

# Коллективное состояние межъямных экситонов в GaAs/AlGaAs двойных квантовых ямах при импульсном резонансном возбуждении

А. В. Ларионов<sup>1)</sup>, В. Б. Тимофеев, И. Хвам<sup>+2)</sup>, К. Соеренсен<sup>+2)</sup>

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>+</sup> Microelectronic Centre, DK 2800 Lyngby, Denmark

Поступила в редакцию 18 января 2002 г.

В двойных GaAs/AlGaAs квантовых ямах ( $n-i-n$ -структуры) исследовалась временная эволюция и кинетика спектров фотолюминесценции (ФЛ) межъямных экситонов при импульсном резонансном возбуждении внутриямных  $1sHH$ -экситонов с помощью импульсного, перестраиваемого по частоте лазера. Было установлено, что коллективная экситонная фаза возникает с временной задержкой относительно возбуждающего импульса (несколько наносекунд), которая обусловлена релаксацией плотности и температуры к равновесным значениям. Возникновение коллективной фазы межъямных экситонов сопровождается сильным сужением соответствующей линии фотолюминесценции (ширина линии около 1.1 мэВ), сверхлинейным ростом ее интенсивности, большим временем изменения степени циркулярной поляризации, сдвигом спектра ФЛ в сторону меньших энергий (около 1.5 мэВ) в соответствии с заполнением нижайшего состояния экситонным бозе-конденсатом, а также существенным увеличением скорости излучательного распада конденсированной фазы. Коллективная экситонная фаза возникает при температурах  $T < 6$  К и плотностях межъямных экситонов  $n = 3 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>. Обсуждаются когерентные свойства коллективной фазы межъямных экситонов, а также экспериментальные проявления такой когерентности.

PACS: 78.47.+p, 78.67.De

1. Двойные квантовые ямы (ДКЯ,  $p-i-n$ ,  $n-i-n$ -гетероструктуры), сверхрешетки и другие туннельно связанные квантовые системы последнее десятилетие являются объектом интенсивного экспериментального и теоретического исследования [1–10]. Один из главных интересов к подобным системам обусловлен возможностью разделения (как в реальном пространстве, так и в импульсном) электронов и дырок в соседних квантовых ямах с последующим образованием пространственно непрямых или межъямных экситонов (МЭ) благодаря кулоновскому взаимодействию. В частности, в недавно опубликованной работе Бермана и Лозовика [11] показано, что несмотря на диполь-дипольное отталкивание МЭ при определенных критических параметрах – величине дипольного момента МЭ, их плотности и температуре – устойчивым состоянием в электрон-дырочной системе может оказаться конденсированная диэлектрическая фаза таких экситонов. При этом, в приложении уже к реальным двумерным системам (см. работу [12]), важно иметь в системе ограничение в плоскос-

ти квантовых ям, чтобы достичь необходимых критических плотностей экситонов. Как уже установлено в ряде экспериментальных работ Бутова [13, 14], одним из проявлений этой диэлектрической экситонной фазы может служить стимулированное экситонное рассеяние, проявляющееся в сильном возрастании темпа экситонного рассеяния в нижайшее энергетическое состояние с ростом экситонной плотности в силу бозевской природы экситонов.

В настоящей работе исследовалась временная эволюция спектров фотолюминесценции (ФЛ) и степени циркулярной поляризации межъямных экситонов при их резонансном возбуждении через внутриямные  $1sHH$ -экситоны. Ранее (см. работы [15, 16]) нами было установлено, что в  $n-i-n$  ДКЯ с узким (четыре монослоя) AlAs барьером, межъямные экситоны при низких температурах (2 К) и высоких плотностях (порядка  $n \sim 3 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>) демонстрируют необычные свойства, которые, на наш взгляд, можно объяснить в рамках коллективного поведения, обусловленного бозевской природой экситонов. Полученные результаты заключаются в следующем: с ростом плотности мощности оптического возбуждения, увеличивающей концентрацию МЭ, интенсивность соот-

