

# Кинетика люминесценции диполярных экситонов в кольцевых ловушках

А. В. Горбунов<sup>1)</sup>, А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев

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

Поступила в редакцию 28 мая 2007 г.

Изучена кинетика спектров люминесценции диполярных экситонов, накапливаемых в кольцевых ловушках, при импульсном нерезонансном лазерном фотовозбуждении. Определена температура экситонного газа.

PACS: 73.21.Fg, 78.67.De

В опубликованных ранее работах [1–3] мы сообщали о коллективном поведении диполярных экситонов, которые накапливались в кольцевых ловушках в условиях стационарного фотовозбуждения. Исследовались GaAs/AlGaAs гетероструктуры с двойными [1] и одиночными [2] квантовыми ямами при приложенном перпендикулярно гетерослоям электрическом смещении, сдвигающем уровни размерного квантования. Структуры представляли собой фотодиоды Шоттки, у которых в верхнем металлическом электроде средствами “взрывной” (lift-off) электронной литографии протравливались окна размером 5–10 мкм, через которые велось фотовозбуждение и наблюдение люминесценции. Благодаря приложенному между электродами электрическому смещению, фотовозбужденные электрон и дырка в экситоне оказываются пространственно разделенными, а сами экситоны в этих условиях имеют статический дипольный момент в основном состоянии. Такие экситоны называют диполярными (в случае двойных квантовых ям их еще называют межъямными или пространственно-непрямыми экситонами). Кольцевая ловушка, в которой накапливались фотовозбужденные диполярные экситоны, возникала вдоль периметра окон в металлическом электроде (затворе Шоттки) из-за сильно неоднородного в радиальном направлении электрического поля, которое возрастает от центра окна к периметру [1, 2]. При исследовании коллективных явлений, связанных с экситонной конденсацией, чрезвычайно актуальны вопросы о тепловом равновесии (в случае экситонов речь идет о квазиравновесии), а также о том, насколько температура в экситонной системе близка к температуре кристаллической решетки, в которую “погружены” экситоны. Для это-

го существенно знать времена жизни диполярных экситонов в экспериментальных условиях, при которых изучалась их конденсация, и как эти времена соотносятся со временами термализации, которые рассчитывались в работах [4, 5] для систем, соответствующих по структуре изученным в [1–3]. С этой целью в данной работе нами исследовалась временная эволюция спектров люминесценции диполярных экситонов и их кинетика в условиях импульсного фотовозбуждения и при электрических смещениях, близких к использованным в работах [1, 2].

Эксперименты выполнялись на GaAs/AlGaAs гетероструктурах с двойной и с одиночной квантовыми ямами. Структура с двойной квантовой ямой имела следующую архитектуру: между двумя одинаковыми GaAs-квантовыми ямами шириной 12 нм располагался четырехслойный AlAs-барьер. Такой же толщины AlAs-барьеры наращивались на гетерограницах между каждой квантовой ямой и изолирующими AlGaAs-слоями толщиной 150 нм, которые отделяли двойную квантовую яму от электродов [1]. В гетероструктуре с одиночной GaAs квантовой ямой ширина этой ямы была равна сумме ширин двух квантовых ям с барьером между ними в структуре с двойными квантовыми ямами, то есть 25 нм [2]. Обе структуры представляли собой шоттки-фотодиоды, в которых роль внутреннего электрода выполняла легированная кремнием GaAs квантовая яма шириной 30 нм, а внешним шоттки-затвором служила напыленная на поверхность гетероструктуры Au+Cr-металлическая пленка, непрозрачная или полупрозрачная. Электрическое смещение прикладывалось между внутренним электродом и внешним шоттки-затвором. В обеих гетероструктурах в металлическом затворе с помощью электронно-лучевой литографии протравливались

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

круговые окна размером 5 и 10 мкм для возбуждения и наблюдения люминесценции.

Фотовозбуждение осуществлялось импульсным полупроводниковым лазером Hamamatsu PLP-01 с длительностью импульса около 200 пс, частотой повторения 10 МГц и длиной волны излучения 659 нм. Люминесценция детектировалась с помощью скоростной стрик-камеры Hamamatsu 5680, которая размещалась на выходе спектрального прибора Acton SP-2500i. Используемая система регистрации обеспечивала достаточно высокое спектральное (около 1 мэВ) и временное (0.2 нс) разрешение.

