

# Излучение конденсата экситонов в двойных квантовых ямах

© В.В. Криволапчук, А.Л. Жмодиков, Е.С. Москаленко

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: vlad.krivol@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 30 декабря 2004 г.  
В окончательной редакции 28 апреля 2005 г.)

При исследовании спектров фотолюминесценции пространственно-непрямых экситонов в связанных квантовых ямах было впервые обнаружено, что излучение имеет диаграмму направленности, зависящую от внешнего электрического поля и мощности возбуждения. Полученная в эксперименте корреляция между параметрами спектров излучения пространственно-непрямых экситонов — концентрацией (фазовым состоянием) системы таких экситонов, полушириной линии, степенью линейной поляризации и наличием диаграммы направленности — позволяет сделать предположение о когерентном характере спонтанной фотолюминесценции конденсированного состояния пространственно-непрямых экситонов.

Работа выполнена при частичной поддержке программы Президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“ и программы ООФА „Сильно коррелированные электроны“.

PACS: 71.35.Gg, 73.21.Fg

## 1. Введение

Изучение свойств двойных квантовых ям (ДКЯ) привлекает в настоящее время значительный интерес исследователей как с теоретической, так и с экспериментальной точки зрения. Этот интерес обусловлен существованием в ДКЯ пространственно-непрямых экситонов (IX), образованных из электрона ( $e$ ) и дырки ( $h$ ), локализованных в различных ДКЯ. Вследствие того что  $e$  и  $h$  в IX разделены в реальном пространстве, IX обладает большим излучательным временем жизни, чем прямой экситон (DX), образованный из  $e$  и  $h$  в одной и той же КЯ. Последнее обстоятельство позволяет на практике даже при малых плотностях оптической накачки получать газ IX достаточно большой плотности и как следствие ожидать проявления в эксперименте различных коллективных свойств в системе пространственно разделенных электронно-дырочных пар (экситонов) большой плотности. Эти свойства были предсказаны теоретически в работах [1–3]. Детальный теоретический анализ системы пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ, выполненный в работе [4], определил условия возникновения стабильной коллективной фазы IX. Следует ожидать, что экспериментальными параметрами, управляющими фазовым состоянием системы экситонов, являются плотность мощности фотовозбуждения  $I_p$  (определяющая плотность экситонов  $N$ ) и величина внешнего электрического поля  $V_{dc}$  (определяющего в конечном счете излучательное время жизни  $\tau_r$ ). Эти параметры в основном и влияют на эволюцию линии излучения IX. Поэтому характеристики линии излучения можно рассматривать в качестве индикатора фазового состояния системы экситонов. Так, в [5] наблюдалось значительное сужение линии излучательной рекомбинации IX в ДКЯ GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As при изменении внешнего электрического поля и тем-

пературы, что объяснялось образованием в системе IX новой упорядоченной коллективной фазы. В пользу существования такой фазы может свидетельствовать наблюдение аномально больших флуктуаций (во времени) интенсивности линии IX в системе ДКЯ GaAs/AlGaAs. Эти флуктуации наблюдались в [6] только в сильном магнитном поле, приложенном перпендикулярно плоскости ДКЯ, и были интерпретированы в рамках модели доменов конденсированного состояния, возникновение которых облегчалось в магнитном поле. В работе [7] на основании исследования эволюции линии излучения IX было экспериментально показано, что ее спектральная полуширина (FWHM) в зависимости от электрического поля и мощности возбуждения резко уменьшается и, кроме того, возникают аномально большие флуктуации интенсивности фотолюминесценции (PL) линии IX в области резкого изменения FWHM линии IX. Совокупность этих данных позволила сделать вывод о том, что в ДКЯ при  $T \leq 4.2$  К реализуется переход пространственно-непрямых экситонов в конденсированное состояние, а поведение полуширины линии отражает, по существу, фазовую энергетическую диаграмму состояния непрямых экситонов в ДКЯ.

