom konstantom sprezanja α . Vrednost konstante je data izrazom:

$$\frac{1}{2} \alpha = \frac{E_{deformacije}}{h\nu_{LO}} \quad (10)$$

gde je $h\nu_{LO}$ frekvencija longitudinalnih optičkih fonona za talasni vektor blizak nuli. $\frac{1}{2} \alpha$ predstavlja broj fonona koji okružuju elektron, koji se sporo kreće kroz kristal. Kako je α uvek pozitivno masa polarona je veća od same efektivne mase elektrona.

FOTOLUMINISCENTNI PROCESI U KVANTNIM TAČKAMA CdTe/ZnTe I CdSe/ZnSe

Proučavanjem ekscitona i kvantnih tačaka u poluprovodnicima došlo se do zaključka da intrakcija longitudinalnih optičkih fonona i ekscitona može da bude jaka ili slaba u zavisnosti od korišćenih energija. Promenljivost ove interakcije potiče od diskretnih vrednosti energija kvantnih tačaka, odnosno od mogućnosti njihovog naštimavanja promenom veličine ili hemijskog sastava kvantnih tačaka.

Ako je razlika između osnovnog i prvog pobuđenog energijskog nivoa kvantne tačke uporediva sa energijom fonona javlja se vrlo jako kuplovanje ekscitona i longitudinalnih optičkih fonona. Posledica ovog režima je nastanak polarona, [2-4]. Korišćenjem fotoluminiscentne ekscitacije dobijaju se spektri na kojima jasno može da se uoči formiranje ove čestice u vidu Stokskove linije, [5]. Energijska razlika između ove linije i pobuđivačke linije lasera odgovara energiji vezivanja polarona.

Snimanjem fotoluminiscentnih spektara plitkih kvantnih tačaka ustanovljeno je da polaron karakterišu pobuđena stanja, čija energijska razlika odgovara energiji longitudinalnih optičkih fonona. Bitna karakteristika polarona je njihova stabilnost na sobnim temperaturama i relativno dugo vreme života.

Slaba eksciton-fonon interakcija se javlja kada je energijska razlika između osnovnog i prvog pobuđenog stanja znatno veća od energije longitudinalnih optičkih fonona. U ovom slučaju formira se eksciton-fonon kompleks, koji se uočava kao široka emisiona linija na fotoluminiscentnim i rezonantno pobuđenim fotoluminiscentnim spektrima, [6-11]. Od pobuđivačke linije lasera je deli vrednost energije koja odgovara višestrukim energijama fonona.

Postoji nekoliko radova koji se bave eksciton-fonon kuplovanjem, odnosno zavisnošću jačine kuplovanja od veličine kvantne tačke, [11]. Međutim, ne postoji jasan dokaz o uticaju veličine tačke na jačinu kuplovanja u jednom ansamblu kvantnih tačaka.

Nedostatak eksperimentalnih dokaza je posledica činjenice da je potrebna ekstremno mala kvantna tačka. U slučaju kvantnih tačaka čije su veličine uporedive ili manje od Borovog radijusa ekscitona, promena talasne funkcije ekscitona nastale zbog konfiniranja ekscitona, uzrokuje promenu dipolnog momenta ekscitona, što dalje ima za posledicu promenu jačine interakcije između ekscitona i fonona.

U većini eksperimenata su proučavane tačke radijusa većeg od Borovog. Tipična veličina CdSe kvantnih tačaka varira od 15 nm do otprilike Borovog radijusa ekscitona, koji iznosi oko 3 nm, [12]. U slučaju većih tačaka promena talasne funkcije ekscitona ne bi trebalo da bude značajna za kvantne tačke u jednom ansamblu. Prema tome za velike kvantne tačke ne bi trebalo da postoji zavisnost veličine i eksciton-fonon kuplovanja.

U ovom radu analizirana su dva tipa samoorganizujućih kvantnih tačaka poluprovodnika druge i šeste grupe periodnog sistema, korišćenjem fotoluminiscentne ekscitacije i rezonantno pojačane fotoluminiscencije. Korišćene su samoorganizujuće CdTe/ZnTe kvantne tačke veličina između 2 nm i 4 nm, što je znatno manje od Borovog radijusa ekscitona koji u ovom slučaju iznosi oko 10 nm. Sa druge strane posmatrane su CdSe/ZnSe tačke, čiji dijometri iznose od 8 nm do 10 nm, odnosno tačke radijusa većeg od Borovog.

Rezultati ovog rada pokazuju da CdSe kvantne tačke imaju slabo eksciton-fonon kuplovanje, dok je kuplovanje kod CdTe tačaka znatno pojačano. Povećavanjem prosečne veličine CdTe kvantne tačke, u istom uzorku, jasno se vidi da intenzitet eksciton-fonon kuplovanja opada, slično kao kod CdSe kvantnih tačaka.

Ekscitoni konfinirani CdTe i CdSe kvantnim tačkama bi trebalo da imaju slabu eksciton-fonon interakciju, što je posledica velike razlike između energije longitudinalnih optičkih fonona i rastojanja između osnovnog i prvog pobuđenog energijskog nivoa tačaka. Povećanje interakcije za male kvantne tačke je pripisano promenama talasne funkcije ekscitona konfiniranih kvantnim tačkama.

