

Линейная поляризация люминесценции в условиях бозе-конденсации диполярных экситонов и спонтанное нарушение симметрии

А. В. Горбунов¹⁾, В. Б. Тимофеев

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

Поступила в редакцию 22 мая 2008 г.

Обнаружена линейная поляризация люминесценции бозе-конденсата диполярных, пространственно-непрямых экситонов, накапливаемых в латеральных кольцевых ловушках в GaAs/AlGaAs шоттки-диодных гетероструктурах с широкой одиночной квантовой ямой. В тех же экспериментальных условиях люминесценция прямых экситонов остается неполяризованной. Показано, что линейная поляризация экситонного конденсата может возникать из-за анизотропного обменного электронно-дырочного ($e-h$) взаимодействия, связанного с анизотропией удерживающего потенциала в плоскости квантовой ямы. Это взаимодействие смешивает и расщепляет основное состояние оптически активных экситонов на тяжелых дырках (с проекцией углового момента $m = \pm 1$). Расщепленные компоненты проекций соответствующего углового момента в спектрах линейно поляризованы взаимно перпендикулярно. В условиях такого анизотропного $e-h$ обмена, конденсированная часть экситонов должна накапливаться в нижайшем из расщепленных состояний, а люминесценция, соответствующая экситонному бозе-конденсату в таком отщепленном состоянии, становится линейно-поляризованной вдоль кристаллографического направления $\langle 110 \rangle$ в плоскости квантовой ямы. Обнаруженный эффект является одним из проявлений спонтанного нарушения симметрии в условиях бозе-эйнштейновской конденсации экситонов.

PACS: 73.21.Fg, 78.67.De

В опубликованных ранее работах [1–4] мы сообщали о коллективном поведении диполярных экситонов, которые накапливались в кольцевых ловушках в условиях стационарного фотовозбуждения. Исследовались гетероструктуры с двойной [1] и одиночной широкой [2] GaAs/AlGaAs квантовыми ямами в условиях, когда перпендикулярно гетерослоям приложено электрическое смещение, сдвигающее уровень размерного квантования. Структуры представляли собой фотодиоды Шоттки, у которых в верхнем металлическом электроде средствами электронной литографии протравливались круглые окна размером 5 мкм, через которые велось фотовозбуждение и наблюдение люминесценции. Благодаря электрическому смещению, приложенному между металлическим шоттки-затвором и проводящим электронным слоем, встроенным внутри гетероструктуры, фотовозбужденные электрон и дырка в экситоне оказываются пространственно разделенными. Экситоны в таких условиях имеют статический дипольный момент в основном состоянии и – вследствие дипольного отталкивания – не связываются в молекулы или более сложные электронно-дырочные комплексы. Такие экситоны называют диполярными, или

пространственно-непрямыми, экситонами. В случае двойных квантовых ям их еще называют межъямными.

Кольцевая ловушка в плоскости квантовой ямы, где накапливались фотовозбужденные диполярные экситоны, возникала вдоль периметра окна во внешнем металлическом электроде (затворе Шоттки) из-за сильно неоднородного в радиальном направлении электрического поля: поле возрастает от центра окна к периметру [1–4]. В эксперименте возникновение такой латеральной потенциальной ямы удается контролировать, а также оценить ее основные параметры: форму, ширину в радиальном направлении и высоту барьера. С этой целью на входную щель спектрометра симметрично проецируется с высоким пространственным разрешением (около 1 мкм) изображение соответствующего окна в металлическом затворе. Схематически это изображено на рис.1а. Электрическое поле, действующее на экситоны, в пределах окна сильно неоднородно. В центре окна (темное пятно по центру входной щели на рис.1а) рассеянное электрическое поле мало. Однако это поле сильно возрастает в радиальном направлении (вдоль спектральной щели на рис.1а) и достигает максимума вблизи периметра окна (этот области отмечены на рис.1а стрелками). Эксперимент [1–4]