<sup>1)</sup> e-mail: laronov@issp.ac.ru

<sup>2)</sup> J. Hvam, K. Soerensen

ветствующей линии ФЛ сверхлинейно вырастает, сама линия сильно сужается и несколько сдвигается в длинноволновую часть спектра, что сопровождается пороговым появлением и сверхлинейным ростом степени циркулярной поляризации. Данное явление оказалось очень чувствительным к температуре, резкой границы по температуре мы не наблюдали, но все события происходили при  $T \leq 6$  К. Целью этой работы было дальнейшее исследование установленного нами события с временным разрешением процессов зарождения и развития коллективной фазы МЭ, а также кинетики ее излучательного распада.

2. Исследовалась  $n-i-n$  GaAs/AlGaAs гетероструктура с двойной квантовой ямой GaAs/AlAs/GaAs (ширина GaAs ям  $\approx 120$  Å и AlAs барьера  $\approx 11$  Å). Структура выращивалась с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии на легированной GaAs подложке  $n$ -типа (концентрация легирующей примеси Si:  $10^{18}$  см $^{-3}$ ) с кристаллографической ориентацией (001). На подложку сначала наращивался буферный слой 0.5 мк GaAs, легированный Si ( $10^{18}$  см $^{-3}$ ). Затем располагался изолирующий слой AlGaAs ( $x = 0.33$ ) толщиной 0.15 мк. Далее наращивались ДКЯ GaAs/AlAs/GaAs. За ДКЯ располагался изолирующий слой AlGaAs толщиной 0.15 мк. Далее шел слой 0.1 мк GaAs, легированный Si ( $10^{18}$  см $^{-3}$ ). Вся структура закрывалась слоем GaAs 100 Å. На структуре литографическим способом изготавливались мезы размером  $1 \times 1$  мм $^2$ . Металлические контакты из сплава Au+Ge+Pt наносились на буферный слой и легированный слой на верхней части мезы.

Время-разрешенные спектры и кривые затухания ФЛ исследовались в условиях импульсного резонансного возбуждения внутриямных (прямых) экситонов на тяжелых дырках с помощью перестраиваемого по частоте фемтосекундного Ti-сапфирового лазера. Для возбуждения необходимого узкого спектрального диапазона (состояние 1sHH-экситона) лазерный пучок предварительно проходил через среду с положительной дисперсией (дифракционная решетка), что приводило к его спектральному сужению и изменению длительности (от 100 фс до 1 пс). С целью оптической ориентации углового момента в экситоне использовалось циркулярно и линейно поляризованное резонансное возбуждение. Регистрация временной эволюции спектров и кинетики интенсивностей велась с помощью высокоскоростного фотоумножителя и системы время-скоррелированного счета фотонов, обеспечивающих временное разрешение 400 пс.

3.1. На рис.1а представлена временная эволюция спектров ФЛ при импульсном возбуждении, из-