UZORCI I EKSPERIMENTALNI PODACI

CdTe/ZnTe i CdSe/ZnSe uzorci su narastani epitaksijom tankih slojeva molekularnim snopom na GaAs supstratu. Samoorganizujuće CdSe kvantne tačke kao i CdTe kvantne tačke su formirane depozicijom monoslojeva na ZnSe, odnosno ZnTe površinama, zatim prekrivene slojem ZnSe (ZnTe) debljine 50 nm. Ovakva kombinacija uzoraka omogućava proučavanje kvantnih tačaka različitih veličina. Kao što je napomenuto CdTe kvantne tačke su vrlo male 2-4 nm. Ovo je bilo moguće proceniti transmisionom elektronskom mikroskopijom. Sa druge strane prosečna veličina CdSe kvantne tačke je veća i iznosi od 8 nm do 10 nm.

CdTe kvantne tačke su kasnije povećane zagrevanjem i sporim hlađenjem na temperaturi od 470 °C u atmosferi argona, 15 sekundi. Određeno je da veličina tačke nakon obrade iznosi od 6 nm do 8 nm.

Da bi se dobili što bolji rezultati uzorak je hlađen na temperaturi od 6 K, što je ostvareno stalnim protokom tečnog helijuma. Kao izvor zračenja je korišćen Ar⁺ bojeni laser (rodamin 590). Korišćenjem mikroskopa snop je usmeren na tačku prečnika 1.7 µm. Emitovano zračenje je detektovano LN₂ – hlađenim CCD detektorom.

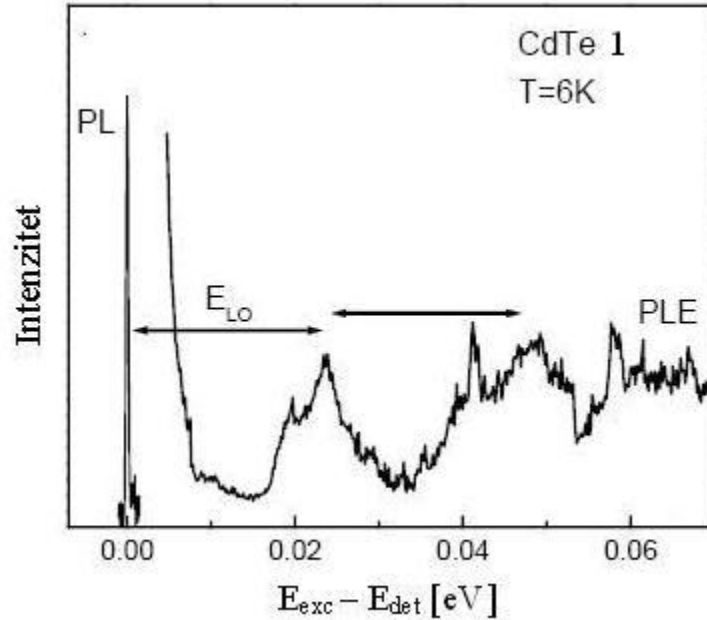
Istovremeno proučavanje većeg broja kvantnih tačaka je omogućeno multikanalnom detekcijom. Ekscitacioni spektar koji potiče od jedne kvantne tačke je dobijen analiziranjem intenziteta određene emisije linije u funkciji od pobudne energije lasera. Kod eksperimenata rađenih fotoluminiscentnom ekscitacijom spektralna rezolucija je iznosila oko 100 µeV.

Takođe, vršena su merenja rezonantno pojačanom fotoluminiscencijom CdSe kvantnih tačaka i CdTe kvantnih tačaka većih dimenzija. U ovom slučaju korišćeni su podešavajući bojeni laseri rodamin 590 i kumarin 6. Spektralna rezolucija za u ovom slučaju je iznosila oko 70 μeV .

FOTOLUMINISCENTNA EKSCITACIJA JEDNE KVANTNE TAČKE

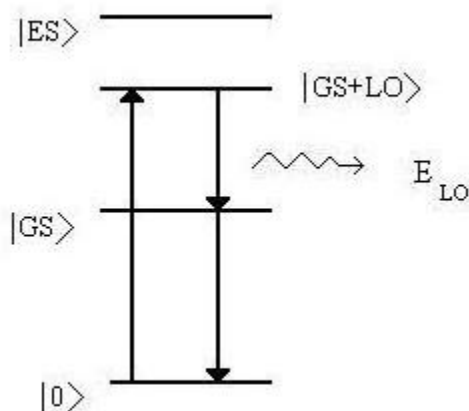
Na slici 5 predstavljen je fotoluminiscentni spektar jedne kvantne tačke CdTe. Apertura korišćena za ovo snimanje je dijametra 0.8 μm . Širina ovih linija, dobijenih rezonantno pojačanom fotoluminiscencijom iznosi oko 100 μeV , što je tipično za kvantne tačke poluprovodnika II i VI grupe periodnog sistema, [13].

Na spektru se može uočiti široki ekscitacioni pik na relativnoj energiji od 22 meV koji je pripisan fononski potpomognutom prelazu na osnovno stanje. Ovaj prelaz je šematski prikazan na slici 6. Proučavajući kvantne tačke InAs i CdSe uočeno je da postoje linije koje se takođe mogu pripisati istom mehanizmu.



Slika 5. Ekscitacioni fotoluminiscentni spektar narastane CdTe kvantne tačke snimljen na temperaturi od 6K. Strelicom je obeležena vrednost energije fonona.

