

КОЛЛЕКТИВНОЕ ПОВЕДЕНИЕ МЕЖЪЯМНЫХ ЭКСИТОНОВ В GaAs/AlGaAs ДВОЙНЫХ КВАНТОВЫХ ЯМАХ

А.В.Ларионов, В.Б.Тимофеев¹⁾, И.Хвям^{1,2)}, К.Соеренсен⁺²⁾

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

⁺Microelectronic Centre
DK 2800 Lyngby, Denmark

Поступила в редакцию 30 декабря 1999 г.

В двойных GaAs/AlGaAs квантовых ямах ($n-i-n$ структуры) исследованы спектры фотолюминесценции (ФЛ) межъямных экситонов, у которых связанные электрон и дырка пространственно разделены узким AlAs барьером. При резонансном возбуждении циркулярно поляризованным светом обнаружено значительное сужение линии люминесценции межъямных экситонов с ростом их концентрации и сильное увеличение степени циркулярной поляризации ФЛ. Установлено, что в этих условиях существенно возрастает скорость излучательной рекомбинации. Обнаруженное явление наблюдается при температурах ниже критической и интерпретируется в терминах коллективного поведения межъямных экситонов.

PACS: 73.20.Mf, 78.55.Cr

1. Туннельно связанные квантовые системы, сверхрешетки и двойные квантовые ямы (ДКЯ) давно являются объектами интенсивных исследований [1–8]. Интерес к таким двумерным системам связан с принципиальной возможностью пространственного разделения фотовозбужденных электронных и дырочных носителей заряда. В ДКЯ с приложенным электрическим смещением, наклоняющем зоны, можно возбуждать экситоны, в которых электрон и дырка находятся в разных квантовых ямах (КЯ), разделенных туннельно прозрачным барьером. Такие экситоны называются пространственно непрямыми (И), или межъямными (МЭ), в отличие от прямых внутриямных экситонов (D), у которых электрон и дырка расположены в одних и тех же КЯ. Межъямные экситоны, по сравнению с внутриямными, являются долгоживущими, поэтому их нетрудно накапливать, а сам газ таких экситонов может быть охлажден до достаточно низких температур. Из-за нарушенной инверсной симметрии МЭ имеют дипольный момент уже в основном состоянии. Теория предсказывает различные возможные сценарии коллективного поведения в системе пространственно разделенных электронов и дырок [1, 9–14]. Так в недавней работе Бермана и Лозовика [14] 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 жидкая диэлектрическая фаза таких экситонов. Ранее в работе [11] указывалось, что конденсированная диэлектрическая экситонная фаза может возникать только при наличии латерального конфайнмента (случайного или искусственно приготовленного) в плоскости КЯ. Благодаря такому конфайнменту и связанному с ним внешнему сжатию в газе МЭ можно реализовать достаточно большие плотности.

¹⁾ e-mail: timofeev@issp.ac.ru

²⁾ J.Hvam, C.Soerensen

В реальных туннельно-связанных квантовых системах на основе полупроводниковых гетероструктур всегда присутствует случайный потенциал из-за разнообразных структурных дефектов – остаточных примесей, заряженных и нейтральных, флуктуаций ширины барьера и ширин самих КЯ и пр. Эти флуктуации создают случайный потенциальный рельеф в плоскостях КЯ, поэтому фотовозбужденные и пространственно разделенные между соседними КЯ электроны и дырки, а также экситоны оказываются сильно локализованными на этих флуктуациях, если температуры достаточно низкие. Такой эффект локализации в связанных квантовых системах проявляется, в частности, в латеральном термоактивационном туннелировании носителей заряда и обнаруживается в экспериментах по спектральному сужению с ростом температуры линии люминесценции, соответствующей межъямной излучательной рекомбинации [7].