¹⁾e-mail: gorbunov@issp.ac.ru

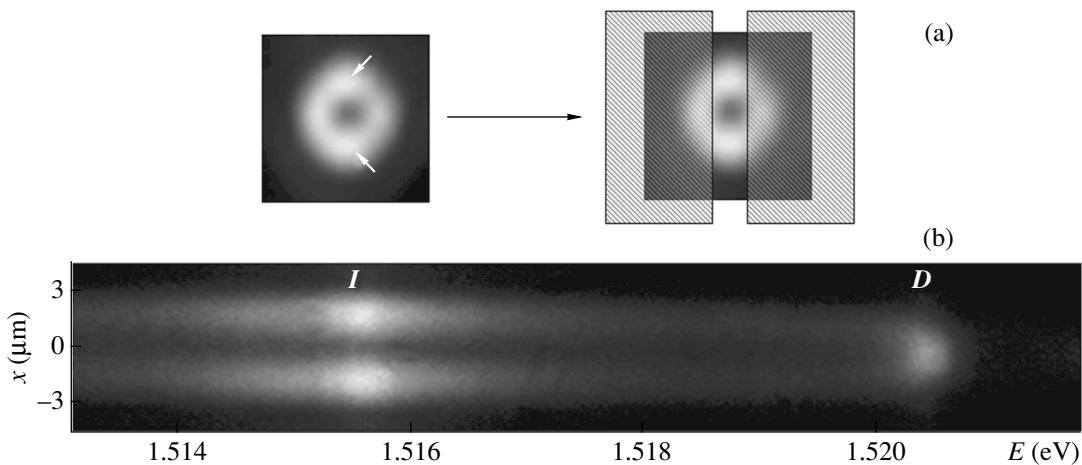


Рис.1. Спектр фотолюминесценции широкой (250 \AA) одиночной GaAs/AlGaAs квантовой ямы, измеренный внутри отверстия $\varnothing 5 \text{ мкм}$ в затворе Шоттки на поверхности с высоким пространственным разрешением вдоль спектральной щели (ось x): (а) схема и (б) результат измерений. **I** – люминесценция пространственно-непрямых, диполярных экситонов, **D** – излучение прямых экситонов. На схеме (а) приведена пространственная картина люминесценции только непрямых экситонов, наблюдаемая с помощью узкополосного интерференционного светофильтра. Температура 1.7 K

и расчет [5] показывают, что результирующее электрическое поле непосредственно под электродом оказывается меньше величины поля вблизи периметра окна. Таким образом, в случае круговых окон в металлическом электроде, приложенном напряжении, вдоль периметра окна возникает кольцевая латеральная потенциальная яма, в которой могут накапливаться диполярные экситоны. Если входная щель спектрометра вырезает центральную часть проектируемого окна симметричным образом, то в спектре люминесценции экситонов в условиях стационарного фотовозбуждения наблюдается следующая картина, отражающая неоднородное распределение электрического поля в окне (соответствующий спектр, детектируемый CCD-камерой на выходе спектрометра, иллюстрирует рис.1б). В центре окна, где рассиянное электрическое поле невелико, видна слабая люминесценция прямых экситонов (**D**). Вблизи периметра окна наблюдаются два интенсивных пятна люминесценции диполярных экситонов (**I**), которые накапливаются вблизи дна латеральной потенциальной ямы, создаваемой неоднородным электрическим полем (на рис.1а эти области показаны стрелками). Эти два интенсивных пятна люминесценции диполярных экситонов расположены симметрично относительно области свечения прямых экситонов из центра окна и сдвинуты в сторону меньших энергий на величину спектрального сдвига Штарка, который определяется приложенным электрическим полем. Этот

энергетический сдвиг относительно прямых экситонов, который можно в некоторых пределах регулировать напряжением, приложенным между электродами, определяет величину барьера латеральной ловушки для диполярных экситонов. В картине спектра на рис.1б видны также слабые треки свечения “горячих” экситонов, которые дрейфуют к латеральной яме вблизи периметра окна, где накапливаются диполярные экситоны. Форма этих треков, по сути, отражает форму потенциальной ловушки для диполярных экситонов. В радиальном направлении форму потенциальной ловушки, вблизи ее дна, можно приближенно описать параболической зависимостью $V(r) = \alpha \cdot r^2$, где силовая постоянная α в условиях, соответствующих рис.1, составляет $\approx 2.2 \text{ мэВ/мкм}^2$, а высота барьера $\Delta V \approx 5 \text{ мэВ}$. В условиях эксперимента высота барьера почти на два порядка превышала температуру $T = 1.7 \text{ K}$. В аксиальном направлении ловушка определяется формой периметра окна и поэтому может быть, в принципе, произвольной. В данной работе мы работаем только с круговыми окнами в шоттки-электроде и, следовательно, с круглыми кольцевыми ловушками.