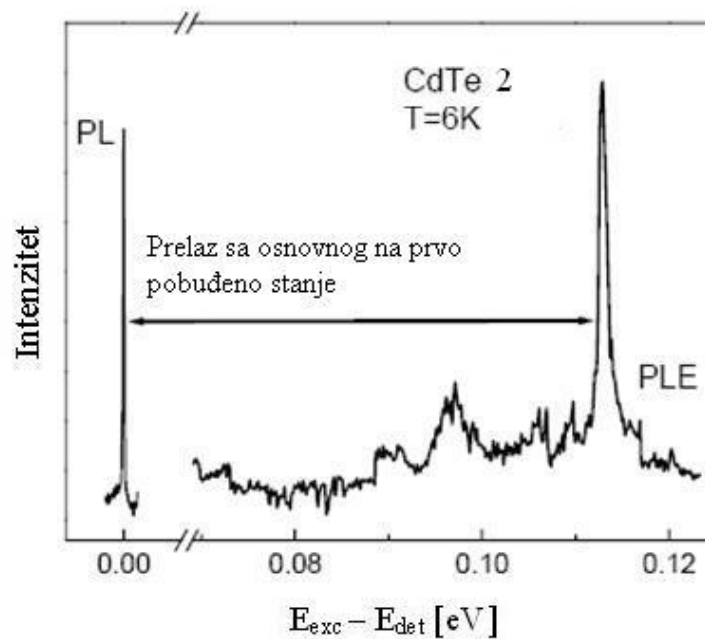
Konkretno, fononske energije makroskopskih poluprovodnika izrađenih od CdTe i ZnTe iznose respektivno 21 meV i 24 meV, što odgovara rastojanju između energijskih nivoa, prikazanih na slici 6. Prisustvo linija koje su posledica fononski potpomognutih prelaza u ZnTe ukazuje na promenu talasnih funkcija ekscitona konfiniranih kvantnim tačkama, odnosno na činjenicu da talasne funkcije 'prelaze' ZnTe barijere.



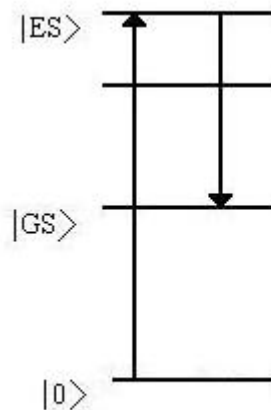
Slika 6. Energijski dijagram i fononski asistiran prelaz sa pobuđenog na nulti nivo

Na energijama manjim od 10 meV javlja se oštar pik. Postoje različite pretpostavke šta uzrokuje njegovu pojavu, međutim nijedna teorija do sada nije dala adekvatno objašnjenje.

Na slici 7 moguće je primetiti intenzivan i oštar pik, širine ispod 2 meV, u oblasti slobodnoj od pozadinskog zračenja. Proučavanjem nekoliko desetina pojedinih CdTe kvantnih tačaka određeno je da se ove linije uglavnom nalaze u rangu od 80 meV do 140 meV iznad energije detekcije kvantne tačke.



Slika 7. Ekscitacioni fotoluminiscentni spektar narastane CdTe kvantne tačke snimljen na temperaturi od 6K. Obeležena je energija prelaza sa osnovnog na prvo pobuđeno stanje.



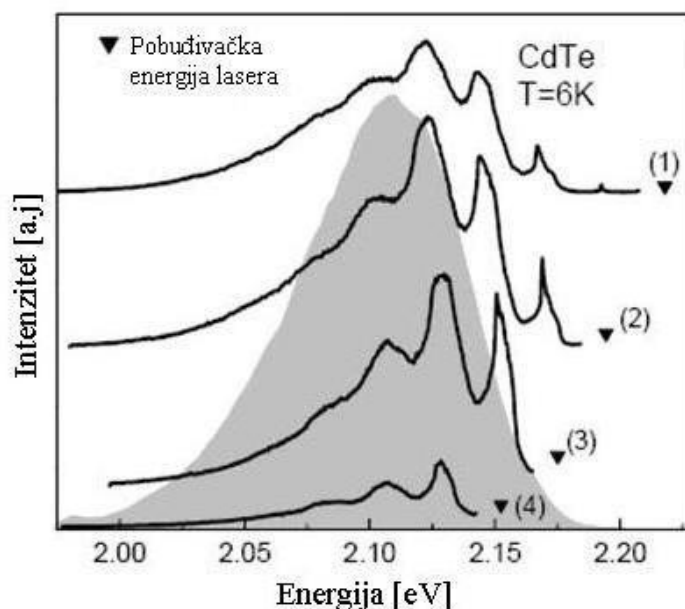
Slika 8. Direktan prelaz sa pobuđenog na osnovno stanje kvantne tačke

Energijska razlika između ovih rezonancija i detekcionih energija varira od tačke do tačke, što je direktna posledica uticaja veličine i hemijskog sastava ansambla kvantnih tačaka. Pripisuje se direktnom prelazu sa pobuđenog osnovno stanje, prikazanom na slici 8.

Primećeno je da je u proseku energija pobuđenog stanja kvantne tačke CdTe znatno veća nego kod InAs ili CdSe kvantnih tačaka, [14]. Kako je energijska razlika direktno povezana sa jačinom prostornog konfiniranja može se zaključiti da su ekscitoni u kvantnim tačkama CdTe vrlo ograničeni. Ovaj zaključak odgovara pretpostavci da male kvantne tačke imaju jako konfinirane ekscitone.