В настоящей работе исследовалась ФЛ межъямных экситонов в ДКЯ с барьером, содержащим четыре монослоя AlAs, разделяющим КЯ. При столь узких барьерах МЭ являются достаточно сильно связанными. В этих условиях МЭ оказываются локализованными на латеральных флуктуациях случайного потенциала без существенных изменений своей внутренней структуры, если линейные масштабы флуктуаций $l > a_B$ (боровский радиус экситона около $a_B \leq 100 \text{ \AA}$), а амплитуды флуктуаций $\Delta > kT$. Известно, что в структурах с узкими AlAs барьерами флуктуации ширины барьера имеют крупномасштабный характер, а значит, крупномасштабными будут соответствующие им флуктуации латерального потенциального рельефа. Естественно ожидать, что МЭ при достаточно низких температурах будут находиться в таких случайных латеральных потенциальных ямках большого масштаба. Интересно знать, будет ли система МЭ в условиях такого случайного латерального конфайнмента демонстрировать критическое поведение при увеличении плотности и низкой температуре. В данной работе делается попытка ответить на затронутые вопросы.

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

Спектры люминесценции исследовались в условиях резонансного возбуждения внутриямных прямых экситонов на тяжелых дырках с помощью перестраиваемого Ti-сапфирового лазера. С целью оптической ориентации углового момента в экситоне использовалось циркулярно поляризованное резонансное возбуждение. Кинетика спектров люминесценции исследовалась при импульсном возбуждении пикосекундным лазером (длина волны 6200 \AA , длительность импульса 30 psec , частота следования 0.8 MHz), регистрация временной эволюции спектров и кинетики интенсивностей велась с помощью системы время-скоррелированного счета фотонов.

3.1. На рис.1с представлены спектры люминесценции МЭ (I_{ex}), измеренные при резонансном возбуждении $1sHH$ экситона и различных приложенных электрических

ких смещениях. В области внутриямной люминесценции при нулевом электрическом смещении видны две линии – свободного, $1sHH$, и связанного экситона, T . При отрицательном электрическом смещении, начиная с -0.4 В, в спектрах появляется линия межъямной излучательной рекомбинации, которая линейно смещается в сторону меньших энергий при увеличении приложенного напряжения (см. рис.1b). При этом в спектре внутриямной рекомбинации остается только линия заряженного экситонного комплекса T [15]. При больших отрицательных смещениях $U < -0.8$ В и стационарном возбуждении в спектрах остается заметной только линия люминесценции МЭ, а люминесценция прямых внутриямных экситонов и экситонных комплексов на несколько порядков слабее по интенсивности. Интенсивность линии МЭ в зависимости от приложенного отрицательного смещения ведет себя немонотонным образом. Она возникает в спектре люминесценции при электрических смещениях, когда штарковский сдвиг превышает разность энергий связи внутриямного и межъямного экситонов, $eFz \geq E_D - E_I$. При $U \sim -0.7$ В интенсивность этой линии максимальна, а затем монотонно падает с ростом электрического поля (см. рис.1c). Такое поведение нетрудно понять, учитывая что с ростом поля растет эффективный дипольный момент МЭ в направлении роста структуры (ось z), при этом перекрытие волновых функций электрона и дырки в экситоне монотонно уменьшается.