Интересным коллективным свойством бозонов (экситонов), следующим из статистики Бозе-газа, является возможность возникновения в такой системе бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК). Конденсация происходит при условии, что де-бройлевская длина волны  $\lambda_D$  частицы, движущейся со средней (определяемой температурой системы) скоростью, приблизительно равна среднему расстоянию между частицами  $d$  ( $\lambda_D \approx d$ ). Длина волны  $\lambda_D$  зависит от массы частиц и температуры системы, а среднее расстояние между частицами определяется с помощью выражения  $d = (N)^{-1/D}$ , где  $D$  — размерность системы. Для экситонов массы

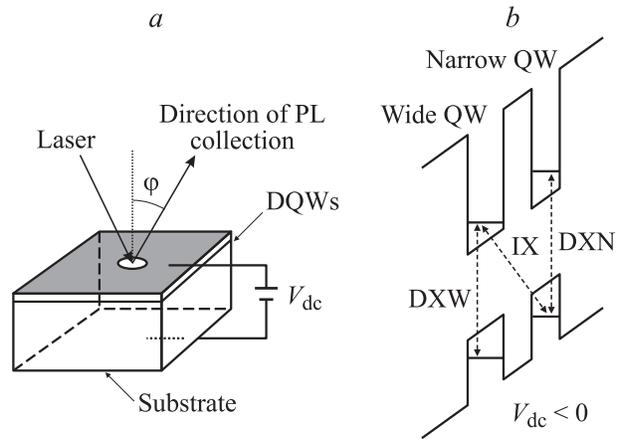
$m = 0.6m_0$  ( $m_0$  — эффективная масса электрона) возникновение БЭК возможно при температурах  $T < T_C$  ( $T_C$  — значение критической температуры), легко достижимых для  $\text{He}^4$ , и плотности выше некоторого (критического) значения  $n_C \geq 10^8 \text{ cm}^{-2}$ . Возникновение БЭК влечет за собой появление и эволюцию нетривиальных особенностей в спектрах излучения линии IX, таких как значительное сужение ( $\text{FWHM} < 0.15 \text{ meV}$ ), гигантское увеличение интенсивности (более 3 раз), появление долговременных (период порядка минуты) колебаний интенсивности этой линии [8], возникновение циркулярной и линейной поляризации линии излучения (IX) [9].

Следовательно, вся совокупность экспериментальных данных, описывающих эволюцию линии излучения IX в ДКЯ, может быть самосогласованным образом объяснена возникновением бозе-эйнштейновского конденсата. Однако для полноты картины необходимо обнаружение в излучении IX совокупности когерентных эффектов, обусловленных именно коллективным поведением экситонов при существовании БЭК [10]. Когерентность состояний порождает когерентность излучаемого этими состояниями света. Из анализа совокупности экспериментальных данных и параметров, характеризующих архитектуру структуры, следует, что возникновение когерентности вследствие реализации вынужденного излучения (лазерный эффект) мало вероятно. Поэтому в качестве альтернативы вынужденному излучению можно рассматривать спонтанное когерентное излучение (сверхизлучение).

Целью нашей работы является выяснение возможности режима сверхизлучения в люминесценции конденсированных пространственно-непрямых экситонов, а также обнаружение корреляции характера излучения с фазой конденсированного состояния экситонов. Для этого исследовались спектральные характеристики линии излучения IX в зависимости от внешнего электрического поля  $V_{dc}$ , плотности мощности возбуждающего света  $I_p$ , угла ( $\varphi$ ) между осью роста структуры (перпендикулярной плоскости образца) и оптической осью спектрометра (направлением регистрации PL).

## 2. Образцы и методика эксперимента

Исследованные образцы были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии при  $T = 630^\circ\text{C}$  на подложке GaAs (001) толщиной 0.4 mm. Последовательно выращены тонкий ( $1 \mu\text{m}$ ) буферный слой GaAs и три пары несколько асимметричных КЯ (КЯ/барьер  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ /КЯ) с толщинами в nm: 20.07/3.82/19.5, 10.18/3.82/9.61 и 8.20/3.82/7.63, а также защитный слой GaAs (5 nm) на лицевой границе образца. ДКЯ отделены друг от друга и от буферного слоя барьерами  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  толщиной 20 nm. Исследования проводи-



**Рис. 1.** *a)* Схема эксперимента. *b)* Схема зонной структуры образца в „непрямом“ режиме. DXW (DXN) и IX обозначают линии PL прямого экситона в широкой (узкой) КЯ и непрямого экситона соответственно.

