

Сверхизлучение вырожденного экситонного газа в полупроводниках с непрямым краем собственного поглощения

В. С. Кривобок^{1*}, С. Н. Николаев⁺, В. С. Багаев⁺, В. С. Лебедев⁺⁺, Е. Е. Онищенко⁺

⁺ Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{*} Московский физико-технический институт, 141707 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 23 июля 2014 г.

Предсказана возможность формирования состояний, обладающих сверхизлучающими свойствами, в вырожденном экситонном газе полупроводников с непрямым краем собственного поглощения. Соответствующее сверхизлучение вызвано процессами четырехчастичной рекомбинации. Оно возникает при энергиях кванта, примерно вдвое превышающих ширину запрещенной зоны. Представлены экспериментальные данные, подтверждающие возможность регистрации сверхизлучения для SiGe/Si квантовых ям.

DOI: 10.7868/S0370274X14170044

В последнее время наблюдается всплеск интереса к сверхизлучению – явлению, которое может наблюдаться при взаимодействии сфазированного (когерентного) ансамбля излучателей с модой электромагнитного поля [1–5]. Хорошо известно, что одним из результатов этого взаимодействия является формирование коллективных состояний, в которых резко (пропорционально квадрату числа частиц) увеличивается вероятность спонтанного излучения [6]. К настоящему моменту сверхизлучение было достоверно зафиксировано лишь для атомных и квазиатомных систем, таких, например, как атомы в оптических ловушках [1], квантовые точки [7] и J-агрегаты [8]. В то же время, насколько известно авторам, возможность формирования сверхизлучающих состояний в вырожденном экситонном газе объемных полупроводников и полупроводниковых квантовых ям (КЯ) детально не исследовалась, несмотря на значительный прогресс в области получения экситонного бозе-конденсата [9, 10]. По-видимому, это связано с тем, что для вырожденного экситонного газа в полупроводниках с прямым краем собственного поглощения свойства системы описываются на языке сильной связи экситонов с фотонами и классический формализм, развитый Дике [6], оказывается неприменим. С другой стороны, для полупроводников с непрямым краем закон сохранения квазиимпульса подразумевает наличие фонона или короткодействующего потенциала при испускании экситоном кванта света. В этом случае наблюдение сверхизлучения так-

же не представляется возможным, поскольку конечное состояние экситонного ансамбля, возникшее после испускания фотона, частично теряет когерентность. В данной работе показано, что экситонная подсистема непрямозонных полупроводников тем не менее обладает определенным потенциалом для реализации сверхизлучающих состояний применительно к 2Eg-люминесценции – процессу, при котором после одновременной рекомбинации двух электронно-дырочных пар энергия полностью передается кванту света [11, 12]. Вначале приведено качественное теоретическое описание эффекта. Затем представлены экспериментальные данные, подтверждающие возможность регистрации сверхизлучения в SiGe/Si гетероструктурах.

Проиллюстрировать возможность существования сверхизлучающих состояний проще всего на примере вырожденного газа невзаимодействующих (или слабо взаимодействующих) биэкситонов. В ряде полупроводников с непрямым краем собственного поглощения, например в объемном кремнии [13] или SiGe/Si КЯ [14], биэкситоны формируют два механизма излучательной рекомбинации, отличающихся количеством рекомбинировавших электронно-дырочных пар. Обычная (1Eg) люминесценция соответствует процессам, при которых после испускания кванта света биэкситоном остается одна электронно-дырочная пара. Слабое излучение с энергией кванта, примерно вдвое превышающей ширину щели (2Eg-люминесценция), возникает, если в результате одновременной рекомбинации двух электронно-дырочных пар, составляющих

¹) e-mail: krivobok@lebedev.ru

биэкситон, энергия полностью передается кванту света [11].