REZONANTNA FOTOLUMINISCENCIJA ANSAMBLA KVANTNIH TAČAKA

Na osnovu prethodno iznešenih podataka dolazi se do zaključka da postoje dva dominantna procesa: direktna ekscitacija u osnovno stanje kvantne tačke fononski potpomognutim prelazom ili ekscitacija u pobuđeno stanje, praćena relaksacijom u osnovno stanje. Prema tome, pri rezonantnom pobuđivanju ansambla kvantnih tačaka poterbno je posmatrati oba procesa.



Slika 9. Rezonantno i nerezonantno pobuđeni fotoluminiscentni spektri CdTe kvantne tačke.

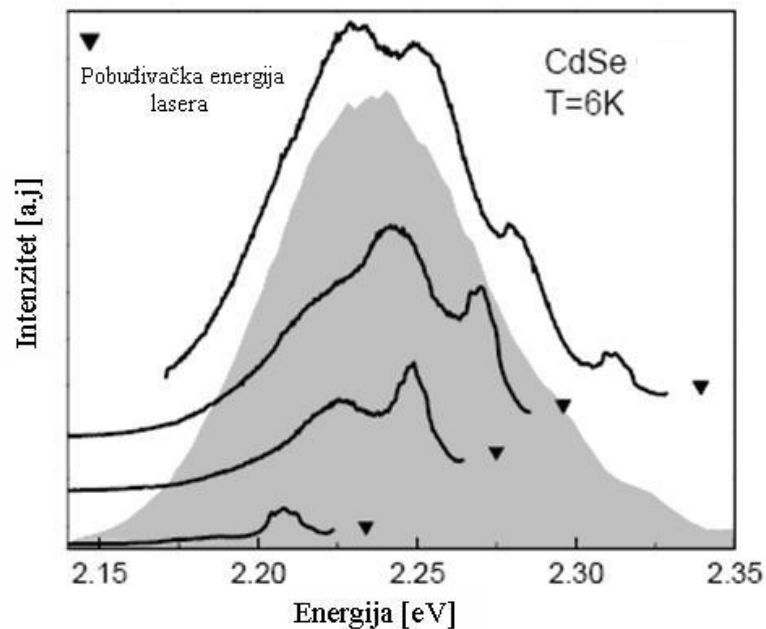
Na slici 9 su prikazani rezonantno pobuđeni fotoluminiscentni spektri CdTe kvantne tačke, dobijeni merenjem na temperaturi od 6 K i korišćenjem aperture od 1.5 μm . Za svaki spektar je trouglovima obeležena pobuđivačka energija lasera. Radi bolje preglednosti spektar je pomeren vertikalno i upoređen sa spektrom kvantnih tačaka dobijenim nerezonantnim fotoluminiscentnim pobuđivanjem, osenčena oblast.

U zavisnosti od ekscitacione energije lasera spektar rezonantno pobuđene fotoluminiscencije sadrži do četiri jasno razdvojene linije superponirane na izrazitu pozadinu. Energijska razlika između ovih linija iznosi oko 22 meV, što odgovara energijskoj razlici između detekcione energije i apsorpcione linije fonona prikazane na slici 5. Oblik prve fononske replike je vrlo sličan apsorpcionom piku predstavljenom na slici 5. Ove linije direktno mogu da se pripišu prelazu kvantnih tačaka iz njihovog pobuđenog u osnovno stanje fononski potpomognutom apsorpcijom. Takođe može da se primeti da intenzitet pika zavisi od ekscitacione energije. Na primer, na spektru 2 slike 9 najintenzivniji je treći pik, dok je na spektru 4, iste slike, jasno da je prvi pik znatno izraženiji od ostalih. Bitno je naglasiti da su na svim spektrima trake iza prve dosta šire u odnosu na nju. Pretpostavlja se da je širenje posledica rasejanja akustičnih fonona, [15].

Da bi se utvrdio uticaj veličine kvantne tačke na ekscitacione procese vršena su merenja rezonantnom fotoluminiscencijom CdSe kvantnih tačaka. Kao i u prethodnim merenjima ustanovljeno je da dva glavna procesa deekscitacije su upravo fononski potpomognuta prelaz i direktan prelaz sa pobuđenog na osnovno stanje. Na slici 10 prikazan je primer rezonantnog fotoluminiscentnog spektra kvantne tačke CdSe snimljen za različite

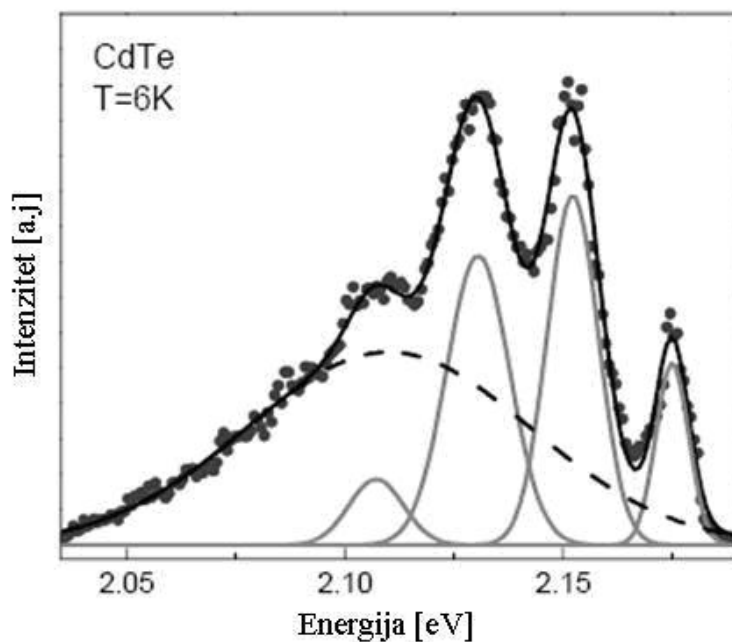
ekscitacione energije. Na slici je takođe predstavljen spektar istog uzorka snimljen nerezonantno pobuđenom fotoluminiscencijom.