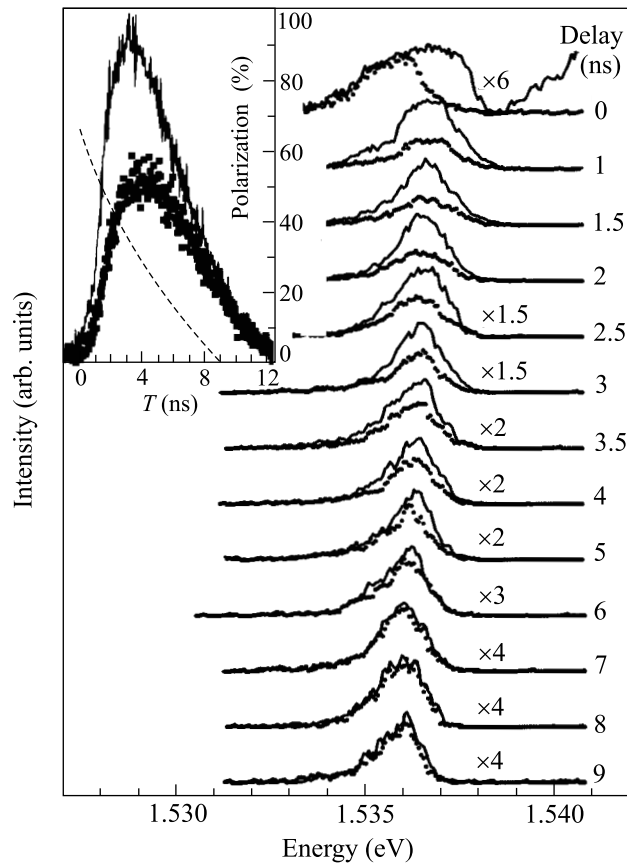


Рис.1. Задержанные во времени спектры ФЛ МЭ (цифры справа от спектров соответствуют временной задержке относительно лазерного импульса в с) при резонансном возбуждении прямого, 1sHH, экситона циркулярно поляризованным светом ( $\sigma^+$ , сплошные кривые), проинтегрированные за 1 нс и записанные при приложенном смещении +0.5 В,  $T = 2$  К и  $P = 30$  кВт/см $^2$ . На вставке представлены кривые затухания ФЛ МЭ ( $\sigma^+$  – сплошные кривые,  $\sigma^-$  – квадратные символы), при детектировании в спектральной позиции 1.5365 эВ. Штриховая кривая (шкала справа) – степень циркулярной поляризации

меренных с различными задержками относительно возбуждающего лазерного импульса при  $T \approx 2$  К и приложенном напряжении  $U = +0.5$  В. Время-разрешенные спектры детектировались при возбуждении циркулярно-поляризованным светом (компонента  $\sigma^+$ , сплошные кривые) резонансно с 1sHH-экситоном и анализировались в  $\sigma^+$ - и  $\sigma^-$ -циркулярных поляризациях. Плотность мощности возбуждения подбиралась такой, чтобы при интегрировании по всем лазерным импульсам ширина линии ФЛ была минимальной при максимально высокой степени циркулярной поляризации. Этому отвечала пи-

ковая плотность мощности  $\sim 30 \text{ кВт/см}^2$ . Оценка концентрации МЭ в этом случае дает величину  $n \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Именно в этих условиях, как показано в работе [15], наиболее ярко проявляются коллективные свойства МЭ.

При нулевых задержках линия ФЛ МЭ сильно поляризована (более 70%) с высокоэнергетической стороны и имеет ширину около 3 мэВ. С увеличением временной задержки ее интенсивность сверхлинейно вырастает, она сужается и несколько сдвигается в длинноволновую часть спектра. При задержках 5–6 нс ее ширина минимальна и составляет около 1.1 мэВ. Максимальную величину интенсивности линия ФЛ МЭ достигает при задержках около 3 нс. Это время необходимо для образования МЭ при резонансном туннелировании электронов и дырок в соседние квантовые ямы, их энергетической релаксации к равновесным значениям плотности и температуры. Данное поведение линии ФЛ МЭ также наглядно демонстрируют кривые затухания люминесценции (см. вставку к рис.1). Из рисунка видно, что после прихода лазерного импульса требуется около 2.5–3 нс для достижения максимальной величины интенсивности линии ФЛ, при этом максимум интенсивности ФЛ в другой ( $\sigma^-$ ) поляризации сдвинут относительно начала действия лазерного импульса дополнительно примерно на 1 нс. В то же время максимум величины степени циркулярной поляризации приходится на начало действия лазерного импульса.

Временная эволюция степени циркулярной поляризации отражает процесс спиновой релаксации МЭ. Из рис.1 видно, что этот процесс неодинаков вдоль контура линии ФЛ. В первую наносекунду после прихода лазерного импульса линия ФЛ МЭ сильно поляризована только с высокоэнергетической стороны спектра, далее примерно 3 нс степень поляризации одинакова вдоль всего контура линии, затем поляризованная остается вновь только высокоэнергетическая часть спектра. Нами были записаны кривые затухания ФЛ в разных спектральных позициях вдоль контура линии. Время изменения степени циркулярной поляризации (время спиновой релаксации) в максимуме линии ФЛ и на ее красном краю отличается в 1.5 раза, то есть 4.3 и 2.9 нс, соответственно.