Теперь рассмотрим, как ведут себя спектры люминесценции диполярных экситонов, накапливаемых в латеральных кольцевых ловушках (яркие пятна свечения, отмеченные стрелками на рис.1а), а также спектры прямых экситонов (**D-линия**), измеренные в тех же экспериментальных условиях, при вариации

мощности фотовозбуждения. Эти спектры, представленные на рис.2, измерены для двух линейных поляризаций:

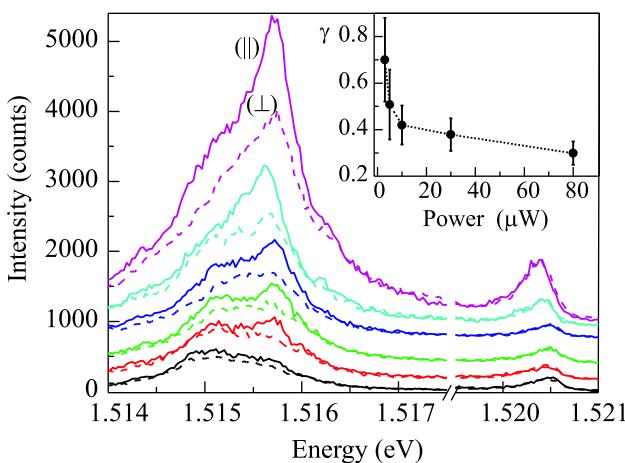


Рис.2. Спектры люминесценции из пары пятен свечения внутри отверстия $\varnothing 5 \text{ мкм}$ (отмечены стрелками на рис.1а) с линейной поляризацией параллельно (\parallel – сплошные кривые) и перпендикулярно (\perp – штриховые кривые) спектральной щели на рис.1а. Фотовозбуждение одновременно Ti-Sp- (мощность $P_{\text{TiSp}} = 70 \text{ мкВт}$) и He-Ne-лазерами ($P_{\text{He-Ne}} = 1.5, 3, 5, 10, 30$ и 80 мкВт снизу вверх, соответственно). Диаметр лазерного пятна на образце $\approx 50 \text{ мкм}$. Приложенное напряжение $U = +1.46 \text{ В}$, $T = 1.7 \text{ К}$

ризаций: (\parallel) – параллельно спектральной щели, вырезающей яркие пятна свечения диполярных экситонов вдоль диаметра окна, и (\perp) – перпендикулярно этому направлению. В плоскости квантовой ямы этому соответствуют кристаллографические направления $\langle 110 \rangle$ и – эквивалентное ему – $\langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$. Фотовозбуждение велось с помощью двух непрерывных лазеров одновременно: He-Ne- (длина волны $\lambda = 632.8 \text{ нм}$) и Ti-Sp-лазеров ($\lambda = 780 \text{ нм}$). Возбуждение этими лазерами рождало носители достаточно высоко в зоне, и поэтому никоим образом не влияло на состояние поляризации исследуемой люминесценции. Мощности лазеров подбирались таким образом, чтобы максимально скомпенсировать избыточные заряды в фотовозбужденной электронно-дырочной системе. Нескомпенсированные носители заряда в ловушке сильно влияют на свойства экситонной системы, экранируя кулоновское взаимодействие и усиливая рассеяние экситонов. Компенсацию избыточных зарядов в условиях фотовозбуждения можно контролировать по исчезновению линии заряженных экситонно-примесных комплексов или трионов. В условиях полной компенсации зарядов, помимо исчезновения люминесценции заряженных экситонных комплексов, в спектрах возгорается “горячая” люминесценция воз-

бужденных состояний свободных прямых экситонов. Детали этого метода подробно описаны в работах [6, 2] (см. также [7]).