Može da se primeti da je spektar kvantne tačke CdSe relativno sličan spektru kvantne tačke CdTe. Oba spektra sadrže fononske linije kao i široku pozadinsku luminiscenciju.

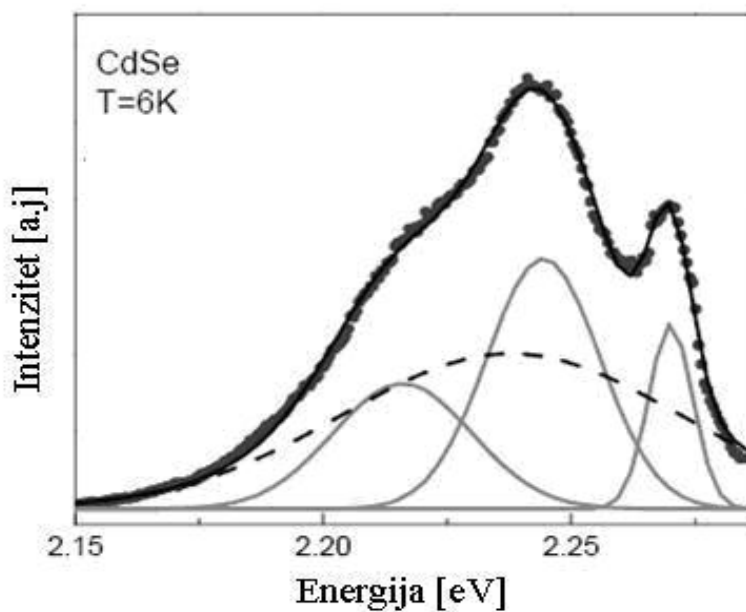


Slika 10. Rezonantno pobuđen fotoluminiscentni spektri CdSe kvantne tačke, vertikalno pomeren u odnosu na nerezonantno pobuđenu fotoluminiscentnu emisiju.

Da bi se odredila zavisnost intenziteta svake komponente u spektru od ekscitacione energije lasera eksperimentalno dobijeni podaci se podešavaju sa serijom linija Gausovog oblika, slika 9 i 10. Ekstrapolisanjem rezultata fotoluminiscentne ekscitacije jedne kvantne tačke preko celog ansambla utvrđeno je da je oblik i intenzitet linije u fotoluminiscentnom spektru upravo određen prethodno pomenutim procesima. Kako su merenja vršena na izuzetno niskim temperaturama efekat apsorpcije zračenja od strane akustičnih fonona može da se zanemari. Takođe mogućnost pojave Ožeevovih prelaza je eliminisan korišćenjem lasera male ekscitacione energije. Rezultati fitovanja za CdTe kvantne tačke i CdSe kvantne tačke su predstavljeni na slici 11a i 11b respektivno. Može da se primeti da se fitovani i eksperimentalno dobijeni rezultati prilično dobro poklapaju. Ovim postupkom bilo je moguće odrediti uticaj oba mehanizma na ansamblima ovih tačaka.



(a)

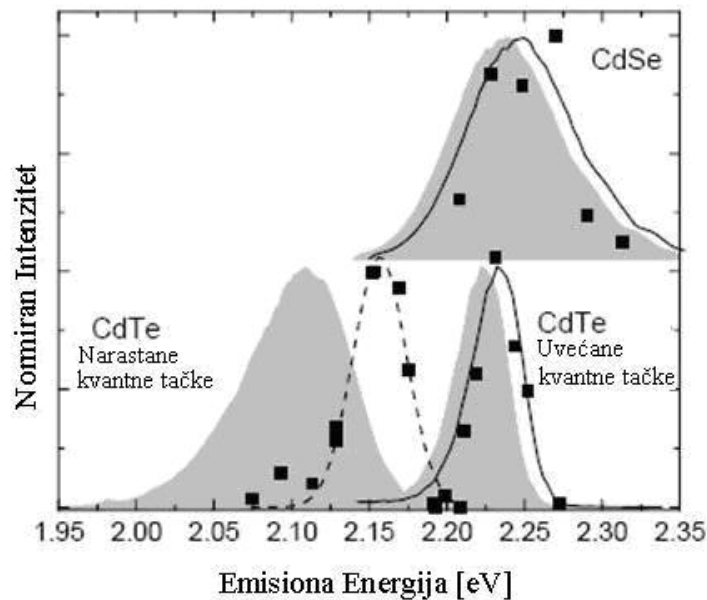


(b)

Slika 11. Grafički prikaz eksperimentalnih podataka prikupljenih rezonantnim fotoluminiscentnim pobuđivanjem (a) CdTe kvantne tačke i (b) CdSe kvantne tačke. Isprekidanom linijom je predstavljen doprinos emisije sa pobuđenjog na osnovno stanje, dok svetle linije obeležavaju doprinos fononski asistiranog prelaza.