Важным фактором, влияющим на все кинетические события, происходящие с МЭ, наряду с величиной плотности мощности возбуждения является температура. На рис.2 представлены температурные зависимости ширины линии ФЛ на ее полувысоте и степени циркулярной поляризации. Ярко прослеживается высокая чувствительность ширины линии ФЛ при изменении температуры уже от 2 до 4.5 К. Во вре-

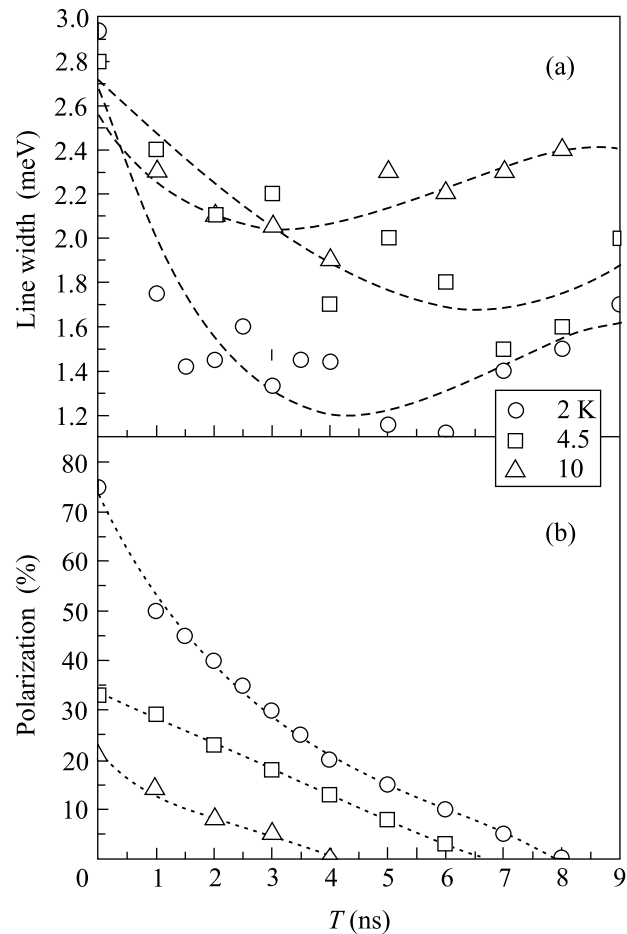


Рис.2. (а) Температурная зависимость ширины линии ФЛ МЭ в зависимости от временной задержки при приложенном смещении  $+0.5 \text{ В}$ ,  $T = 2 \text{ К}$  и  $P = 30 \text{ кВт/см}^2$ . Штриховые кривые приведены для удобства рассмотрения. (б) Температурная зависимость степени циркулярной поляризации линии ФЛ МЭ при возбуждении циркулярно поляризованным светом ( $\sigma^+$ ) в зависимости от временной задержки для спектральной позиции  $1.5365 \text{ эВ}$ . Штриховые кривые приведены для удобства рассмотрения

менной зависимости при  $T = 4.5 \text{ К}$  нет столь сильного сужения линии с ростом задержки и сама зависимость не является немонотонной, как при  $T = 2 \text{ К}$ . При  $T = 10 \text{ К}$  эффект сужения линии практически отсутствует. Одновременно с этим существенно меняется также и поведение степени циркулярной поляризации. Начальная величина степени циркулярной поляризации при  $T = 4.5 \text{ К}$  составляет только около 30% (более 70% при  $T = 2 \text{ К}$ ), она монотонно падает и на задержках более 5 нс становится равной нулю. При  $T = 10 \text{ К}$  максимальное значение степе-

ни циркулярной поляризации менее 20% и после 3 нс поляризация линии исчезает.