Сначала остановимся на кинетике спектров излучения в структуре с двойной квантовой ямой. На рис.1 представлена временная эволюция спек-

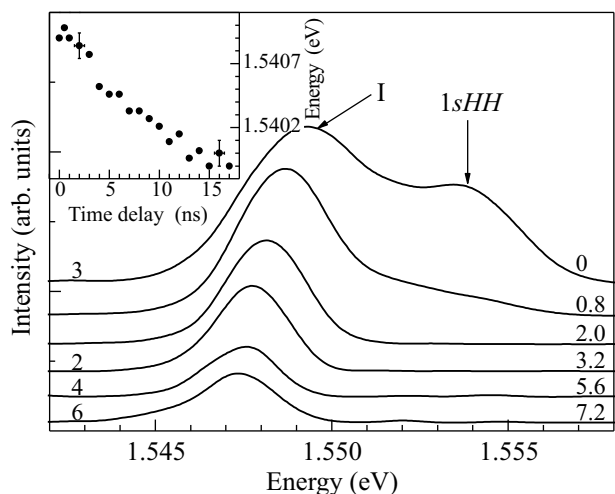


Рис.1. Эволюция во времени спектров люминесценции дипольных (линия I) и внутриямных (линия  $1sHH$ ) экситонов в двойной квантовой яме GaAs/AlGaAs при импульсном фотовозбуждении пикосекундным лазером. Справа приведены величины задержек в нс. На вставке показано спектральное положение максимума линии дипольных экситонов как функция временной задержки. Напряжения на образце  $U = +0.62$  В, средняя мощность лазера  $P = 16$  мкВт, температура  $T = 2$  К

ров люминесценции межъямных (пространственно-непрямых или дипольных), линия I, и внутриямных (пространственно-прямых), линия  $1sHH$ , экситонов на тяжелых дырках. Спектры измерены с различными временными задержками (цифры справа у каждого спектра соответствуют задержке в нс). Видно, что прямые экситоны – короткоживущие. Непосредственные измерения кинетики дают для времени жизни таких экситонов  $\tau_r \leq 300$  пс. Люминесценция дипольных экситонов (I-линия в спектрах рис.1) формируется в спектрах с задержкой около 1 нс относи-

тельно линии прямых  $1sHH$ -экситонов, что связано с процессами туннелирования носителей через барьер и процессами релаксации по энергии. Из приведенного рис.1 отчетливо следует, что люминесценция дипольных экситонов по сравнению с прямыми экситонами более долгоживущая, что обусловлено пространственным разделением волновых функций электрона и дырки в дипольном экситоне. Известно, что излучательная вероятность рекомбинации в дипольном экситоне  $\gamma_R = \tau_R^{-1}$  (где  $\tau_R$  – излучательное время жизни) пропорциональна перекрытию волновых функций электрона и дырки в направлении  $z$ , параллельном приложенному электрическому полю:  $\gamma_R \propto |\int \Psi_e(z)\Psi_h(z)dz|^2$ . Поэтому при увеличении приложенного электрического смещения, которое приводит к уменьшению перекрытия волновых функций электрона и дырки в направлении поля, вероятность излучательной рекомбинации падает, а соответствующее время жизни дипольных экситонов возрастает. Это явление иллюстрирует рис.2, где представлены