Na slici 12 je predstavljena zavisnost intenziteta prve fononske replike od emisione energije CdSe kvantne tačke, kao i CdTe kvantnih tačaka. Eksperimentalno dobijeni podaci su predstavljeni kvadratima i upoređeni su sa podacima dobijenim nerezonantnim pobuđivanjem, osenčena oblast. Punom linijom je dat nerezonantni spektar pomenen za 10 meV prema većim energijama, dok je isprekidanom linijom predstavljen poslednji eksperimentalno dobijeni podatak.

Više fononske replike pokazuju slično ponašanje kao i prva, mada pikovi mogu da budu širi, verovatno zbog rasejanja na akustičnim fononima.



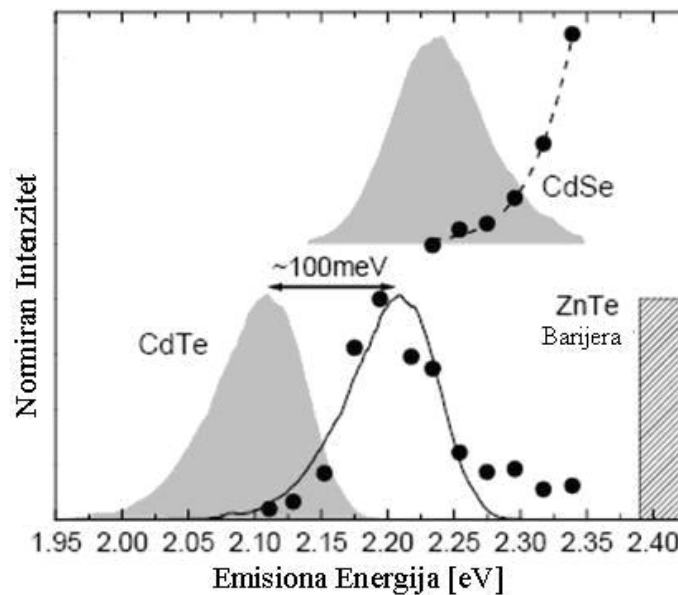
Slika 12. Intenzitet prve fononske replike predstavljen za CdSe kvantne tačke, narastane CdTe i naknadno uvećane CdTe kvantne tačke. Osenčene oblasti na slici predstavljaju nerezonantno pobuđene fotoluminiscentne fononske replike, dok su punim linijama označene replike pomerene za 10 meV ka većim vrednostima energija.

Primećuje se da zavisnost intenziteta od emisione energije varira od uzorka do uzorka. U slučaju većeg uzorka CdSe maksimum intenziteta pika kao i njegova širina pokazuju dobro poklapanje sa rezultatima dobijenim nerezonantnom fotoluminiscencijom. Kod malih kvantnih tačaka CdTe maksimum intenziteta je pomeren ka većim vrednostima energija za oko 50 meV u odnosu na maksimum pika dobijenog nerezonantnim pobuđivanjem. Širina ovog pika iznosi približno 30 meV, što je za oko 40 meV manje od nehomogenog širenja pika dobijenog nerezonantnim pobuđivanjem. Kada se posmatra isti uzorak CdTe, prethodno uvećan, primećuje se da se ponaša slično kao i CdSe kvantne tačke. Shodno tome, zaključujemo da eksciton-fonon kuplovanje u kvantnim tačkama elemenata II i VI grupe periodnog sistema zavisi direktno od veličine kvantne tačke.

Prehodna merenja su vršena da bi se ustanovila zavisnost emisione energije od fononski potpomognute apsorpcije u kvantnim tačkama. Takođe, merena je zavisnost intenziteta emisije kvantnih tačaka, koja je direktna posledica prelaska sa pobuđenog u osnovno stanje, od ekscitacione energije.

Dobijeni podaci su predstavljeni na slici 13 i kao u prethodnim slučajevima upoređeni sa rezultatima dobijenim nerezonantnom fotoluminiscencijom, osenčene oblasti. Za kvantne tačke CdTe utvrđeno je da je maksimum pika pomeren za oko 100 meV u odnosu na maksimum osenčenog pika, što odgovara energijskoj razlici između osnovnog i pobuđenog stanja jedne kvantne tačke CdTe. Može da se primeti da se oblici oba pika podudaraju.

Sa druge strane za CdSe kvantne tačke primećuje se monotono povećanje intenziteta za isti tip prelaza, čak i za energije iznad 100 meV u odnosu na nerezonantni fotoluminiscentni spektar.



Slika 13. Intenzitet direktnog prelaza sa pobuđenog na osnovno stanje CdSe i CdTe kvantne tačke dat kao funkcija ekscitacione energije, upoređen sa intenzitetom nerezonantno pobuđenog fotoluminiscentnog prelaza, osenčena oblast.

DISKUSIJA

Na osnovu iznešenih rezultata omogućeno je dobijanje slike o ekscitacionim mehanizmima u samoorganizujućim kvantnim tačkama poluprovodnika II i VI grupe periodnog sistema. Utvrđeno je da postoje dva glavna procesa koja određuju optičke osobine ovih struktura. Prvi je direktno vezan sa kuplovanjem ekscitona, prostorno ograničenih kvantnim tačkama, sa fononima, dok je drugi posledica prelaza kvantne tačke sa pobuđenog na osnovno stanje.