2. Нами также были выполнены измерения временной эволюции спектров ФЛ МЭ при резонансном возбуждении линейно поляризованным светом и последующим время-разрешенным анализом степени циркулярной поляризации. Плоскость поляризации лазера совпадала с кристаллографическим направлением  $\langle 110 \rangle$  (см. работу [16]).

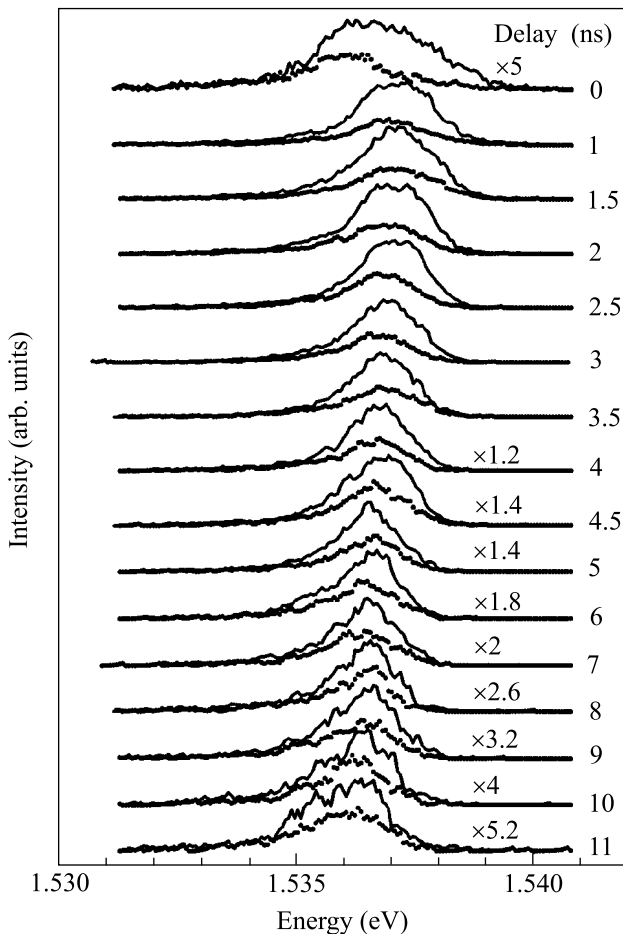


Рис.3. Задержанные во времени спектры ФЛ МЭ (цифры справа от спектров соответствуют временной задержке относительно лазерного импульса в наносекундах) при резонансном возбуждении прямого,  $1s_{HH}$ , экситона линейно поляризованным светом, проинтегрированные за 1 нс и записанные при приложенном смещении  $+0.5$  В,  $T = 2$  К и  $P = 30$  кВт/см<sup>2</sup>. Сплошные кривые соответствуют  $\sigma^+$ -циркулярной поляризации, точечные кривые –  $\sigma^-$ .

Рис.3 иллюстрирует время-задержанные спектры ФЛ МЭ при  $T \simeq 2$  К и приложенном напряжении  $U = +0.5$  В. Как и при возбуждении циркулярно-поляризованным светом при нулевых задержках ли-

ния ФЛ МЭ имеет ширину на полувысоте  $\sim 3$  мэВ, но сильно поляризована (60%) практически по всему контуру линии. С ростом задержки она также сверхлинейно вырастает и сдвигается в сторону меньших энергий (около 1 мэВ). После 4 нс при достижении равновесных значений плотности и температуры МЭ линия ФЛ становится максимально узкой (1.2 мэВ), а степень циркулярной поляризации выходит на насыщение при значении примерно 25%. При возбуждении линейно поляризованным светом временная эволюция степени циркулярной поляризации также очень чувствительна к температуре (см. рис.4). Уже при  $T = 4.5$  К степень циркулярной поляризации не превышает 30%, она монотонно падает, становясь пренебрежимо малой после 7 нс, а сама линия ФЛ поляризована преимущественно с фиолетовой стороны. При  $T = 6$  К события развиваются еще быстрее: максимальное значение степени циркулярной поляризации около 15%, на задержках более 4 нс она стремится к нулю. Одновременно с этим линия ФЛ, изначально имеющая ширину около 3 мэВ, при изменении временной задержки сужается при  $T = 4.5$  К на 75% (почти в 2.5 раза при  $T = 2$  К) и менее 40% при  $T = 6$  К. Сдвиг в длинноволновую часть спектра при  $T = 4.5$  К составляет менее 0.5 мэВ и отсутствует при  $T = 6$  К.