Бозе-конденсация диполярных экситонов проявляется в спектрах люминесценции при увеличении мощности фотовозбуждения в пороговом вырастании в спектрах узкой линии, соответствующей бозе-конденсату, которая вблизи порога конденсации растет сверхлинейно с ростом оптической накачки [1, 2, 8]. На рис.2 видно, что ниже порога в спектрах люминесценции диполярных экситонов, измеренных для двух состояний линейной поляризации, (\parallel) и (\perp), наблюдается только бесструктурная полоса шириной около 1 мэВ, которая связана с локализованными экситонами в самой ловушке и вблизи нее. Эта бесструктурная полоса около порога, в пределах экспериментальной точности, не поляризована. При увеличении накачки на фиолетовом крае бесструктурной полосы пороговым образом вырастает узкая линия шириной менее 300 мкэВ, соответствующая бозе-конденсату диполярных экситонов (см. также [3, 4]). Из рис.2 с очевидностью следует, что эта линия сильно линейно поляризована, а именно: компонента (\parallel), параллельная кристаллографическому направлению $\langle 110 \rangle$, намного сильнее перпендикулярной компоненты (\perp), параллельной $\langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$. В то же время измеренная в таких же экспериментальных условиях линия люминесценции прямых экситонов (вблизи 1.5205 эВ) не поляризована (рис.2). Для определения степени линейной поляризации узкой линии, соответствующей экситонному конденсату, использовалась стандартная процедура разделения спектральных контуров этой линии и бесструктурного континуума под ней. Зависимость степени поляризации γ линии экситонного конденсата от мощности фотовозбуждения показана на вставке к рис.2. Наибольшая степень линейной поляризации наблюдается вблизи порога конденсации ($\gamma \approx 70\%$). В этой области из-за малой величины сигнала ошибка измерений наибольшая. При увеличении мощности возбуждения степень поляризации уменьшается, что естественно связать с ростом температуры при возрастании накачки и соответствующим “обеднением” конденсата вследствие тепловых возбуждений.

Следует подчеркнуть, что спектры люминесценции, измеренные в идентичных условиях из разных пятен вдоль периметра кольцевой ловушки, совпадают с большой точностью. Такое сравнение спектров для двух пятен люминесценции, пространственно разнесенных вдоль диаметра окна, приведено на рис.3. Измерения спектров выполнялись в условиях, когда из увеличенного изображения одиночного

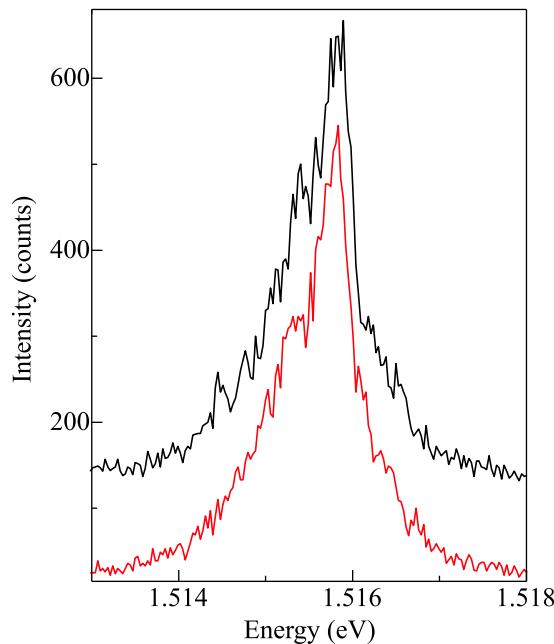


Рис.3. Спектры, измеренные отдельно для верхнего и нижнего пятен люминесценции, отмеченных стрелками на рис.1а. $P_{\text{TiSp}} = 70 \text{ мкВт}$, $P_{\text{He-Ne}} = 50 \text{ мкВт}$, $U = +1.46 \text{ В}$, $T = 1.7 \text{ К}$

пятна люминесценции ($\times 20$) с помощью круглой диафрагмы вырезалась только центральная часть, соответствующая дну ловушки. Эта процедура позволяла минимизировать вклад рассеянной люминесценции от областей вне ловушки. Полная идентичность сравниваемых спектров означает, что диполярные экситоны, накапливаемые в пространственно разнесенных областях кольцевой ловушки, тождественны.