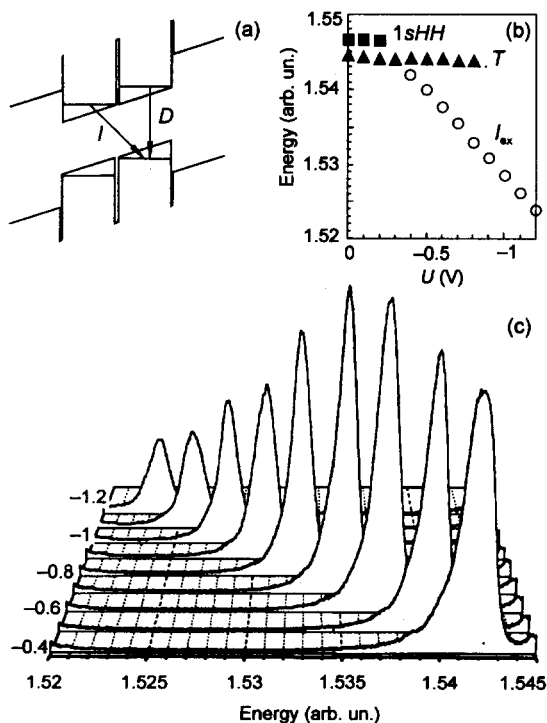


Рис.1. а) схема оптических переходов; б) зависимости спектральных позиций линий прямого экситона ($1sHH$), экситонного комплекса (T) и МЭ (I_{ex}) от электрического смещения; в) поведение спектров люминесценции межъямных экситонов при изменении приложенного напряжения (цифры слева от спектров соответствуют электрическому напряжению в вольтах) и $T = 2$ К

3.2. Линия люминесценции МЭ при достаточно низких температурах ($T = 2$ К) и небольших накачках имеет большую ширину ($FWHM = 4 \div 5$ meV), а сама форма линии асимметрична с достаточно протяженным длинноволновым “хвостом” и относительно резкой фиолетовой границей (см. рис.2). Такие особенности линии ФЛ МЭ являются следствием их сильной локализации на флуктуациях случайного потенциала. В этом случае ширина линии отражает статистическое распределение амплитуд

случайного потенциала (подразумеваются столь низкие накачки, $n_{e-h} < 10^9 \text{ cm}^{-2}$, что заполнение МЭ латеральных случайных потенциальных ям с линейными масштабами $l < 1 \mu$ не превышает единицы).

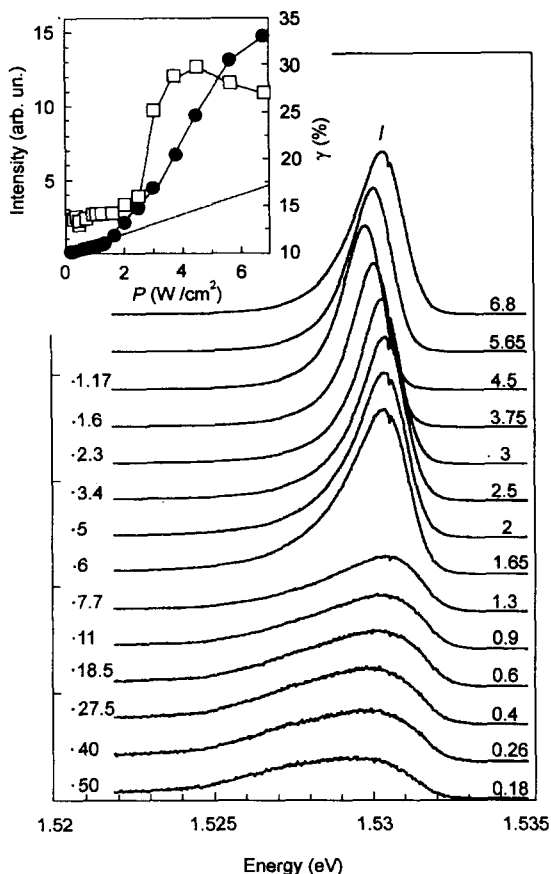


Рис.2. Спектры ФЛ МЭ (линия 1) при различных мощностях резонансного возбуждения прямого, $1sHH$, экситона циркулярно поляризованным светом (σ^+), приложенном смещении -1 V и $T = 2 \text{ K}$. Цифры, расположенные от спектров справа соответствуют накачкам в W/cm^2 , слева – масштабным множителям по отношению к двум верхним спектрам. На вставке представлены зависимости интенсивности линии МЭ (круглые символы, левая шкала) и ее степени циркулярной поляризации (квадратные символы, правая шкала) в функции плотности мощности. Пунктир – экстраполяция линейной зависимости интенсивности