Таким образом, с увеличением времени задержки линия ФЛ МЭ сдвигается в длинноволновую часть спектра, максимально сужаясь через 3–4 нс после действия лазерного импульса. Степень ее циркулярной поляризации (60–70%) плавно уменьшается до нуля немонотонным образом при возбуждении циркулярно-поляризованным светом и выходит на насыщение (25%) при возбуждении линейно-поляризованным светом. Наблюдаемая в эксперименте временная эволюция сдвига линии, ее ширины и степени циркулярной поляризации критична по отношению к температуре. С ростом температуры сдвиг сильно уменьшается, не происходит драматического изменения ширины линии, заметно уменьшается начальное значение степени циркулярной поляризации и существенно укорачивается время спиновой релаксации. Все указанные события происходят в интервале температур до  $T_c \leq 6$  К.

4. Все изложенные выше экспериментальные результаты подтверждают сделанное нами ранее (см. работу [15]) предположение о коллективной природе события, происходящего с межъямными экситонами при низких температурах. Качественно картина возникновения коллективной фазы экситонов выглядит следующим образом. При низких температурах ( $T \leq 2$  К) с ростом плотности мощности оптического

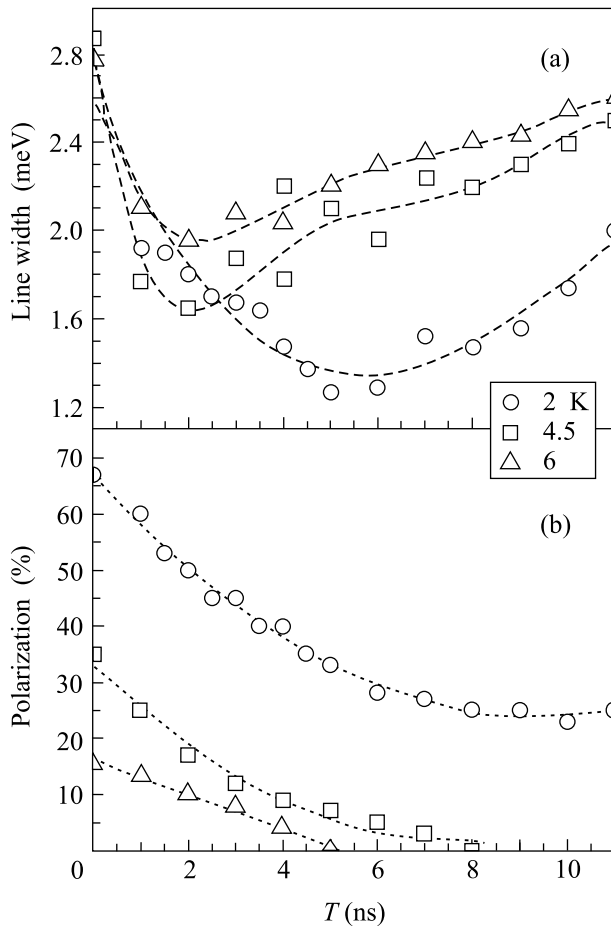


Рис. 4. (а) Температурная зависимость ширины линии ФЛ МЭ при возбуждении линейно поляризованным светом в зависимости от временной задержки при приложенном смещении  $+0.5$  В,  $T = 2$  К и  $P = 30$  кВт/см<sup>2</sup>. Штриховые кривые приведены для удобства рассмотрения. (б) Температурная зависимость степени циркулярной поляризации линии ФЛ МЭ при возбуждении линейно поляризованным светом в зависимости от временной задержки для спектральной позиции  $1.5365$  эВ