лись на ДКЯ 10.18/3.82/9.61. Постоянное электрическое напряжение  $V_{dc}$  прикладывалось к двум индиевым контактам, нанесенным на подложку и лицевую сторону образца с ДКЯ (рис. 1, *a*). Возбуждение и регистрация PL осуществлялись через небольшое отверстие ( $0.2 \times 0.2 \text{ mm}$ ) в контакте со стороны ДКЯ (рис. 1, *a*). Образец освещался излучением непрерывного  $\text{Ti} : \text{Sp}$ -лазера (интенсивность  $< 10 \text{ mW}$ , диаметр сфокусированного лазерного пятна на образце составлял  $100\text{--}200 \mu\text{m}$ ). Возбуждение осуществлялось либо резонансно с экситоном в узкой яме ( $h\nu_{ex} = 1.557 \text{ eV}$ ), либо выше по энергии. При этом величина  $h\nu_{ex}$  возбуждающего света всегда соответствовала подбарьерному возбуждению ДКЯ. Образец помещался в стеклянный гелиевый криостат (обеспечивающий температуру образца  $T = 1.8 \text{ K}$ ) так, чтобы его поверхности с доступной точностью лежала в вертикальной плоскости при фиксированной ориентации кристаллографических осей. Криостат поворачивался вокруг вертикальной оси в диапазоне углов  $0\text{--}35^\circ$  с точностью  $30'$ . Это обеспечивало изменение как угла падения возбуждающего лазерного луча, так и угла регистрации люминесценции ( $\varphi$ ). С целью корректного измерения угловой зависимости позиционирование лазерного пятна на образце и его размер контролировались с помощью телевизионной системы в реальном масштабе времени. Линейная поляризация света лазера устанавливалась таким образом, чтобы вектор электрического поля был горизонтальным ( $p$ -компонента). Спектры люминесценции ДКЯ регистрировались при помощи двойного дифракционного спектрометра ДФС-52 в режиме счета фотонов. За последним объективом регистрирующей системы располагался анализатор (линейный поляризатор), а для компенсации фоновой поляризации системы перед входной щелью спектрометра помещался деполяризующий клин.

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 2 представлены спектры люминесценции ДКЯ в зависимости от значений  $V_{dc}$  (указанных на рисунке), зарегистрированные при  $T = 1.8\text{ K}$  и плотности мощности оптического возбуждения  $5\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ . При  $V_{dc} = 0$  в системе ДКЯ реализуется „прямой“ режим, соответствующий плоским зонам, что позволяет зарегистрировать в спектре PL линии излучения прямых экситонов (каждый из которых находится в одной из КЯ) из широкой (DXW) и узкой (DXN) КЯ. При значении  $V_{dc}$ , отличном от нуля, реализуется „непрямой“ режим (рис. 1, b), при котором линия IX занимает самое нижнее энергетическое положение в спектрах PL и монотонно смещается в сторону низких энергий при увеличении  $V_{dc}$  (рис. 2), в то время как линии DXW и DXN не изменяют своего спектрального положения. Следует отметить, что все спектры PL, представленные на рис. 2 (за исключением верхнего спектра), получены при величине  $h\nu_{ex}$ , резонансной с энергетическим положением линии DXN,

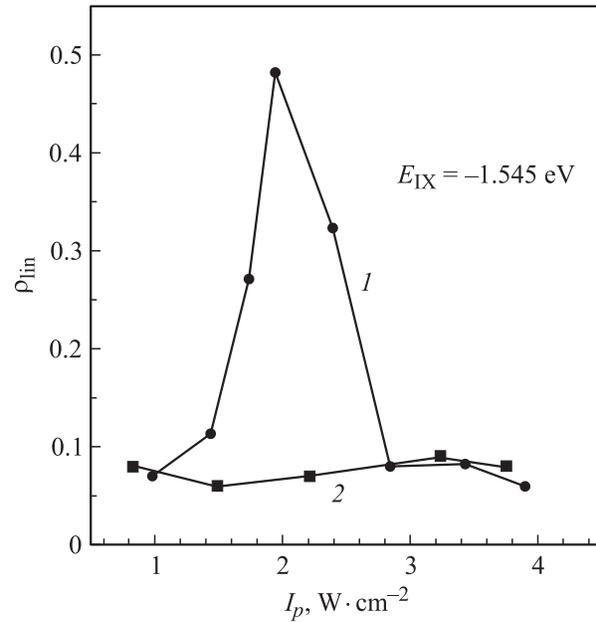


Рис. 3. Зависимости  $\rho_{lin}$  от  $I_p$ , измеренные при  $T = 1.8\text{ K}$ ,  $E_{IX} = 1.545\text{ eV}$  и значениях угла  $\varphi = 13.5$  (1) и  $10^\circ$  (2).