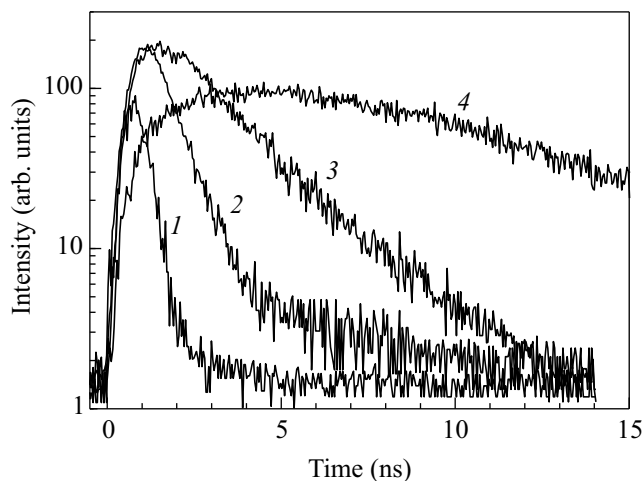


Рис.2. Кинетика люминесценции внутриямных и дипольных экситонов в двойной квантовой яме GaAs/AlGaAs при различном электрическом смещении. Измеренное время жизни для прямого экситона (кривая 1)  $\tau_r \leq 0.3$  нс (напряжение на образце  $U = +0.6$  В), для непрямого экситона:  $\tau_r = 0.8$  нс при напряжении  $U = +0.7$  В (кривая 2),  $\tau_r = 2$  нс при  $U = +0.6$  В (кривая 3) и  $\tau_r = 6$  нс при  $U = +0.4$  В (кривая 4)

кинетики затухания интенсивности люминесценции дипольных экситонов, измеренные при различных приложенных электрических смещениях в условиях импульсного фотовозбуждения. Видно, что при увеличении электрического поля излучательное время дипольных экситонов монотонно возрастает, и при величине поля  $\approx 1 \cdot 10^4$  В/см (приложенное напряже-

ние  $+0.4$  В) это время составляет  $\tau_R = 6$  нс. Именно такая величина электрического смещения использовалась нами в работе [1].

Из рис.1 также следует, что максимум линии дипольных экситонов при увеличении задержки монотонно сдвигается в сторону меньших энергий (см. вставку к рис.1), а ширина линии уменьшается. Монотонный сдвиг линии в сторону меньших энергий обусловлен снижением вклада диполь-дипольного отталкивания между экситонами с уменьшением их плотности. Отсюда по величине спектрального сдвига линии  $\delta E_S$ , измеренного при нулевой и максимальной задержках, возникает возможность оценить саму величину экситонной плотности по формуле  $\delta E_S \approx WN$ , где  $W$  – энергия диполь-дипольного отталкивания для дипольных экситонов, а  $N$  – полное число экситонов в системе [6]. Оценить величину  $W$  можно по формуле  $W \approx 3E_{ex}a_{ex}^2/S$  (где  $E_{ex} = 4.5$  мэВ – энергия связи экситона,  $a_{ex} = 18$  нм – борковский экситонный радиус, а  $S$  – площадь, занимаемая экситонным газом). Пользуясь приведенными формулами, а также используя  $S = 10^{-6}$  см $^{-2}$  и величину спектрального сдвига экситонной линии  $\delta E_S \approx 1$  мэВ (вставка к рис.1), получаем для величины экситонной плотности при нулевых задержках оценку  $N/S \approx 10^{11}$  см $^{-2}$  (средняя мощность импульсной накачки 16 мкВт при частоте повторения 10 МГц). При задержке 7.2 нс экситонная плотность вследствие излучательной рекомбинации уменьшается почти на порядок.

Можно также попытаться оценить, как со временем релаксирует экситонная температура в условиях импульсного фотовозбуждения (рис.3). Оценки основаны на аппроксимации формы коротковолновых “хвостов” линии дипольных экситонов. В условиях квазиравновесия, при энергиях трансляционного движения  $E > k_B T$  ( $k_B$  – константа Больцмана), экситоны распределены экспоненциально. Если принять, что излучательная вероятность в этой области не зависит от энергии, а закон сохранения по импульсу выполняется благодаря соударениям и процессам отдачи, то зависимость логарифма интенсивности люминесценции в условиях квазиравновесного распределения экситонов должна быть линейной функцией энергии, и поэтому наклон прямой в координатах  $\ln I - E$  должен определяться только температурой экситонной системы. В качестве иллюстрации на вставке к рис.3 показаны примеры линейной аппроксимации коротковолновых “хвостов” линии люминесценции дипольных экситонов для двух задержек – 0.5 нс и 8 нс. Видно, что при увеличении задержки линия сужается, а наклон коротковолнового