Merenja vršena fotoluminiscnetnom ekscitacijom objašnjavaju direktne prelaze sa pobuđenog na osnovno stanje. Ovi procesi se manifestuju u vidu vrlo oštne linije u spektru jedne tačke. Energijsko rastojanje između ovih linija i energije osnovnog stanja kvantne tačke je različito za različite tačke zbog fluktuacija parametara kvantnih tačaka u okviru jednog ansambla. Glavni faktor koji određuje energijsku razliku između osnovnog i pobuđenog stanja je jačina porstornog ograničenja ekscitona. Pokazano je da je za male CdTe kvantne tačke (2 nm – 4 nm) energija pobuđenog stanja za oko 100 meV veća od energije osnovnog stanja. Širina pikova u spektru direktno predstavlja vreme života ovih prelaza. Sa obzirom da je reda veličine pikosekunde zaključuje se da su ovi ekscitacioni procesi izuzetno efektivni.

Podaci prikupljeni rezonantnom fotoluminiscnetnom se prilično poklapaju sa podacima dobijenim pomoću fotoluminiscnetne ekscitacije. Na spektrima kvantnih tačaka CdTe jasno se vidi pozadinsko zaraćenje čiji intenzitet zavisi od ekscitacione energije. Može se reći da ova zavisnost aproksimativno predstavlja raspodelu energija kvantnih tačaka u ansamblu. Zaključeno je da pobuđena stanja kvantnih tačaka u CdTe imaju sličnu energijsku raspodelu kao osnovno stanje. Takođe, već je napomenuto da energijska razlika između maksimuma pika i pika dobijenog nerezonantnom fotoluminiscencijom, od 100 meV odgovara energijskoj razlici između osnovnog i pobuđenog stanja.

U slučaju nešto većih CdSe kvantnih tačaka intenzitet pika koji potiče od prelaza sa prvog pobuđenog na osnovno stanje pokazuje kontinualni porast sa porastom ekscitacione energije, čak preko 100 meV iznad maksimuma pika dobijenog nerezonantnom fotoluminiscencijom. Činjenica da se ne primećuju spektralne linije ispod 100 meV ukazuje na to da intenzitet pozadinske emisije potiče od prelaza sa osnovnog na pobuđeno stanje, kao i kod manjih CdTe kvanenih tačaka.

Oštre linije u spektrima fotoluminiscnetne ekscitacije i pozadinska emisija u rezonantno pobuđenim fotoluminiscnetnim spektrima su posledica direktne relaksacije sa osnovnog na pobuđeno stanje. Ovo može da se zaključi na osnovu toga da je i kod CdTe i CdSe

kvantnih tačaka energijska razlika između osnovnog i pobuđenog stanja znatno veća od energija fonona karakterističnih za ovaj materijal. Time je opravdana pretpostavka da ekscitoni i longitudinalni optički fononi vrlo slabo interaguju u ovim kvantnim tačkama.

Iako je energija prelaza sa osnovnog na prvo pobuđeno stanje kvalitativno slična za CdTe i CdSe kvantne tačke fononski asistirani procesi pokazuju određene razlike. Kako može da se vidi na slici 12 u slučaju većih CdSe kvantnih tačaka zavisnost maksimuma intenziteta pika prve fononske replike od emisije energije odgovara maksimumu energije pika dobijenog nerezonantno pobuđenom fotolumiscnecijom. Širine ovih pikova su takođe približne. Rečeno je da fononsko rasejanje u CdSe kvantnim tačkama ne zavisi od njihove veličine, prema tome intenzitet pika odražava energijsku raspodelu osnovnog stanja u ansamblu kvantnih tačaka. Veličina eksciton-fonon kuplovanja u ovim tačkama je slična direktnoj relaksaciji sa pobuđenog na osnovno stanje. Zaključeno je da je za CdSe kvantne tačke raspodela veličina kvantnih tačaka u ansamblu suviše uzana da bi uzrokovala bilo kakve bitne promene elektronskih talasnih funkcija i talasne funkcije šupljina. Ovakav zaključak se podudara sa prethodno objavljenim rezultatima na osnovu kojih je pokazano da eksciton-fonon kuplovanje ne zavisi od veličina kvantne tačke proučavanih u ovom slučaju, [17].

U slučaju CdTe kvantnih tačaka, koje su znatno manje od CdSe, preklapanje talasnih funkcija elektrona i šupljina konfiniranih kvantnim tačkama je jasno primećeno, slika 5. Eksperimentalni rezultati pokazuju da u ovom slučaju ekscitoni izrazitije reaguju sa longitudinalnim optičkim fononima. Širina pika na grafiku zavisnosti intenziteta prve fononske replike od emisije energije je mnogo uža od energijske raspodele cele kvantne tačke. Takođe, primećuje se veliko razilaženje maksimuma.

Kako intenzitet fononske replike zavisi i od eksciton-fonon kuplovanja i gustine stanja bilo je bitno izvršiti dekonvoluciju zavisnosti nađenih za prvu fononsku repliku CdTe kvantnih tačaka sa nerezonantnim spektrom. Time je dobijena zavisnost emisije energije kvantne tačke od jačine fononskog kuplovanja. Pretpostavljeno je da zbog male veličine tačaka postoji izraženo pojačanje kuplovanja ekscitona i fonona za tačke sa većom emisionom energijom. Postoje radovi u kojima se teorijski predviđa ovakva zavisnost za slične sisteme, [17].