В условиях бозе-конденсации диполярных экситонов в пространственной картине люминесценции, которая наблюдалась из окна размером 5 мкм с разрешением около 1 мкм и селектировалась спектрально с помощью узкополосного интерферционного фильтра ($\Delta\lambda = 11 \text{ \AA}$), появляется пространственно-периодическая структура эквидистантно расположенных пятен свечения [1–4]. На рис.4 представлены 3-мерные псевдоизображения наблюдаемых пространственно-периодических структур люминесценции, измеренных для двух взаимно-перпендикулярных поляризаций – (\parallel) и (\perp). Приведенные псевдоизображения отражают пространственные распределения интенсивности люминесценции в пятнах в плоскости кольцевой ловушки. В окнах размером 5 мкм структура пятен имеет отчетливую аксиальную симметрию. Пространственно-периодическая структура люминесценции также линейно поляризована, и ее пло-

кость поляризации связана с кристаллографическим направлением типа $\langle 110 \rangle$. Рис.5 воспроизводит изменившуюся полную картину аксиального распределения линейной поляризации излучения (индикатору интенсивности линии диполярного экситона) в периодической структуре пятен люминесценции.

Экспериментально реализовано *in situ* оптическое фурье-преобразование пространственно-периодических структур (преобразование реального r -в K -пространство). Полученные фурье-образы, воспроизводящие картину распределения интенсивности люминесценции в дальнем поле, демонстрируют результат деструктивной и конструктивной интерференции, а также пространственную направленность люминесценции по нормали к гетерослоям. Оптические фурье-преобразования подробно проиллюстрированы и описаны в публикациях [2–4]. В целом эти результаты являются естественным следствием крупномасштабной когерентности конденсированного экситонного состояния в кольцевой латеральной ловушке.

Теперь обсудим представленные выше эксперименты, связанные с обнаружением линейной поляризации линии люминесценции, а также эквидистантной структуры пятен свечения в кольцевой ловушке, соответствующих бозе-конденсату диполярных экситонов. Ниже порога конденсации люминесценция не поляризована. Выше порога по накачке люминесценция оказывается линейно поляризованной до 70%. Плоскость линейной поляризации всегда оказывается ориентированной вдоль кристаллографического направления $\langle 110 \rangle$ в плоскости $\{001\}$. Возникающая спонтанным образом линейная поляризация никоим образом не связана с состоянием поляризации возбуждающего лазера. Мы предполагаем, что природа наблюдаемого явления состоит в следующем. Состояния диполярных экситонов на тяжелых дырках, если пренебречь обменным электронно-дырочным взаимодействием, являются четырехкратно вырожденными по угловому моменту: проекции полного углового момента вдоль направления Z , перпендикулярного гетерослоям, составляют $m = S_{eZ} + J_{hZ} = \pm 1$ (для оптически активных так называемых “ярких” экситонов) и $m = \pm 2$ (для оптически неактивных или “темных” экситонов). Спиновый гамильтониан для диполярных экситонов в случае GaAs квантовых ям, согласно [9–11], можно записать в следующем виде:

$$\hat{\mathbf{H}} = a_Z \mathbf{J}_{h,Z} \cdot \mathbf{S}_{e,Z} + \sum b_i \mathbf{J}_{h,i}^3 \cdot \mathbf{S}_{e,i}$$

Во втором слагаемом гамильтониана индекс i характеризует направления x , y и z . Излучательные со-