Ширина и форма линии люминесценции МЭ существенно изменяется при увеличении мощности резонансного возбуждения прямых, $1sHH$, внутриямных экситонов циркулярно поляризованным светом (см. рис 2). Линия 1 сужается с ростом накачки вплоть до 1.5 meV , то есть более чем в три раза. Сужение линии сопровождается сильным сверхлинейным ростом ее интенсивности (см. вставку к рис.2). Только при больших накачках ($P > 6 \text{ W/cm}^2$) эта линия начинает сдвигаться в сторону больших энергий и несколько уширяться. Сдвиг линии в сторону больших энергий свидетельствует об экранировании приложенного электрического поля, когда плотность МЭ становится достаточно большой. Отсюда по величине сдвига можно оценить сверху плотность МЭ, когда ширина линии люминесценции становится минимальной. Эта оценка для концентрации дает $n = 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Мы наблюдали значительное сужение линии люминесценции МЭ при различных приложенных отрицательных напряжениях смещения от -0.5 V до -1.2 V . При больших отрицательных смещениях сужение линии люминесценции МЭ происходило при заметно меньших накачках.

3.3. Интересно ведет себя степень циркулярной поляризации, γ , линии МЭ при увеличении мощности резонансного возбуждения (см. вставку на рис.2). В наших экспериментах при резонансном возбуждении циркулярно поляризованным светом рождались прямые, $1sHH$, полностью спин-ориентированные экситоны ($J_h = +3/2$ и $S_z = -1/2$). В результате туннелирования носителей и связывания в МЭ, а также вследствие спин-решеточной релаксации и сильного для дырок спин-орбитального взаимодействия спиновая "память" МЭ частично теряется, но тем не менее остается высокой и составляет почти 15 – 20% при низкой плотности возбуждения. При увеличении мощности резонансного возбуждения, когда происходит сильное сужение линии люминесценции МЭ, степень циркулярной поляризации соответствующей линии возрастает более чем в два раза. Если предположить, что с ростом накачки скорость спиновой релаксации τ_s мало меняется (скорее всего она только возрастет), то увеличение степени циркулярной поляризации естественно связать с уменьшением времени жизни τ_d МЭ. Это следует из простого кинетического выражения, связывающего степень циркулярной поляризации с временами жизни и спиновой релаксации $\gamma = \tau_s / (1 + \tau_d / \tau_s)$ [16]. При резонансном возбуждении линейно поляризованным светом (поляризация параллельна плоскости слоев) было обнаружено пороговое увеличение с ростом накачки циркулярной поляризации узкой линии ФЛ МЭ. Когда же плотности возбуждения не велики и МЭ сильно локализованы на флуктуациях случайного потенциала, спектры ФЛ в таких условиях оставались полностью деполаризованными. Детали экспериментов с линейно поляризованным возбуждением будут опубликованы отдельно.

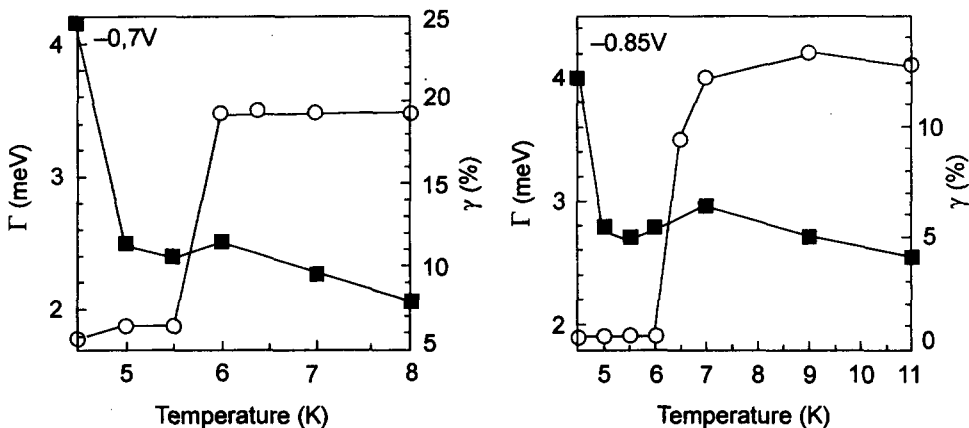


Рис.3. Температурные зависимости ширины линии люминесценции МЭ Γ (круглые символы, левая шкала) и ее степени циркулярной поляризации γ (квадратные символы, правая шкала) для электрических смещений -0.7 и -0.85 V