Как для обычной (1Eg), так и для 2Eg-люминесценции вероятность излучательной рекомбинации может быть стандартным образом рассчитана в рамках 2-го порядка теории возмущений. При таком описании вероятность испускания 2Eg-кванта одним биэкситоном пропорциональна квадрату модуля матричного элемента следующего вида:

$$w_1^{2Eg} \propto \left| \sum_{i_l} \frac{\langle f_l | \hat{H}_l^{Auger} | i_l \rangle \langle i_l | \hat{H}_l^{Er} | o_l \rangle}{E_i - \hbar\omega} \right|^2. \quad (1)$$

В выражении (1) $|f_l\rangle$ – основное состояние l -го биэкситона, характеризующееся нулевым квазиимпульсом (здесь и далее мы пренебрегаем возможной тонкой структурой биэкситонных состояний), $|o_l\rangle$ – состояние, в котором отсутствуют возбужденные электронно-дырочные пары (энергия этого состояния предполагается равной нулю), \hat{H}^{Auger} – добавка к гамильтониану, определяющая возможность перехода за счет оже-процессов в виртуальное состояние $|i_l\rangle$ с энергией E_i (данное состояние соответствует одной электронно-дырочной паре, суммарный квазиимпульс которой равен нулю), \hat{H}^{Er} – электрон-излучательное взаимодействие, $\hbar\omega$ – энергия испущенного кванта.

Вероятность испускания 1Eg-кванта описывается выражением, аналогичным (1), в котором вместо \hat{H}_n^{Auger} фигурирует электрон-фононное взаимодействие [15]. Основное отличие от 2Eg-люминесценции состоит в том, что виртуальное состояние включает две электронно-дырочные пары и конечные состояния $|g_l^k\rangle$ характеризуются ненулевым квазиимпульсом за счет энергии отдачи [15].

Если ансамбль из нескольких квазичастиц описывается единой волновой функцией (ВФ), матричные элементы в выражении (1) должны вычисляться для ансамбля как целого:

$$w_n^{2Eg} \propto \left| \sum_{i_l} \left\{ \left(\langle n | \hat{H}_1^{Auger} + \dots + \hat{H}_n^{Auger} | i_l \rangle \times \langle i_l | \hat{H}_1^{Er} + \dots + \hat{H}_n^{Er} | n-1 \rangle \right) / (E_i - \hbar\omega) \right\} \right|^2. \quad (2)$$

В выражении (2) ВФ $|n\rangle$ и $|n-1\rangle$ отвечают, соответственно, исходному состоянию ансамбля и состоянию ансамбля, возникшему после испускания 2Eg-кванта, $|i_l\rangle$ – виртуальные состояния ансамбля, в которых один из биэкситонов перешел в состояния $|i_l\rangle$.

Рассмотрим частный случай коллективного состояния, при котором ВФ ансамбля имеет вид

$$|n\rangle = |n, 0\rangle = f_1 \times \dots \times f_n. \quad (3)$$

После рекомбинации одного из биэкситонов, сопровождающейся испусканием 2Eg-кванта, ВФ необходимо симметризовать по возможным перестановкам частиц:

$$|i\rangle = \frac{1}{\sqrt{n}} \sum_T i_1 \cdot f_2 \times \dots \times f_n, \quad (4)$$

$$|n-1\rangle = |n-1, 1\rangle = \frac{1}{\sqrt{n}} \sum_T o_1 \cdot f_2 \times \dots \times f_n, \quad (5)$$

где T означает суммирование по всем возможным перестановкам индексов “1”–“ n ”, формирующим нетождественные произведения под знаком суммы. Ввиду ортогональности ВФ для любого $l = 1-n$ можно показать, что

$$\langle n | \hat{H}_l^{Auger} | i \rangle = \langle f_l | \hat{H}_l^{Auger} | i_l \rangle / \sqrt{n}, \quad (6)$$

$$\langle i | \hat{H}_l^{Er} | n-1 \rangle = \langle i_l | \hat{H}_l^{Auger} | o_l \rangle / n. \quad (7)$$

Подстановка (6) и (7) в (2) приведет к “классическому” результату: $w_n^{2Eg} = n w_1^{2Eg}$. Качественно иная ситуация реализуется для коллективной ВФ вида

$$\begin{aligned} |n-m\rangle &= |n-m, m\rangle = \\ &= \sqrt{\frac{m!(n-m)!}{n!}} \sum_T o_1 \times \dots \times o_m \cdot f_{m+1} \times \dots \times f_n, \end{aligned} \quad (8)$$

которая возникает после удаления m биэкситонов из начального состояния, описываемого выражением (3). Отметим, что состояние (4), возникающее после испускания 2Eg-кванта, является частным случаем (8) с $m = 1$. Для получения ВФ типа (8) неважно, как конкретно рекомбинируют m биэкситонов. Главное, чтобы при такой рекомбинации не происходила передача энергии и импульса оставшемуся ансамблю. Рассматривая (8) как начальное состояние ансамбля, несложно получить выражения для матричных элементов:

$$\langle n-m | \hat{H}_l^{Auger} | i \rangle = \langle f_l | \hat{H}_l^{Auger} | i_l \rangle \sqrt{n-m}/n, \quad (9)$$

$$\langle i | \hat{H}_l^{Er} | n-m-1 \rangle = \langle i_l | \hat{H}_l^{Auger} | o_l \rangle \sqrt{m+1}/n. \quad (10)$$