Dokazano je da povećavanje CdTe kvantnih tačaka dovodi do povećanja prosečne veličine kvantne tačke i samim tim doprinosi poboljšanju homogenosti ansambla. Kako su tačke veće, a raspodela veličina manja eksperimentalno mereni intenzitet fononske replike isključivo zavisi od energijske raspodele osnovnog stanja, slika 12.

ZAKLJUČAK

Eksperimentalni podaci su pokazali da u kvantnim tačkama CdSe i CdTe postoje dva ekscitaciona mehanizma. Prvi proces je direktni prelaz u prvo pobuđeno stanje kvantne tačke praćeno relaksacijom u osnovno stanje, pri čemu je proces determinisan raspodelom energija unutar ansambla kvantnih tačaka. Drugi bitan mehanizam je direktna ekscitacija u osnovno stanje praćena emisijom longitudinalnog optičkog fonona.

Analiziranjem fotoluminiscentnih spektara, dobijenih rezonantnim pobuđivanjem kvantnih tačaka, dolazi se do zaključka da jačina kuplovanja ekscitona sa longitudinalnim optičkim fononima raste za tačke radijusa manjeg od Borovog. U slučaju tačaka većeg radijusa jačina ove interakcije je prilično nezavisna od ekscitacione energije, što ukazuje na to da je intenzitet fononske replike određen raspodelom energija osnovog stanja unutar ansambla. Spektri uvećanih CdTe tačaka takođe ne pokazuju ovu zavisnost.

Ovi rezultati nagoveštavaju da u režimu slabog kuplovanja ekscitona i fonona jačina ove interakcije može da bude značajna za male tačke što je u saglasnosti sa novijim teorijskim pretpostavkama.

LITERATURA

- [1] A. F. van Driel, G. Allan, C. Delerue, P. Lodahl, W. L. Vos and D. Vanmaekelbergh, Frequency-dependent spontaneous emission rate from CdSe and CdTe nanocrystals: Influence of dark states, *Physical Review Letters*, 95, 236804
- [2] V.M. Fomin, V.N. Gladilin, J.T. Devreese, E.P. Pokatilov, S.N. Balaban, and S.N. Klimin, *Phys. Rev.* **B 57**, 2415 (1998).
- [3] D.V. Melnikov and W. Beall Fowler, *Phys. Rev.* **B 63**, 165302 (2001).
- [4] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 146803 (2002); *Phys. Rev.* **B 66**, 081308 (2002)
- [5] T. Itoh, M. Nishijima, A.I. Ekimov, C. Gourdon, A.L. Efros, and M. Rosen, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1645 (1995).
- [6] R. Heitz, M. Veit, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kopev, Zh.I. Alferov, *Phys. Rev.* **B 56**, 10435 (1997).
- [7] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J.L. Merz, P.M. Petroff, *Phys. Rev.* **B 52**, 5752 (1995).
- [8] M. Lowisch, M. Rabe, F. Kreller, F. Henneberger, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2489 (1999).
- [9] H. Rho, L. M. Robinson, L. M. Smith, H. E. Jackson S. Lee M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1813 (2000).
- [10] M.J. Steer, D.J. Mowbray, W.R. Tribe, M.S. Skolnick, M.D. Sturge, M. Hopkinson, A.G. Cullis, C.R. Whitehouse, and R. Murray, *Phys. Rev.* **B 54**, 17738 (1996)
- [11] M. Bissiri, G. Baldassarri, M. Capizzi, P. Frigeri, and S. Franchi, *Phys. Rev.* **B 64**, 245337 (2001).

[12] C.S. Kim, M. Kim, S. Lee, J.K. Furdyna, M. Dobrowolska, H. Rho, L.M. Smith, H.E. Jackson, E.M. James, Y. Xin, and N.D. Browning, Phys. Rev. Lett. **85**, 1124 (2000).

[13] T. Kummell, R. Weigand, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel, and H. Selke, Appl. Phys. Lett. **73**, 3105 (1998); A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V.B. Timofeev, F. Schafer, and J.P. Reithmaier, Phys. Rev. **B 58**, 7508 (1998); D. Gammon, E.S. Shaw, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, and D. Park, Science **273**, 87 (1996); V. Nikitin, P.A. Crowell, J.A. Gupta, D.D. Awschalom, F. Flack, and N. Samarth, Appl. Phys. Lett. **71**, 1213 19 (1997); J. C. Kim, H. Rho, L. M. Smith, H. E. Jackson, S. Lee, M. Dobrowolska, J. L. Merz, and J. K. Furdyna, Appl. Phys. Lett. **73**, 3399 (1998).

[14] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, F. Henneberger, Phys. Rev. Lett. **86**, 3172 (2001).

[15] M. Lowisch, M. Rabe, F. Kreller, F. Henneberger, Appl. Phys. Lett. **74**, 2489 (1999).

[16] H. Rho, L. M. Robinson, L. M. Smith, H. E. Jackson S. Lee M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, Appl. Phys. Lett. **77**, 1813 (2000).

[17] D.V. Melnikov and W. Beall Fowler, Phys. Rev. **B 64**, 245320 (2001).