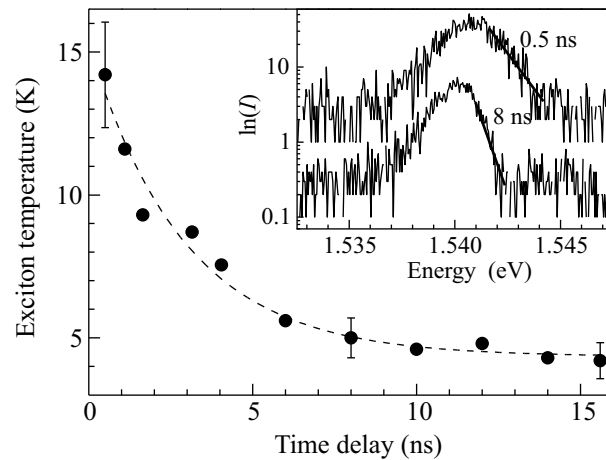


Рис.3. Экситонная температура как функция временной задержки при импульсном фотовозбуждении. Точки – эксперимент, штриховая линия – результат подгонки по формуле  $T = T_0 \cdot \exp(-t/\tau) + T_f$  (здесь  $T_0 = 10.9 \pm 0.7$  К,  $\tau = 2.9 \pm 0.45$  нс,  $T_f = 4.3 \pm 0.3$  К). На вставке показаны примеры аппроксимации “хвоста” экситонной линии для определения температуры экситонного газа при задержках 0.5 и 8 нс

“хвоста” экситонной линии возрастает, что уже качественно свидетельствует об охлаждении экситонной системы с ростом задержки. С помощью описанной процедуры было определено, каким образом ведет себя экситонная температура при вариации задержки в интервале от 0.5 до 16 нс и средней импульсной накачке 16 мкВт. Заметим, что в рамках такой процедуры экситонная температура определяется без каких-либо подгоночных параметров. Видно, что с ростом задержки экситонный газ “остывает” и его температура падает. Однако вплоть до задержки в 16 нс экситонная температура остается еще заметно выше температуры кристаллической решетки (в условиях эксперимента решеточная температура составляет 2 К). При больших задержках сигнал люминесценции сильно падает и практически теряется в шумах. Выполненные аппроксимации показывают, что экситонная температура релаксирует к решеточной на очень больших задержках, по-видимому, в микросекундном диапазоне.

Теперь рассмотрим кинетику люминесценции экситонов в случае одиночной квантовой ямы (рис.4). Измерения проводились при детектировании люминесценции непосредственно из окна размером 5 мкм. В этих условиях, при приложенном электрическом смещении, вдоль периметра окна возникает кольцевая ловушка, в которой накапливаются дипольные экситоны. Из рис.4 следует, что при нулевых задержках наблюдается люминесценция

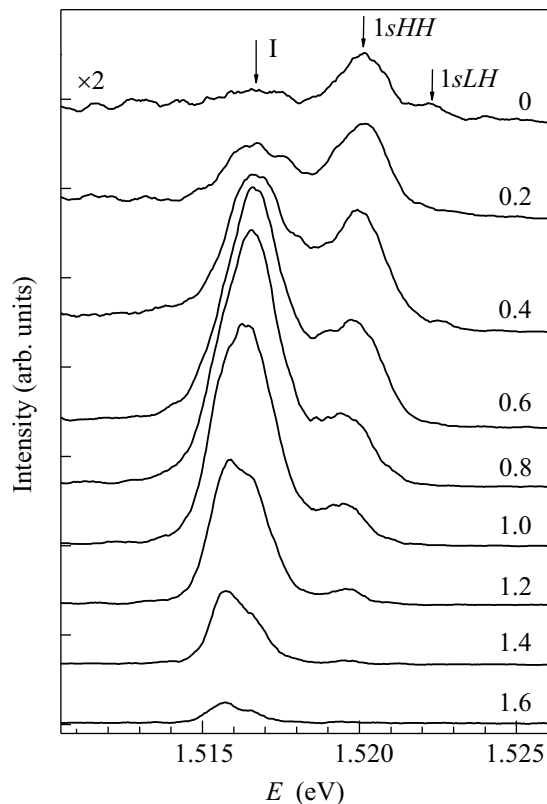


Рис.4. Эволюция во времени спектров люминесценции дипольных (линия I) и прямых ( $1sHH$ ,  $1sLH$ ) экситонов в одиночной квантовой яме GaAs/AlGaAs при импульсном фотовозбуждении. Справа приведены величины задержек в нс. Люминесценция измерялась из окна 5 мкм в металлической маске. Средняя мощность лазера  $P = 1$  мкВт, частота 10 МГц, напряжение на образце  $U = +1.46$  В, температура  $T = 2$  К