Подстановка (9), (10) в (2) приводит к следующему результату:

$$w_{n-m}^{2Eg} = (n-m)(m+1)w_1^{2Eg}. \quad (11)$$

Таким образом, интенсивность 2Eg-люминесценции пропорциональна количеству биэкситонов, помноженному на величину $m + 1$, которая никак не связана со степенью возбуждения системы и может быть очень большой. Выражение (11) полностью аналогично соотношениям, впервые полученным Дике [6] для ансамбля двухуровневых атомных систем. Отметим, что для 1Eg-люминесценции формализм, аналогичный представленному выше, приведет к “классическому” результату, т.е. интенсивность люминесценции ансамбля будет отражать количество биэкситонов в нем. Это связано с тем, что конечная ВФ системы после испускания 1Eg-кванта, помимо $|f_i\rangle$ и $|o_i\rangle$, включает состояния $|g_i^k\rangle$, которые нарушают когерентность ансамбля.

Несколько усложнив формализм, можно показать, что формирование биэкситонов не является необходимым условием для создания экситонных ансамблей, обладающих сверхизлучающими свойствами применительно к 2Eg-люминесценции. Например, это относится к электронно-дырочной системе в материале, у которого максимум валентной зоны находится в Γ -точке, а дно зоны проводимости определяется двумя противоположными долинами вблизи X-точки (случай одноосного сжатого кремния вдоль направления [001]). В данном случае при вырождении экситонного газа реализуемы состояния, для которых вероятность спонтанного испускания 2Eg-квантов за счет неупругого экситон-экситонного рассеяния также не описывается в рамках классических представлений. В частности, эта вероятность есть

$$w^{2Eg} \propto (n_1 - m_1)(m_1 + 1)(n_2 - m_2)(m_2 + 1), \quad (12)$$

если предположить, что исходная ВФ системы

$$|n_1 + n_2 - m_1 - m_2\rangle = |n_1 - m_1\rangle |n_2 - m_2\rangle \quad (13)$$

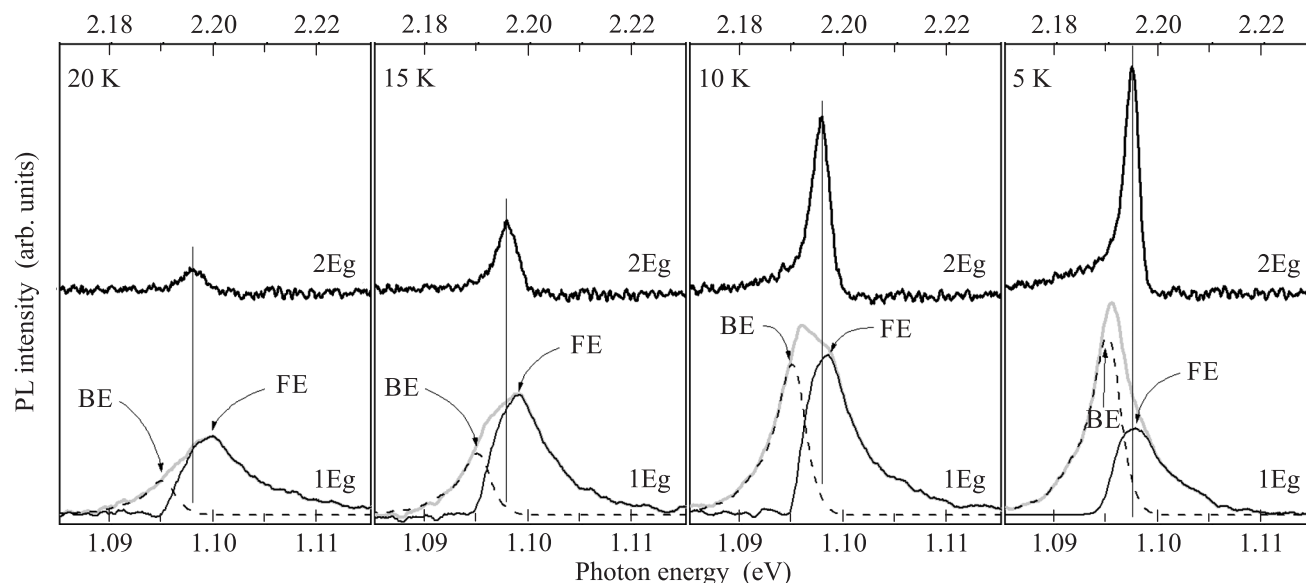
сформирована из двух экситонных ансамблей: $|n_1 - m_1, m_1\rangle$ и $|n_2 - m_2, m_2\rangle$. В (13) $|n_1 - m_1, m_1\rangle$ состоит из экситонов с квазиимпульсом \mathbf{K}_0 , соответствующим первой долине, а $|n_2 - m_2, m_2\rangle$ включает экситонные состояния с квазиимпульсом $-\mathbf{K}_0$, соответствующим второй долине. Каждый из этих ансамблей описывается коллективной ВФ, аналогичной (8), но построенной из двухчастичных (экситонных) состояний. Испускание 2Eg-квантов в такой системе возможно при одновременной рекомбинации двух экситонов с противоположными квазиимпульсами. При $m_1 = m_2 = 0$ имеет место классическая ситуация, когда интенсивность 2Eg-люминесценции отражает количество экситонов с квазиимпульсами \mathbf{K}_0 и $-\mathbf{K}_0$. Если в (12) хотя бы одна из величин m_1, m_2 отлична