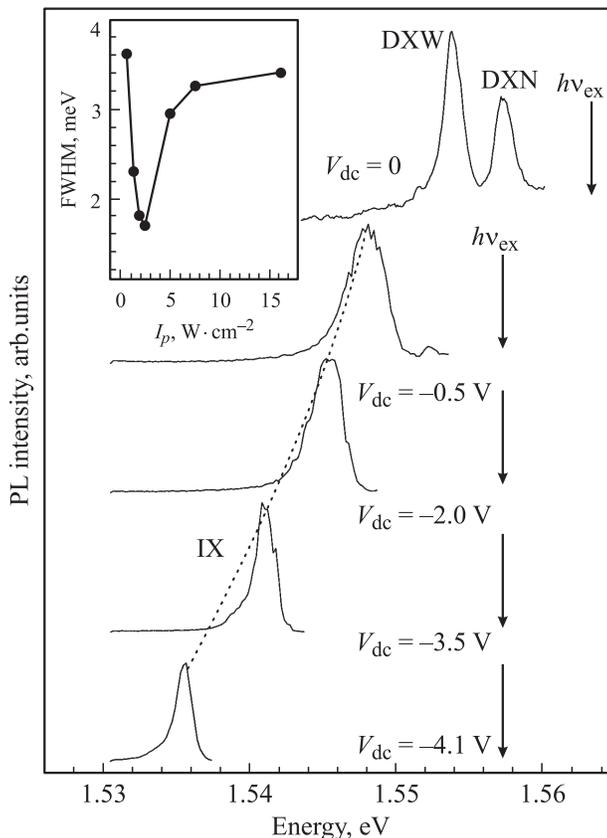


Рис. 2. Спектры PL, измеренные при  $T = 1.8\text{ K}$ ,  $I_p = 5\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,  $\varphi = 13.5^\circ$  и различных значениях  $V_{dc}$ , указанных у соответствующего спектра. Для ясности спектры PL вертикально смещены. Вертикальные стрелки указывают значение  $h\nu_{ex}$ , использованное для фотовозбуждения. На вставке — зависимость FWHM линии IX от  $I_p$ , измеренная при  $T = 1.8\text{ K}$ ,  $\varphi = 13.5^\circ$  и  $V_{dc} = -2\text{ V}$  ( $E_{IX} = 1.545\text{ eV}$ ).

при которой обсуждаемая далее угловая зависимость особенностей PL наиболее ярко выражена.

При исследовании фотолюминесценции ДКЯ было обнаружено, что спектры излучения линейно поляризованы, причем степень линейной поляризации  $\rho_{lin} = (I_{PL}^p - I_{PL}^s)/(I_{PL}^p + I_{PL}^s)$  (где  $I_{PL}^p$  и  $I_{PL}^s$  — интенсивности PL) зависит от угла  $\varphi$ . Спектры регистрировались при положении анализатора параллельно и перпендикулярно направлению линейной поляризации возбуждающего света. При анализе угловой зависимости следует иметь в виду особенность излучающей системы пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ. Она заключается в том, что экситоны состоят из пространственно разделенных электронов и дырок. Вследствие этого подсистема IX-экситонов обладает отличным от нуля макроскопическим электрическим дипольным моментом  $\mathbf{P} = e\mathbf{D}$ , где  $|\mathbf{D}|$  — расстояние между электронами и дырками в разных слоях. В этом случае возбуждение эффективно только при максимальной величине проекции вектора электрического поля возбуждающего света на ось диполя. В наших экспериментах ориентация вектора  $\mathbf{E}$  задавалась поляризатором в канале возбуждения. При повороте образца на угол  $\varphi$  проекция  $\mathbf{E}$  ( $E_s$ ) изменялась и тем самым изменялась эффективность возбуждения и регистрации PL. Однако простая оценка показывает, что в диапазоне углов  $\Delta\varphi$  эти изменения (обусловленные изменением величины  $E_s$ ) невелики и поэтому не могут быть причиной зависимости спектров излучения от угла  $\varphi$ . На рис. 3 представлены зависимости  $\rho_{lin}$  от  $I_p$  для двух фиксированных значений углов:  $\varphi = 13.5$  и  $10^\circ$ . Эти зависимости зарегистрированы в

случае, когда максимум линии IX имеет спектральное положение  $E_{IX} = 1.545$  eV. Таким образом, излучение пространственно-непрямых экситонов (рис. 3) имеет диаграмму направленности с весьма малой угловой шириной  $\Delta\varphi \approx 1.5-2.5^\circ$ .