только прямого экситона на тяжелой дырке ( $1sLH$ ) и слабый сигнал “горячей” люминесценции прямого экситона на легкой дырке ( $1sLH$ ). Эта люминесценция наблюдается из центральной части окна, где электрическое поле практически отсутствует. Люминесценция дипольных экситонов (линия I) появляется в спектре и формируется с максимальной интенсивностью при задержке около 0.5 нс, что связано с процессами диффузии таких экситонов в кольцевую ловушку и их релаксацией по энергии. Согласно прямым измерениям кинетики, в условиях использованных электрических смещений, соответствующих работе [2], время жизни дипольных экситонов в одиночной квантовой яме составляет около 1 нс, что в несколько раз короче времени жизни таких экситонов в случае двойных квантовых ям при эквивалентных приложенных напряжениях. Это связано с отсутствием туннельного барьера, разделяющего электрон и дырку в дипольном экситоне

в широкой квантовой яме, а, следовательно, большему электрон-дырочному перекрытию волновых функций по сравнению с дипольными экситонами в двойной квантовой яме с туннельным барьером.

В связи с выполненными измерениями кинетики люминесценции интересно знать температуру дипольных экситонов, накапливаемых в кольцевых ловушках, при стационарном фотовозбуждении в условиях, когда наблюдается их конденсация [2–3]. Поэтому остановимся на экспериментах, связанных с измерениями экситонной температуры в рамках описанной выше процедуры, для дипольных экситонов в кольцевых ловушках в условиях стационарного фотовозбуждения (спектральное разрешение в этих измерениях составляло 0.1 мэВ). При достижении критических условий конденсации по накачке в спектре спонтанной люминесценции пороговым образом вырастает узкая линия дипольных экситонов [2, 3], соответствующая экситонному конденсату (рис.5а). В области порога конденсации спектр спонтанной люминесценции ведет себя сильно нелинейно: ширина линии сужается почти вдвое, а ее интенсивность возрастает сверхлинейно, в соответствии с макроскопическим заполнением нижайшего состояния в ловушке. Вблизи порога максимум линии сначала сдвигается в сторону меньших энергий на величину около  $k_B T$ , также в согласии с макроскопическим заполнением нижайшего состояния в ловушке. На рис.5b эти же спектры представлены в полулогарифмическом масштабе. В таком представлении отчетливо видны экспоненциальные “хвосты” интенсивности люминесценции, отражающие квазиравновесные распределения чисел заполнения надконденсатной части экситонов (распределения экситонных возбуждений). По наклону “хвостов” в шкале  $\ln I - E$  находилась температура экситонного газа. Определенные таким способом температуры при различных накачках приведены справа у кривых. Штриховые линии – линейные аппроксимации логарифмических “хвостов”. Стрелка указывает позицию дипольного экситона. Видно, что даже при минимальных реализованных накачках, близких к порогу экситонной конденсации, температура экситонного газа примерно втрое выше температуры кристаллической решетки ( $T = 2$  К). С ростом накачки экситонная температура монотонно растет и при 100 мкВт достигает 10 К.

Таким образом, проведенные исследования кинетики и температуры дипольных экситонов в условиях фотовозбуждения в кольцевых ловушках продемонстрировали, что при относительно небольших электрических смещениях, когда излучательные вре-