от нуля, то возникает сверхизлучающее состояние, в котором интенсивность 2Eg-излучения резко возрастает.

Основой описываемого эффекта является тот факт, что при испускании 2Eg-квантов суммарный квазиимпульс системы не может существенно измениться ввиду малости квазиимпульса фотона. Поэтому в процессе 2Eg-люминесценции вырожденного экситонного газа из основного состояния в возбужденное могут перейти только два и более экситонов. Очевидно, что указанный процесс маловероятен для экситонного газа, в котором расстояние между частицами превышает боровский диаметр экситона. При испускании 2Eg-квантов таким газом преимущественно происходит изменение чисел заполнения в основном состоянии, но состояния, существенно отличающиеся от основного по энергии, не заселяются. Таким образом, 2Eg-люминесценция вырожденного газа со слабым взаимодействием между экситонами аналогична спонтанному излучению ансамбля сфазированных двухуровневых систем (“возбужденному” уровню соответствует пара экситонов с противоположными квазиимпульсами). Как известно, именно в этом случае могут быть реализованы состояния Дике, обладающие сверхизлучающими свойствами.

При испускании 1Eg-квантов возникает качественно иная ситуация, поскольку ансамбль экситонов приобретает случайный (ненулевой) квазиимпульс за счет энергии отдачи. Как следствие обычная люминесценция сопровождается переходом экситонов из основного состояния на возбужденные уровни. Это приводит к тому, что интенсивность люминесценции содержит информацию лишь о количестве экситонов в ансамбле и не отражает возможных эффектов, связанных с его когерентностью.

Описанные выше свойства сверхизлучающих состояний в непрямозонных полупроводниках позволяют предложить простой метод их экспериментальной регистрации, основанный на одновременном измерении интенсивности ИК- и 2Eg-люминесценции экситонного газа. Главным признаком формирования сверхизлучающих состояний следует считать увеличение интенсивности 2Eg-люминесценции на фоне фиксированной или уменьшающейся интенсивности 1Eg-излучения вырожденного экситонного (биэкситонного) газа. Для проверки данного утверждения нами была проведена серия экспериментов, в которых одновременно измерялась 1Eg- и 2Eg-люминесценция экситонного газа в SiGe/Si КЯ. В таких КЯ аналогично структурам GaAs/AlGaAs [16] локальная когерентность экситонов возможна в пределах крупномасштабных флуктуаций локализуя-



Спектры 1Eg (серые кривые) и 2Eg (верхние черные кривые) ФЛ отобранной гетероструктуры в интервале температур от 20 до 5 K при плотности мощности возбуждения 60 мВт/см^2 . Для 1Eg-спектров показан вклад свободных (сплошная черная кривая) и связанных на примеси (штриховая кривая) экситонов. Спектры 1Eg приведены в области фоновых (ТО) повторения и сдвинуты в коротковолновую область на энергию этого фона (57.8 мэВ) для совмещения с 2Eg-спектрами. Энергетическое положение дна экситонной зоны приблизительно соответствует вертикальной линии