Анализ большого числа серий спектров излучения показал, что возникновение  $\rho_{lin}$  у линии излучения IX наблюдается только в узком интервале плотностей мощности оптической накачки  $\Delta I_p \approx 1.5-2.5$  W · cm<sup>-2</sup> (рис. 3). Как при меньших, так и при больших  $I_p$  зависимости  $\rho_{lin}$  от угла в излучении IX не наблюдается. В нашей предыдущей работе [7] было показано, что существует область значений  $n_C$  (определяющихся значениями  $I_p$ ), в которой реализуется коллективное поведение пространственно-непрямых экситонов. В частности, была показана прямая связь между шириной спектральной линии IX и возникновением в системе газа IX новой коллективной фазы [7]. Зависимость FWHM от  $I_p$ , зарегистрированная при  $E_{IX} = 1.545$  eV, приведена на вставке к рис. 2. При этом важным обстоятельством является то, что минимальная величина FWHM  $\approx 1.6$  meV, отражающая возникновение конденсированного состояния [7], наблюдается при  $I_p = 2.5$  W · cm<sup>-2</sup> (вставка на рис. 2). Это хорошо согласуется с величиной  $I_p \approx 2$  W · cm<sup>-2</sup>, при которой наблюдается максимальное значение  $\rho_{lin}$  (рис. 3). Из полученных экспериментальных данных следует, что наблюдаемая эволюция линейной поляризации  $\rho_{lin}$  зависит не только от  $\varphi$ , но от величины  $I_p$ . Важно отметить, что ни в одном из исследованных диапазонов углов ( $0 < \varphi < 11.5^\circ$  и  $15.0 < \varphi < 35.0^\circ$ ) не наблюдалось заметного значения величины  $\rho_{lin}$  ни при каких значениях  $I_p$ .

Таким образом, полученная экспериментально корреляция между параметрами спектров излучения пространственно-непрямых экситонов — степенью линейной поляризации, полушириной линии, наличием диаграммы направленности и концентрацией (фазовым состоянием) системы IX — позволяет сделать предположение о том, что характерные особенности фотолюминесценции ДКЯ связаны с коллективным поведением пространственно-непрямых экситонов, состояния которых когерентны. Вследствие этого возможно возникновение спонтанного когерентного излучения коллектива пространственно-непрямых экситонов.

Спонтанное когерентное излучение может возникнуть в результате эффекта Дике, на возможность которого (для атомов) впервые указывалось в [11]. В случае конденсированного состояния экситонов возможность реализации эффекта сверхизлучения отмечалась в работах [12,13]. Спонтанное когерентное излучение появляется в результате синхронизации излучающих диполей вследствие установления корреляций между состояниями, возникающими в процессе излучения. Такая ситуация возможна при условии, что время установления корреляций  $\tau_c$  меньше времени релаксации дипольного момента  $\tau_d$  и времени спонтанного излучательного распада  $\tau_r$  ( $\tau_c < \tau_d < \tau_r$ ). Поскольку  $\tau_r$  характеризуется

величиной  $\approx 10^{-8}$  s, приведенное соотношение времен  $\tau_c, \tau_d, \tau_r$  накладывает существенные ограничения на экспериментальные возможности наблюдения сверхизлучения ( $\tau_d$  мало, и корреляция может не установиться). Из существования БЭК следует, что верхний уровень представляет собой состояние экситонов с большой длиной когерентности ( $\lambda_D \sim L_c \approx 150$  nm). Данный факт и обусловленное этим существование отличного от нуля макроскопического дипольного момента  $\mathbf{P} = e\mathbf{D}$  означают смягчение неравенства  $\tau_c < \tau_d < \tau_r$ . Из этого следует, что дипольные моменты изначально являются коррелированными. Поэтому, учитывая малое значение величины неоднородного уширения (FWHM = 0.13–0.2 meV), можно ожидать увеличения вероятности реализации режима сверхизлучения.