Итак, с ростом концентрации МЭ соответствующая линия ФЛ сужается, а степень ее поляризации увеличивается, что косвенно свидетельствует об укорочении времени излучательного распада. Это явление оказалось очень чувствительным к температуре. При увеличении температуры выше критических значений и фиксированной большой накачке ширина линии МЭ скачком возрастает, а степень циркулярной поляризации уменьшается до прежних значений (см. рис.3). Критическая температура, при которой происходили столь драматические спектральные изменения, в рассматриваемом случае составляла $T_c \leq 6$ K ($\Delta T = \pm 1$ K).

3.4. Нами исследована кинетика спектров ФЛ в условиях импульсного возбуждения с помощью пикосекундного лазера. При таком возбуждении в момент действия лазерного импульса горячие фотовозбужденные электроны и дырки рождаются в каждой из КЯ с равной плотностью и пространственно не разделены. На рис.4 представлена временная эволюция спектров при импульсном возбуждении, измеренных с различными задержками относительно возбуждающего лазерного импульса при $T = 5 \text{ K}$ и приложенном напряжении $U = -0.7 \text{ V}$. При нулевых задержках в спектрах видна только область прямой, внутриямной люминесценции. Спектр ФЛ МЭ формируется при задержках $\tau \geq 2 \text{ nsec}$. Эта задержка является следствием туннелирования носителей через барьер, сопровождающегося пространственным разделением носителей заряда между КЯ, их внутриямной релаксацией по энергии и, одновременно, рекомбинацией. На рис.4 видно, что при небольших задержках ($< 10 \text{ nsec}$) на фиолетовой границе спектров межъямной ФЛ доминирует достаточно узкая линия. С ростом задержки эта линия существенно сужается. Ее ширина достигает 1.5 meV при задержке 6 nsec , то есть уменьшается почти в три раза по сравнению с ее шириной при начальных задержках. Интенсивность этой линии затухает во времени гораздо быстрее, чем бесструктурный спектр межъямной люминесценции под ней. При задержках более 20 nsec эта линия уже не разрешается и сливается с бесструктурной частью спектра, который практически не меняет своей формы и наблюдается при задержках более 40 nsec . Такое поведение очень хорошо видно в кинетике интенсивностей, измеренной непосредственно в спектральной позиции узкой линии (см. вставку к рис.4). Существенно отметить, что узкая полоса, отличающаяся коротковременной кинетикой затухания интенсивности в условиях импульсного возбуждения, наблюдается, как и в случае стационарного возбуждения, только при достаточно низких температурах. Так, в случае задержек 12 nsec узкая линия при увеличении температуры начинает уширяться и сливается с бесструктурным фоном под ней при $T \geq 6 \text{ K}$. При меньших задержках, а значит, большей плотности МЭ, эта линия исчезает в спектре при заметно больших температурах. Например, при задержке 7 nsec узкая линия исчезает в спектрах при $T \geq 10 \text{ K}$. Такое же поведение время-разрешенных спектров и кинетики межъямной люминесценции наблюдается нами при различных приложенных напряжениях в интервале $-0.4 \text{ V} \div -0.9 \text{ V}$.