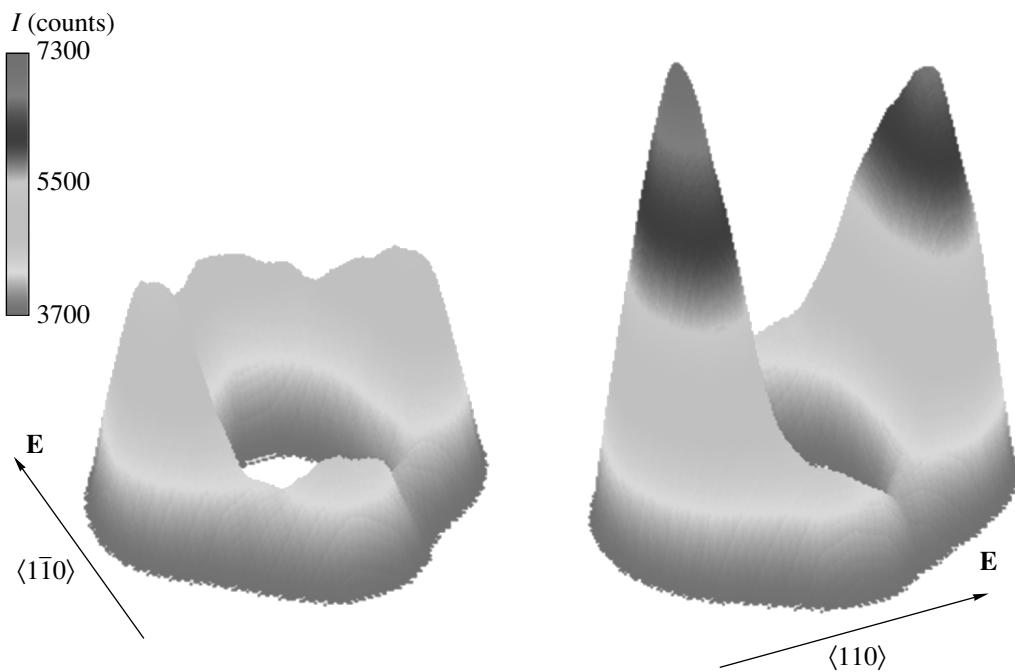


Рис.4. Пространственное распределение люминесценции непрямых экситонов в одиночной квантовой яме GaAs/AlGaAs (250 Å), наблюдаемое в окне 0.5 мкм в металлическом электроде на поверхности образца, при двух ортогональных направлениях линейной поляризации, обозначенных стрелками. Фоновое излучение от локализованных экситонов не показано. $P_{\text{TiSp}} = 140 \text{ мкВт}$, $P_{\text{He-Ne}} = 50 \text{ мкВт}$, $U = +1.46 \text{ В}$, $T = 1.7 \text{ К}$

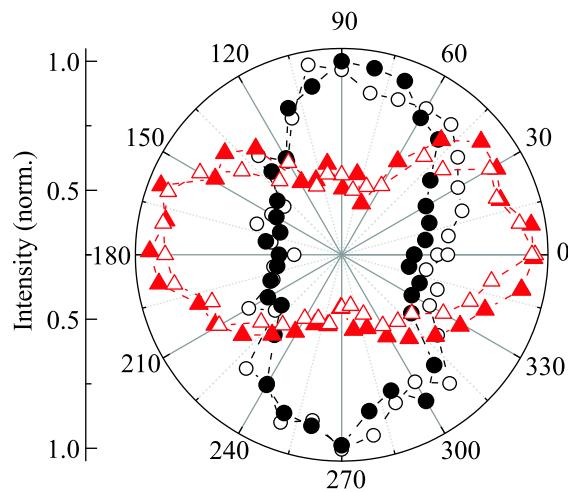


Рис.5. Полярная диаграмма интенсивности люминесценции непрямых экситонов в одиночной квантовой яме GaAs/AlGaAs (250 Å), наблюданной в отверстии 5 мкм в электроде Шоттки на поверхности – зависимость от угла поворота линейного поляризатора. Треугольники соответствуют верхнему и нижнему, кружки – левому и правому пятнам люминесценции на рис.1а, угол 0° – направлению <110> – вдоль спектральной щели. $P_{\text{TiSp}} = 140 \text{ мкВт}$, $P_{\text{He-Ne}} = 50 \text{ мкВт}$, $U = +1.46 \text{ В}$, $T = 1.7 \text{ К}$

состояния $m = \pm 1$ и безызлучательные (“темные”) состояния $m = \pm 2$ расщеплены в соответствии со слагаемым обменного взаимодействия $E_{ex} = 1.5az + 3.375b_z$ (аналог синглет-триплетного расщепления).

Если удерживающий потенциал в 2D плоскости асимметричен ($b_x \neq b_y$), то такая асимметрия, согласно второму слагаемому в гамильтониане, приводит к анизотропному обменному электронно-дырочному взаимодействию. Анизотропное обменное взаимодействие расщепляет диполярные экситонные состояния с проекциями углового момента $m = \pm 1$ (заметим, что, в принципе, по этой же причине должны расщепляться состояния с проекциями момента $m = \pm 2$). В результате анизотропного обмена оптически активные расщепленные состояния оказываются линейной комбинацией состояний с проекциями углового момента $m = \pm 1$, а именно: $|L_{1/2}\rangle = (\alpha|+1\rangle \pm \beta|-1\rangle)/\sqrt{2}$, при этом отношение $\alpha/\beta \cong 1$. Смешивание состояний в конечном итоге приводит к тому, что вырождение основного экситонного состояния с проекциями углового момента $m = \pm 1$ снимается, а расщепленные компоненты проекций соответствующего углового момента оказываются в спектрах линейно поляризованными взаимно перпендикулярно. Анизотропный удерживающий потенциал в GaAs/AlGaAs гетероструктурах (в квантовых ямах, квантовых точках) оказывается ориентированным вдоль направлений <110> или <1-10> в кристалло-