возбуждения происходит заполнение МЭ потенциального рельефа в плоскости квантовых ям, возникающего вследствие остаточных примесей, дефектов и других структурных несовершенств. Это проявляется в сужении линии ФЛ с ростом накачки, которая при достижении порога подвижности МЭ перестает отражать статистическое распределение амплитуд флуктуаций случайного потенциала. Резкое сужение линии ФЛ и сверхлинейный рост ее интенсивности, на наш взгляд, невозможно связать только с достижением МЭ порога протекания, так, это событие очень чувствительно к температуре, хотя и не имеет резкой температурной границы. В работе Берма-

на и Лозовика [11] показано, что достаточно плотная система МЭ при определенных величинах дипольного момента межъямного экситона может конденсироваться в диэлектрическую фазу, несмотря на диполь-дипольное отталкивание между такими экситонами. Существенным дополнением к этому является работа [12], где авторами указывается, что в реальных системах такая конденсация скорее всего может происходить в областях с ограничением в плоскости квантовых ям. В исследованных структурах, благодаря использованию техники прерывания эпитаксиального роста на гетерограницах (в нашем случае время прерывания роста достигало 2 мин), в плоскостях гетерограниц возникают крупномасштабные флуктуации ширин квантовых ям и барьеров (геометрический размер флуктуаций в направлении эпитаксиального роста порядка одного монослоя). Характерные линейные масштабы таких флуктуаций в плоскости квантовых ям достигают одного микрометра (см., например, [17]). Из-за таких флуктуаций в самих квантовых ямах появляются латеральные ямки или домены. Глубина таких доменов, судя по измеренной в наших образцах характерной дублетной структуре в спектрах возбуждения фотолюминесценции внутренних экситонов, достигает  $1.5$ – $2$  мэВ. В таких доменах МЭ могут накапливаться, поскольку границы латеральных доменов препятствуют произвольному “растеканию” экситонов в плоскости квантовых ям. Мы полагаем, что МЭ демонстрируют коллективное поведение именно в таких доменах, когда плотность экситонов и их температура достигают критических значений. Таким образом, с ростом экситонной плотности происходит некоторое экранирование флуктуаций случайного потенциала. При дальнейшем увеличении плотности, превышающей порог протекания, МЭ оказываются делокализованными в пределах макроскопически больших доменов (около и более микрометра), однако их движение пространственно ограничено размерами домена, где экситоны накапливаются. МЭ являются композитными бозонами, поэтому при достижении критических значений концентрации и температуры экситоны должны конденсироваться (аналог бозе-эйнштейновской конденсации). В условиях ограничения в плоскости квантовых ям критическую температуру, при которой такая конденсация происходит, можно определить с помощью выражения  $T_c = \pi \hbar^2 N_{ex} / k m_{ex} \ln(N_x S)$ , где  $N_x$  – экситонная концентрация,  $m_{ex}$  – экситонная масса, а  $S$  – площадь домена. Если принять массу экситона  $m_{ex} = 0.25 m_0$ , размер домена  $0.5$  мкм<sup>2</sup>, то при реализуемых в нашем эксперименте плотностях  $N_{ex} = 5 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup> для критической температуры по-

лучаем  $T_c = 3$  К, что очень близко подходит к наблюдаемым на опыте значениям. Следует также иметь в виду, что в условиях нашего эксперимента измерения ведутся одновременно с несколькими десятками доменов, принимая во внимание, что минимальный геометрический размер пятна возбуждения на образце, из которого детектируются спектры люминесценции, около 30 мкм. Учитывая дисперсию латеральных размеров доменов и интегрирование спектров от доменов разного латерального размера, не удивляемся, что в описанных экспериментах мы не наблюдаем резкого порога критического поведения по температуре. Наблюдаемая минимальная ширина линии люминесценции (около 1 мэВ) по тем же причинам является неоднородной, поскольку в ее ширину дают вклады домены разного размера. Вместе с тем, наблюдаемое экспериментально резкое сужение линии люминесценции межъямных экситонов при  $T < T_c$  ( $T_c \sim 6$  К) и длинноволновый сдвиг этой линии (около 1.5 мэВ) в соответствие с заполнением нижайшего энергетического состояния в домене является явным проявлением бозевских свойств экситонов.