4. Всю совокупность представленных выше экспериментальных результатов не удастся объяснить в рамках простой одночастичной картины излучательной аннигиляции МЭ, локализованных на флуктуациях случайного потенциала. Так, если связать появление узкой линии в спектре ФЛ с межъямными делокализованными экситонами, которые появляются выше порога протекания, то остается совершенно непонятным, почему это явление столь критично к температуре и отсутствует при $T > T_c$. Неясным остается пороговое возрастание степени циркулярной поляризации и сверхлинейный рост интенсивности этой линии. Вместе с тем эти результаты могут быть по крайней мере качественно объяснены как следствие коллективного поведения делокализованных МЭ при достижении критической температуры и концентрации. Можно предполагать, что в исследованных структурах с узким АІАs барьером присутствуют крупномасштабные флуктуации потенциала, в частности, обусловленные вариациями ширины барьера. Такие флуктуации потенциала плохо экранируются, в отличие от случайного потенциала из-за остаточных заряженных примесей, который также присутствует в исследованных структурах. Благодаря крупномасштабным флуктуациям потенциального рельефа в плоскости КЯ фотовозбужденные МЭ могут накапливаться в макроскопически больших областях с лате-

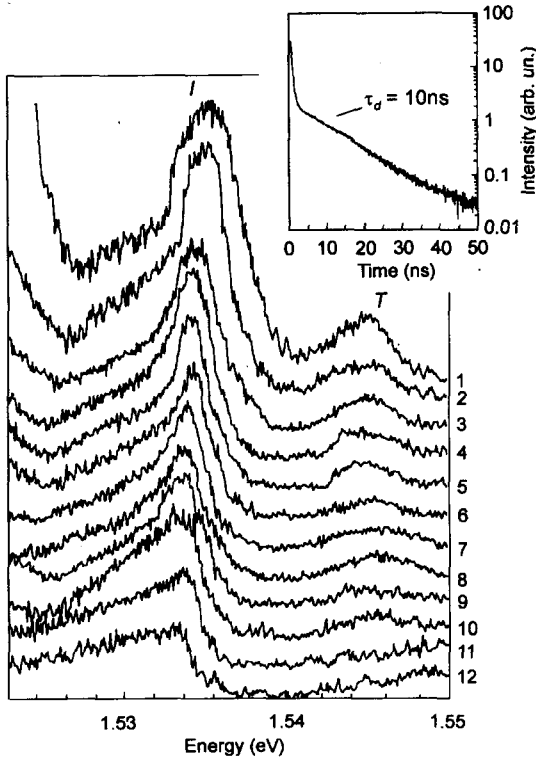


Рис.4. Временная эволюция спектров и кинетика затухания люминесценции МЭ (см. вставку) в условиях импульсного возбуждения при $T = 5$ К и смещении -0.7 В. Спектры 1-8 измерены с временными задержками 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10 nsec и интегрированием 2 nsec. Спектры 9-12 соответствуют задержкам 12, 16, 20, 25 nsec и интегрированиям 4, 4, 5 и 6 nsec, соответственно. Время затухания интенсивности узкой линии МЭ $\tau_d = 10$ nsec

ральным конфайнментом, вплоть до десятых долей микрон. Именно в этих областях и происходят основные события, связанные с фотовозбужденными МЭ. Эти события могут развиваться по независимым сценариям, но в основе каждого из них предполагается коллективное взаимодействие в системе МЭ, делокализованных в пределах макроскопически больших латеральных областей. В рамках одного из сценариев можно предположить, что МЭ при достижении критических плотностей и температуры конденсируются в металлическую $e-h$ жидкость с пространственно разделенными электрон-дырочными слоями. Если связать узкую линию в спектре с возникающей жидкой фазой, то по ширине линии, которая в таком случае должна равняться сумме фермиевских энергий электронов и дырок, легко оценить сверху ее плотность. Таким образом определенная плотность равна $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, а соответствующий этой плотности безразмерный параметр $r_s = 1/\sqrt{\pi n a_B^2} = 4$. Конденсированная фаза в рамках этого подхода оказывается слишком рыхлой, чтобы кулоновское взаимодействие в МЭ оказалось полностью заэкранированным, то есть экситоны при таких концентрациях должны сохранять свою индивидуальность, поэтому конденсированная фаза не может быть металлической. Это заключение подтверждают исследования спектров ФЛ в магнитном поле в геометрии Фарадея. Было установлено, что узкая линия, подобно свободному экситону, расщепляется на зеемановский дублет с соотношением интенсивностей σ^+/σ^- компонент, соответствующим температуре и величине спинового расщепления, то есть индивидуальные свойства экситона сохраняются в конденсированной фазе. Детали этих экспериментов будут изложены в отдельной публикации.