Для оценки возможности возникновения сверхизлучения будем считать, что область, в которой находятся излучатели, представляет собой цилиндр с площадью основания  $S$  (пятно возбуждения) и длиной  $L$ . Длина волны ( $\lambda$ ) излучения в вакууме равняется 804.4 nm, а линейный размер флуктуации, в которой реализуется БЭК экситонов, следует ожидать более 100 nm. Плотность фотовозбужденных экситонов  $N$  при используемых мощностях накачки приблизительно равна  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup>. В этом случае удовлетворяются следующие условия:  $S > (\lambda/2\pi)^2$  и  $L < S/\lambda$ . Для оценки величины обратного времени сверхизлучения  $1/\tau_N$  воспользуемся выражением  $\tau_N^{-1} = \gamma N \lambda^2 L$  [14], где  $\gamma$  — обратное время перехода ( $\gamma \sim \tau_r^{-1}$ ) для одного экситона, которое по порядку величины составляет  $\approx 10^8$  s<sup>-1</sup>. После подстановки в формулу для  $\tau_N^{-1}$  всех численных значений и проведения необходимых преобразований мы нашли, что полуширина линии в случае сверхизлучения может находиться (в зависимости от конкретных условий) в пределах 0.2–3 meV, что и наблюдается в эксперименте. Следует отметить, что особенности сверхизлучения связаны с конечными размерами и формой области, в которой расположены источники. В нашем случае возбужденные состояния находятся в тонком слое, образованном ДКЯ ( $L_x \approx L_y \gg L_z$ , где  $L_x, L_y$  и  $L_z$  обозначают размеры фотовозбужденной области в плоскости  $xu$  и в направлении роста структуры соответственно). Похожая ситуация для соотношения размеров излучающей области ( $L_x \approx L_y \gg L_z$ ) рассмотрена в теоретических работах [15,16], в которых показано, что при наличии режима сверхизлучения возникает стохастическая дифракционная структура, которая характеризуется узкой диаграммой направленности и большой величиной линейной поляризации. Последнее обстоятельство наряду с экспериментальными данными позволяет полагать, что связанная с большой величиной линейной поляризации узкая диаграмма направленности обусловлена существованием режима сверхизлучения в люминесценции коллектива экситонов в ДКЯ.

## 4. Заключение

Таким образом, полученная экспериментально корреляция между параметрами спектров излучения пространственно-непрямых экситонов — концентрацией (фазовым состоянием) системы IX, полушириной линии, степенью линейной поляризации и наличием диаграммы направленности — позволяют сделать предположение о когерентном характере спонтанной PL конденсированного состояния пространственно-непрямых экситонов. При этом следует отметить, что приведенные выше экспериментальные результаты и качественные оценки показывают только принципиальную возможность реализации режима сверхизлучения пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ при возникновении БЭК, поэтому для решения указанной задачи, безусловно, требуются дальнейшие исследования.

Авторы выражают благодарность Е.Д. Трифонову за плодотворное обсуждение.

## Список литературы

- [1] Ю.Е. Лозовик, В.И. Юдсон. *ЖЭТФ* **71**, 738 (1976).
- [2] И.В. Лернер, Ю.Е. Лозовик. *ЖЭТФ* **80**, 1488 (1981).
- [3] D. Yoshioka, A.H. MacDonald. *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 4211 (1990).
- [4] Ю.Е. Лозовик, О.Л. Берман. *ЖЭТФ* **111**, 1879 (1997).
- [5] T. Fukuzawa, E.E. Mendez, J.M. Hong. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 3066 (1990).
- [6] L.V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter, G. Bohm, G. Weimann. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 304 (1994).
- [7] V.V. Krivolapchuk, E.S. Moskalenko, A.L. Zhmodikov, T.S. Cheng, C.T. Foxon. *Solid State Commun.* **111**, 49 (1999).
- [8] V.V. Krivolapchuk, E.S. Moskalenko, A.L. Zhmodikov. *Nanotechnology* **11**, 246 (2000); *Phys. Rev. B* **64**, 045 313 (2001).
- [9] А.В. Ларионов, В.Б. Тимофеев, И. Хвам, К. Соерсенсен. *ЖЭТФ* **117**, 1255 (2000).
- [10] J. Fernandez-Rossier, C. Tejedor, R. Merlin. *Solid State Commun.* **108**, 473 (1998).
- [11] R.H. Dicke. *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- [12] С.А. Москаленко. Бозе-эйнштейновская конденсация экситонов и биекситонов. Редакц.-издат. отд. АН МССР, Кишинев (1970).
- [13] T. Fukuzawa, S.S. Kano. *Surf. Sci.* **288**, 482 (1990).
- [14] Л. Аллен, Дж. Эберли. Оптический резонанс и двухуровневые атомы. Мир, М. (1978). С. 155–194.
- [15] Ю.А. Аветисян, А.И. Зайцев, В.А. Малышев, Е.Д. Трифонов. *ЖЭТФ* **95**, 1541 (1989).
- [16] Ю.А. Аветисян, Е.Д. Трифонов. *Опт. и спектр.* **86**, 842 (1999).