щего потенциала, вызванных изменением толщины слоя SiGe. Детали, касающиеся выращивания образцов и установки для измерения спектров фотолюминесценции (ФЛ), можно найти, например, в работе [17]. Далее будут приведены результаты, полученные для структуры с КЯ толщиной 5 нм и концентрацией германия $\sim 9.5\%$. Толщина и состав КЯ подбирались так, чтобы подавить формирование электронно-дырочной жидкости и свободных биэкситонов за счет кулоновского отталкивания между пространственно-непрямыми экситонами. Как следствие в отобранной структуре основным каналом излучательной рекомбинации для 1Eg (ИК) ФЛ являлись свободные (FE) и связанные на примеси бора (BE) экситоны, а для 2Eg ФЛ – неупругое экситон-экситонное рассеяние. Такая интерпретация подтверждается экспериментальными данными, полученными в широком диапазоне температур и плотностей (стационарного и импульсного) возбуждения. Отметим, что для непрямозонных SiGe/Si КЯ в спектре 1Eg ФЛ наиболее ярко проявляются фоновые (ТО) повторения линий люминесценции. Анализ экспериментальных данных в области ТО-повторения допускает разделение линий FE и BE с точностью $\sim 10\text{--}20\%$ от их относительной интенсивности [17].

За счет одноосного растяжения в слое SiGe минимум зоны проводимости четырехкратно вырожден.

Это приводит к существованию в КЯ четырех типов экситонов. Каждый тип характеризуется большим квазиимпульсом, соответствующим одной из четырех электронных долин. Несмотря на некоторое усложнение по сравнению с рассмотренным выше примером, в данном случае для интенсивности 2Eg-люминесценции справедливо выражение, аналогичное (12).

Рисунок иллюстрирует эволюцию ИК- и 2Eg-спектров отобранной гетероструктуры с уменьшением температуры от 20 до 5 K при плотности мощности возбуждения 60 мВт/см^2 . Понижение температуры способствует связыванию экситонов на примесях, что, в свою очередь, приводит к падению интенсивности линии FE и возрастанию интенсивности линии BE. В этих условиях интенсивность линии в 2Eg-спектрах монотонно возрастает. Здесь стоит подчеркнуть, что линия BE не связана с 2Eg-излучением. Это подтверждается, в частности, тем, что при низких плотностях возбуждения 2Eg-люминесценция не регистрируется, а относительная интенсивность, форма и спектральное положение линии BE практически не меняются. При рассматриваемых условиях стационарного возбуждения время жизни свободных экситонов, определенное по скорости релаксации сигнала ФЛ к стационарному значению после подсветки слабым импульсом с дли-

тельностью 5 нс, составляет ~ 1.1 мкс (для 5 К). Данная величина достаточна для эффективной релаксации функции распределения экситонов к квазиравновесному состоянию с температурой, близкой к температуре решетки. Плотность мощности возбуждения в 60 мВт/см^2 была подобрана так, чтобы среднее расстояние между экситонами одного типа ($\sim 20\text{--}30$ нм) составляло порядка длины волны де-Бройля при температуре 20 К (~ 35 нм) и было существенно меньше длины волны де-Бройля при температуре 5 К (~ 70 нм). В результате по мере охлаждения образца до 5 К следует ожидать локальной когерентности экситонных состояний и, согласно (12), возрастания интенсивности 2Eg-излучения, вызванного неупругим экситон-экситонным рассеянием. Значительное увеличение плотности мощности возбуждения нецелесообразно ввиду ионизационного разрушения экситонов. Для выбранной плотности мощности в 60 мВт/см^2 среднее расстояние между экситонами в единицах их боровского радиуса $r_s > 2.5$. Этого, как правило, недостаточно для перехода Мотта [17, 18]. В то же время уже при $r_s < 2$ взаимное влияние экситонов друг на друга должно быть существенным. Это может приводить к их ионизационному разрушению.