Мы предполагаем, что эффект сильного сужения линии ФЛ МЭ и критичность этого явления к плотности и температуре может быть связан с конденсацией МЭ в

диэлектрическую жидкость. В работе [14] показано, что достаточно плотная система МЭ при определенных величинах дипольного момента МЭ, может конденсироваться в диэлектрическую жидкость, несмотря на диполь-дипольное отталкивание между такими экситонами. В работе [11] указывается, что такая конденсация скорее всего может происходить в областях с латеральным конфайнментом. Согласно нашим экспериментам, при стационарном возбуждении конденсация происходит при $T < 6$ К и средней концентрации экситонов $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

Сконденсировавшаяся часть экситонов должна быть сфазирована в пределах когерентной длины. Пространственная когерентность должна возникать по меньшей мере на масштабах де-бройлевской длины волны МЭ, λ_{ex} , которая при $T = 2$ К составляет $\lambda_{ex} = h/\sqrt{\pi mkT} = 1.5 \cdot 10^3 \text{ \AA}$ и более чем на порядок превосходит боровский радиус экситона. В этих же условиях безразмерный параметр $r = n \times \lambda_{ex}^2 = 4$. На увеличение пространственной когерентности в конденсированной фазе косвенно указывает обнаруженное пороговое возрастание циркулярной поляризации МЭ. Далее, излучательный распад скоррелированных по фазе МЭ в конденсате должен отличаться заметно большими излучательными вероятностями по сравнению с ФЛ экситонов вне конденсата. Это заключение также согласуется с экспериментом.

Тем не менее, существенный вопрос в обосновании предположения о конденсации МЭ в диэлектрическую жидкую фазу, который остается открытым и требует экспериментального ответа, связан с установлением линейных масштабов пространственной когерентности. Эта задача может быть решена экспериментально, в частности, с помощью измерений корреляций интенсивности в условиях, когда предполагаемая экситонная конденсация происходит.

В заключение авторы благодарят В.Ф.Гантмахера, С.В.Иорданского, А.С.Иоселевича, В.Д.Кулаковского, Ю.Е.Лозовика, В.Г.Лысенко и Р.А.Суриса за интересные обсуждения. Работа частично поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 98-02-16656) и грантом межведомственной программы "Наноструктуры".

-
1. E.Yu.Loikov 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.Harbisson, 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, Proceedings of the 23 Intern. Conf. Phys. Semiconductors, p. 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. **B 67**, 895 (1991).
 11. Xuejun Zhu, P.B.Littlewood, M.S.Hybernsen, and T.Rice, Phys. Rev. Lett. **74**, 1633 (1995).
 12. J.Fernandes-Rossier and C. Tejedor, Phys. Rev. Lett. **78**, 4809 (1997).
 13. Lerwen Liu, L.Swierkowski, and D.Nelson, Physica **B249-251**, 594 (1998).
 14. Ю.Е.Лозовик, О.Л.Берман, ЖЭТФ **111**, 1879 (1997).
 15. V.B.Timofeev, A.V.Larionov, M.Grassi Alessi et al., Phys. Rev. **B60**, 8897 (1999).
 16. *Optical orientation, Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Eds. F.Meyer and B.P.Zhakharchenya, Elsevier, Amsterdam, 1984, vol.8.