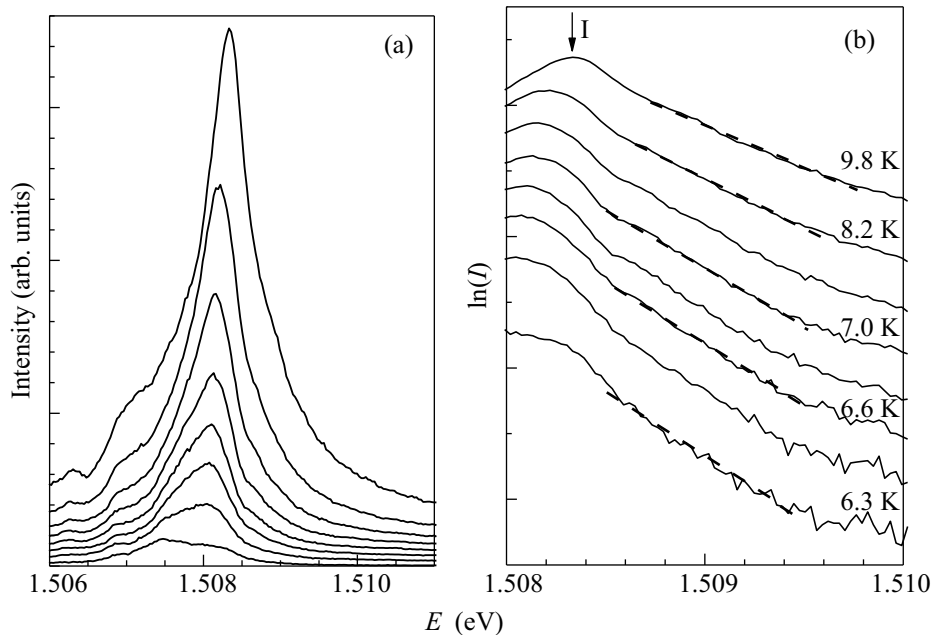


Рис. 5. Спектры люминесценции от одиночной квантовой ямы GaAs/AlGaAs при стационарном фотовозбуждении (He-Ne-лазер). Люминесценция измерялась из окна 5 мкм в металлической маске. (а) Мощность накачки  $P_{\text{He-Ne}} = 5, 10, 15, 20, 30, 40, 60$  и  $100$  мкВт (снизу вверх),  $U = +1.46$  В,  $T = 1.7$  К. (б) Те же спектры в полулогарифмическом масштабе. Прямые пунктирные линии – линейные аппроксимации коротковолновых “хвостов” линии дипольных экситонов для определения температур экситонного газа при различных накачках (приведены справа)

мена экситонов составляют несколько нс, в экситонной системе при плотностях  $\geq 10^{10} \text{ см}^{-2}$  успевает сложиться квазиравновесие, однако экситонная температура оказывается несколько выше решеточной. Это заключение удовлетворительно согласуется с расчетами времен релаксации пространственно-непрямых экситонов, выполненными в [4]. Очевидно, что для экспериментальной реализации “холодного” газа дипольных экситонов с температурами ниже 1 К необходимо, чтобы излучательные времена были существенно большими, масштаба 1 мкс и более. Столь большие времена могут возникать только при значительных электрических смещениях, когда перекрытие волновых функций электрона и дырки в дипольном экситоне существенно уменьшено (то есть при значительном увеличении статического дипольного момента в экситоне) [7]. Однако в этом случае возникает другая принципиальная проблема, связанная с накоплением в квантовых ямах пространственного заряда большой плотности. Большие плотности нескомпенсированного заряда сильно возмущают экситонные эффекты из-за процессов рассеяния и экранирования кулоновского взаимодействия. Появление пространственного заряда при больших электрических смещениях происходит главным образом от остаточных электрически активных примесей, всегда присутствующих в барьерных слоях.

Большую плотность заряда не удастся компенсировать с помощью комбинированных подсветок [8, 2]. Поэтому принципиальный способ решения этой проблемы состоит в уменьшении концентрации электрически активных примесей в используемых гетероструктурах.

Выполненные исследования кинетики люминесценции дипольных экситонов интересны также для выяснения происхождения пространственно-периодических структур, которые возникают в кольцевых ловушках в условиях экситонной конденсации [1, 2]. В настоящее время существуют различные подходы для объяснения этого явления. Один из них основывается на вихревом характере структуры люминесценции при бозе-конденсации дипольных экситонов [9]. Вихревой характер конденсата должен проявляться в особенностях углового распределения интенсивности люминесценции, благодаря интерференции пространственно-когерентного экситонного бозе-состояния. В специально поставленных экспериментах [2, 3] крупномасштабная когерентность экситонного конденсата в кольцевых ловушках установлена прямым образом. В работе [10] проанализирован механизм зарождения бозе-конденсированной фазы посредством термических флуктуаций и продемонстрировано, что в процессе охлаждения определяющую роль приоб-

ретают критические флуктуации (инстантоны), появляющиеся выше критической температуры. Авторы [10] показали, что эволюция отдельного инстантона невозможна без образования вихрей в сверхпроводящей области. Такой механизм зарождения бозе-конденсированной фазы может иметь прямое отношение к бозе-конденсации дипольных экситонов.