графической плоскости {001}. Поэтому расщепленные компоненты должны быть линейно поляризованы ортогонально вдоль направлений $\langle 110 \rangle$ либо $\langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$, что и наблюдается экспериментально. Эффект анизотропного обменного электронно-дырочного взаимодействия и связанного с ним расщепления основного экситонного состояния на тяжелых дырках на две линейно поляризованные ортогональные компоненты наблюдался ранее в одиночных InGaAs квантовых точках [12]. В случае GaAs/AlGaAs квантовых ям шириной 250 Å это расщепление чрезвычайно мало, менее 50 мкэВ, то есть существенно меньше $k_B T$ в обсуждаемых экспериментах [13]. Поэтому в условиях рассматриваемых экспериментов из-за неоднородного уширения спектров такое расщепление и связанная с ним линейная поляризация спиновых компонент не должны наблюдаться ниже порога бозе-конденсации. Однако выше порога конденсации в системе взаимодействующих диполярных экситонов начинает преимущественно заполняться нижайшее из расщепленных состояний. Как следствие макроскопического заполнения нижнего отщепленного состояния, люминесценция бозе-конденсата, наблюдаемая в спектрах, должна быть линейно поляризованной с преимущественной ориентацией вдоль направления $\langle 110 \rangle$. При увеличении температуры, из-за "обеднения" конденсата вследствие термических возбуждений, степень поляризации линии люминесценции, соответствующей экситонному бозе-конденсату, должна уменьшаться. Это соответствует экспериментальным наблюдениям, представленным на вставке рис.2. С ростом оптической накачки, которая всегда приводит к возрастанию температуры в экситонной системе [4, 14], степень поляризации люминесценции экситонного конденсата уменьшается.

Бозе-конденсация в рассматриваемом случае происходит спонтанно в резервуаре взаимодействующих межъямных экситонов. В этой связи мы полагаем, что обнаруженная линейная поляризация в спектрах люминесценции конденсированной фазы является одним из проявлений спонтанного нарушения симметрии в условиях бозе-конденсации диполярных экситонов в латеральной ловушке. Такое же явление линейной поляризации в спектрах люминесценции в усло-

виях бозе-конденсации двумерных экситонных поляритонов в микрорезонаторе недавно наблюдали авторы работы [15].

В заключение мы благодарим В.Д. Кулаковского и С.В. Иорданского за ценные обсуждения результатов настоящей работы.

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

1. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **83**, 178 (2006).
2. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **84**, 390 (2006).
3. V. B. Timofeev and A. V. Gorbunov, J. Appl. Phys. **101**, 081708 (2007).
4. V. B. Timofeev and A. V. Gorbunov, Phys. Stat. Solidi (c) **5**, 2379 (2008).
5. В. И. Сугаков, А. А. Чернюк, Письма в ЖЭТФ **85**, 699 (2007).
6. В. В. Соловьев, И. В. Кукушкин, Ю. Смет и др. Письма в ЖЭТФ **83**, 647 (2006).
7. I. V. Kukushkin and V. B. Timofeev, Advances in Physics. **45**, 147 (1996).
8. А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев, П. А. Ни и др., Письма в ЖЭТФ **75**, 689 (2002).
9. E. L. Ivchenko and G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures. Symmetry and Optical Phenomena*, Springer Series in Solid State Sciences 110, Springer, Berlin, 1995.
10. H. W. van Kestern, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel et al., Phys. Rev. B **41**, 5283 (1990).
11. M. J. Snelling, E. Blackwood, C. J. McDonagh et al., Phys. Rev. B **45**, 3922 (1992).
12. M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1748 (1999).
13. E. Blackwood, M. J. Snelling, R. T. Harley et al., Phys. Rev. B **50**, 14246 (1994).
14. А. В. Горбунов, А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **86**, 48 (2007).
15. J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann et al., Nature **443**, 409 (2006).