Как видно из рисунка, экспериментальные данные подтверждают указанную выше тенденцию: с уменьшением температуры интенсивность 2Eg-люминесценции возрастает, несмотря на падение интенсивности ИК-люминесценции свободных экситонов при 5 К. Интенсивность 2Eg-люминесценции, вызванной экситон-экситонным рассеянием, пропорциональна количеству экситонных пар с нулевым квазиимпульсом. Поэтому для “классической” (некогерентной) системы двумерных экситонов пиковая интенсивность 2Eg ФЛ должна быть пропорциональна квадрату концентрации свободных экситонов с нулевой энергией. С другой стороны, концентрация низкоэнергетических экситонов пропорциональна интенсивности 1Eg-люминесценции вблизи дна экситонной зоны (оно расположено вблизи вертикальной линии на рисунке). Таким образом, для “классической” системы следовало бы ожидать одновременного возрастания или одновременного убывания интенсивностей 2Eg ФЛ и 1Eg ФЛ вблизи дна экситонной зоны. Отклонение от такого поведения, указывающее на неклассический характер 2Eg-люминесценции, особенно ярко регистрируется в диапазоне температур 5–10 К. Отметим, что обнаруженное возгорание 2Eg-люминесценции сопровождается сужением линии излучения и ее незначительным (~ 0.8 мЭВ)

длинноволновым сдвигом. Как указывалось в пионерских работах по экситонной бозе-конденсации [16], данное поведение типично для начала фазового перехода экситонного газа в когерентное состояние.

Таким образом, нами показано, что для полупроводников с непрямым краем собственного поглощения и гетероструктур на их основе рекомбинационные процессы в вырожденном экситонном газе могут формировать состояния, в которых резко возрастает интенсивность 2Eg-люминесценции – излучательной рекомбинации двух электронно-дырочных пар, сопровождающейся передачей энергии одному кванту света. Данный эффект объясняется образованием коллективных состояний, аналогичных сверхизлучающим состояниям Дике. Проведенные совместные измерения 1Eg- и 2Eg-люминесценции SiGe/Si гетероструктур с квантовыми ямами подтверждают формирование в вырожденном экситонном газе сверхизлучающих состояний.

Авторы благодарны А.В.Новикову за предоставленные образцы. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант # 14-22-00273).

1. K. Bauman, C. Guerlin, F. Brennecke, and T. Esslinger, *Nature* **464**, 1301 (2010).
2. S. Genway, W. Li, C. Ates, B.P. Lanyon, and I. Lesanovsky, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 023603 (2014).
3. E. Wlofe and S.F. Yelin, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 140402 (2014).
4. B. Lucke, J. Peise, G. Vitagliano, J. Arlt, L. Santos, G. Töth, and C. Klempt, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 155304 (2014).
5. J. Keeling, M. J. Bhaseen, and B. D. Simons, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 143002 (2014).
6. R. H. Dicke, *Phys. Rev. B* **93**, 99 (1954).
7. M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow, and D. Hommel, *Nat. Phys.* **3**, 106 (2007).
8. M. G. Benedict, *Super-radiance: multiatomic coherent emission*, Inst. of Physics Publ., Bristol (1996).
9. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, *Письма в ЖЭТФ* **96**, 145 (2012).
10. L. V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter, G. Böhm, and G. Weimann, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 304 (2011).
11. A. G. Steele, W. G. McMullan, and L. W. Thewalt, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2899 (1987).
12. V. S. Bagaev, V. S. Krivobok, S. N. Nikolaev, A. V. Novikov, E. E. Onishchenko, and M. L. Skorikov, *PRB* **82**, 115313 (2010).
13. В. С. Багаев, В. С. Кривобок, С. Н. Николаев, Е. Е. Онищенко, М. Л. Скориков, А. В. Новиков, Д. Н. Лобанов, *Письма в ЖЭТФ* **94**, 63 (2011).

14. Т. М. Бурбаев, М. Н. Гордеев, Д. Н. Лобанов, А. В. Новиков, М. М. Рзаев, Н. Н. Сибельдин, М. Л. Скориков, В. А. Цветков, Д. В. Шепель, Письма в ЖЭТФ **92**, 341 (2010).
15. К. Cho, Opt. Commun. **8**, 412 (1973).
16. А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев, И. Хвам, К. Соеренсен, Письма в ЖЭТФ **71**, 174 (2000).
17. В. С. Багаев, В. С. Кривобок, С. Н. Николаев, Е. Е. Онищенко, А. А. Пручкина, Д. Ф. Аминев, М. Л. Скориков, Д. Н. Лобанов, А. В. Новиков, ЖЭТФ **144**, 1045 (2013).
18. Н. Reinholz, Sol. St. Comm. **123**, 489 (2002).