Вместе с тем имеется и другой подход в объяснении происхождения пространственно-периодических структур люминесценции дипольных экситонов в кольцевых ловушках. В рамках этого феноменологического подхода экситонная конденсация рассматривается как фазовый переход вследствие притяжения между экситонами [11]. На возможность слабого притяжения между межъямными экситонами и, как следствие, на возможность существования метастабильной конденсированной экситонной фазы при определенных параметрах системы указывалось в работе [12]. Согласно работам [11], пространственно-периодические структуры дипольных экситонов в кольцевых ловушках могут возникать в условиях зарождения конденсированной экситонной фазы в неравновесной электрон-дырочной системе в неоднородном электрическом поле. Размеры таких зародышей экситонной фазы определяются главным образом двумя параметрами: коэффициентом диффузии и временем жизни экситонов. Если воспользоваться известными коэффициентом диффузии и временами жизни дипольных экситонов, определенными в настоящей работе, то для размеров пятен люминесценции в экспериментально наблюдаемых пространственно-периодических структурах получаем величины от одного до нескольких микрон в хорошем согласии с расчетами размеров зародышей конденсированной экситонной фазы, выполненными в работах [11]. Однако в рамках феноменологического подхода [11] не объясняется пространственная когерентность конденсированной экситонной фазы, обнаруженная экспериментально [2], а также не ясно происхождение притяжения между дипольными экситонами.

В отмеченных выше теоретических подходах не учитывается роль случайного потенциала, всегда присутствующего в реальных гетероструктурах.

Роль хаотического потенциала, несомненно, существенна, поскольку экспериментально наблюдаемые пространственно-периодические структуры люминесценции в условиях экситонной конденсации всегда оказываются “привязанными” к кристаллографическим направлениям в образце (явление “пиннингга”) [1–3]. Найти исчерпывающее объяснение происхождения пространственно-периодических структур в условиях экситонной конденсации, на наш взгляд, помогут эксперименты по исследованию кинетики образования таких структур в условиях импульсного фотовозбуждения.

Авторы благодарны С.В. Иорданскому за обсуждение вопросов кинетики конденсации экситонов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Программы Президиума РАН по физике и технологии наноструктур, Программ ОФН РАН по электронным коррелированным системам и по спинтронике.

- 
1. A. V. Gorbunov and V. B. Timofeev, JETP Lett. **83**, 146 (2006).
  2. A. V. Gorbunov and V. B. Timofeev, JETP Lett. **84**, 329 (2006).
  3. V. B. Timofeev and A. V. Gorbunov, J. Appl. Phys. **101**, 081708 (2007).
  4. A. L. Ivanov, P. B. Littlewood, and H. Haug, Phys. Rev. B **59**, 5032 (1999).
  5. A. L. Ivanov, Europhys. Lett. **59**, 586 (2002).
  6. S. Ben-Tabou de-Leon and B. Laikhtman, Phys. Rev. B **63**, 125306 (2001).
  7. V. V. Solov'ev, I. V. Kukushkin, J. Smet et al., JETP Lett. **84**, 222 (2006).
  8. V. V. Solov'ev, I. V. Kukushkin, J. Smet et al., JETP Lett. **83**, 553 (2006).
  9. J. Keeling, L. S. Levitov, and P. B. Littlewood, Phys. Rev. Lett. **92**, 176402 (2004).
  10. E. A. Brener, S. V. Iordansky, and R. B. Saptsov, Phys. Rev. E **73**, 016127 (2006).
  11. V. I. Sugakov, Solid State Commun. **134**, 63 (2005); A. A. Chernyuk and V. I. Sugakov, Phys. Rev. B **74**, 085303 (2006); В. И. Сугаков, А. А. Чернюк, Письма в ЖЭТФ **85**, 699 (2007).
  12. Yu. E. Lozovik and O. L. Berman, JETP **84**, 1027 (1997).