Конденсированная фаза МЭ должна демонстрировать когерентные свойства. Это означает, что на масштабах де-Бройлевской длины волны, которая близко подходит к линейным размерам доменов, МЭ должны обладать одинаковой фазой. Такая сфазированность экситонов должна, по нашему мнению, в свою очередь повлиять на скорость излучательной аннигиляции, и эта скорость должна увеличиться. По кинетике спектров люминесценции отчетливо видно, что время жизни коллективного экситонного состояния более чем на порядок короче времени затухания люминесценции локализованных МЭ. Таким образом, увеличение скорости излучательного распада МЭ и связанное с этим возрастание степени циркулярной поляризации люминесценции являются одним из проявлений когерентности коллективного экситонного состояния.

В заключение отметим, что в связи с изложенным особую актуальность должны приобрести эксперименты по наблюдению спектров люминесценции из одиночных доменов с использованием для этих целей оптики ближнего поля или сканирующей туннельной оптической микроскопии. Мы ожидаем, что в этом случае должны наблюдаться более резкие спектральные изменения вблизи критической температуры, а

однородная ширина линии люминесценции в конденсированной фазе должна составлять всего несколько десятков микроэлектронвольт. При слабой туннельной связи двух доменов, содержащих когерентные экситонные фазы, должны наблюдаться явления, аналогичные эффекту Джозефсона: биения интенсивности люминесценции и вращение плоскости поляризации.

В заключение авторы благодарят Российский фонд фундаментальных исследований (# 01-02-16471) и межведомственную программу по "Наноструктурам" за частичную финансовую поддержку.

1. E. Yu. Lozovik and V. I. Yudson, *Sov. Phys. JETP* **44**, 389 (1976).
2. T. Fukuzawa, E. E. Mendez, and J. M. Hong, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 3066 (1990).
3. J. E. Golub, E. E. Mendez, J. P. Harbison, and L. T. Flores, *Phys. Rev.* **B41**, 8564 (1990).
4. J. A. Kash, M. Zachau, E. E. Mendez et al., *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2247 (1991).
5. L. V. Butov, A. Zrenner, G. A. Abstreiter et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 304 (1994). L. V. Butov, *Proc. of the 23 Intern. Conf. Phys. Semiconductors*, Berlin, 1996.
6. V. B. Timofeev, A. I. Filin, A. V. Larionov et al., *Europhys. Lett.* **41**, 435 (1998).
7. V. B. Timofeev, A. V. Larionov, A. S. Ioselevich et al., *JETP Lett.* **67**, 630 (1998).
8. V. V. Krivolapchuk, E. S. Moskalenko, A. L. Zhmodikov et al., *Solid State Commun.* **111**, 49 (1999).
9. D. Yoshioka and A. H. MacDonald, *J. Phys. Soc. Japan* **59**, 4211 (1990).
10. X. M. Chen and J. J. Quinn, *Phys. Rev.* **B67**, 895 (1991).
11. Ю. Е. Лозовик, О. Л. Берман, *ЖЭТФ* **111**, 1879 (1997).
12. Xuejun Zhu, P. B. Littlewood, M. S. Hybersen, and T. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1633 (1995).
13. L. V. Butov, A. Imamoglu, A. V. Mintsev et al., *Phys. Rev.* **B59**, 1625 (1999).
14. L. V. Butov, A. L. Ivanov, A. Imamoglu et al., *Phys. Rev. Lett.* **67**, 5608 (2001).
15. A. V. Larionov, V. B. Timofeev, J. M. Hvam, and C. Soerensen, *JETP Lett.* **71**, 117 (2000).
16. A. V. Larionov, V. B. Timofeev, J. M. Hvam, and C. Soerensen, *JETP* **90**, 1093 (2000).
17. S. W. Brown, T. A. Kennedy, D. Gammon, and E. S. Snow, *Phys. Rev.* **B54**, R17339 (1996).