Письма в ЖЭТФ, том 92, вып. 9, с. 659 – 664 © 2010 г. 10 ноября

Бозе-конденсация экситонных поляритонов в высокодобротных планарных микрорезонаторах с GaAs квантовыми ямами

В. Д. Кулаковский[1)], *А. В. Ларионов*, *С. И. Новиков*, *С. Хефлинг*[+], *К. Шнайдер*[+], *А. Форхел*[+]

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

[+]*Университет Вюрцбурга, Вюрцбург, Германия*

Поступила в редакцию 22 сентября 2010 г.

Исследована конденсация экситонных поляритонов в планарных микрорезонаторах (МР) с GaAs/AlAs квантовыми ямами в активной области. Найдено, что увеличение времени жизни поляритонов до $\sim 10 \div 15$ пс при повышении добротности МР Q выше 7000 позволяет реализовать бозе-конденсацию поляритонов с доминирующей ($> 90\%$) долей фотонной компоненты. Конденсация происходит в термодинамически неравновесных условиях в латеральных ловушках с диаметром ~ 10 мкм, образующихся благодаря крупномасштабным флуктуациям потенциала поляритонов. Фиолетовый сдвиг линии излучения поляритонов на пороге конденсации существенно превосходит величину энергии отталкивательного взаимодействия поляритонов в конденсате. Показано, что основной причиной сдвига является уменьшение силы осциллятора светлых экситонов в латеральных ловушках, вызванное локализацией в них фотовозбужденных долгоживущих темных экситонов.

Исследования бозе-эйнштейновской конденсации в полупроводниковых гетероструктурах в последние годы привлекают особое внимание. Рассматриваются разные системы – от экситонных состояний в связанных квантовых ямах (КЯ) [1, 2] до электронных холловских бислоев [3]. Одной из активно исследуемых систем является система экситонных поляритонов в полупроводниковых микрорезонаторах (МР) с КЯ в активной области резонатора [4 – 7]. Экситонные поляритоны (P) являются композитными бозонами, состоящими частично из экситонов (X) и частично из фотонов (C). Доля фотона и экситона в поляритоне определяется коэффициентами Хопфилда $|C_X|^2$ и $|C_C|^2$ [8]. Соотношение долей экситона и фотона контролируется путем выбора величины расстройки энергий фотонной и экситонной мод, $\delta_C = E_C - E_X$ [9,10].

Благодаря наличию фотонной компоненты экситонные поляритоны имеют очень малую эффективную массу, вследствие чего критическая температура бозе-конденсации поляритонов может достигать комнатных температур в полупроводниках с достаточно большой энергией связи экситонов [7]. Квазидвумерная природа экситонных поляритонов наряду с дуальным экситон-фотонным характером позволяет проводить детальные исследования закона дисперсии возбуждений конденсата и распределения этих возбуждений по импульсам и энергии.

Одним из основных свидетельств бозе-конденсации является макрозаполнение нижайшего состояния на дне разрешенной зоны (с квазиимпульсом $k = 0$). К настоящему времени это явление наблюдалось в целом ряде работ в МР с добротностью $Q \sim 1000{-}4000$ [5 – 7, 14 – 20, 22]. Ввиду короткого времени жизни поляритонов (τ_{LP}) по сравнению со временем их рассеяния на акустических фононах ($\tau_{ph} \sim 1.5$ пс), энергетическая релаксация фотовозбужденных поляритонов с испусканием фононов оказывается крайне неэффективной [11 – 13]. Макрозаполнение состояний с $k \sim 0$ достигается за счет включения поляритон-поляритонного рассеяния, эффективность которого растет с увеличением плотности поляритонов n_{LP}.

Наиболее низкое пороговое значение плотности возбуждения P_{thr}, при которой реализуется макрозаполнение состояния, в $k \sim 0$, наблюдается при резонансном фотовозбуждении нижней поляритонной (НП) ветви вблизи точки перегиба ее дисперсионной кривой ($k \sim k_{infl}$) [14 – 17, 21]. Макрозаполнение состояния с $k \sim 0$ при этом обеспечивается в результате параметрического стимулированного поляритон-поляритонного рассеяния в накачиваемой моде, в результате которого возникают две ярко выраженные макрозаполненные моды при $k \sim 0$ и $2k_p$, где k_p – планарный волновой вектор фотовозбуждения. Этот механизм весьма эффективен при $k_p \sim k_{infl}$ благодаря одновременному выполнению законов сохранения энергии и импульса в акте поляритон-поляритонного рассеяния в накачиваемой моде. Хотя реальная ста-

[1)]e-mail: kulakovs@issp.ac.ru

бильность образующейся структуры с тремя коденсатными модами при $k = 0$, k_p и $2k_p$ устанавливается благодаря наличию в системе большого числа относительно слабо заполненных мод, для ее описания наиболее подходит модель оптического параметрического осциллятора [22].

Для достижения конденсации поляритонов при нерезонансном возбуждении требуются намного большие плотности возбуждения, при которых в фотовозбужденной системе достигается частота поляритон-поляритонных столкновений $\nu_{LP-LP} \sim n_{LP}$, сравнимая или больше τ_{LP}^{-1} вблизи дна НП ветви. В исследованных МР с $Q = 1000 \div 3000$ критическая плотность фотовозбуждения P_{thr} для реализации макрозаполненного состояния быстро растет с увеличением глубины НП зоны. В силу ограничения предельной плотности поляритонов из-за их ионизационного разрушения, конденсация поляритонов при нерезонансном возбуждении достигается лишь в относительно мелких НП зонах, когда доля фотона в поляритоне не превышает 50-60% [5 – 7, 18 – 20, 22, 23].

В настоящей работе исследована конденсация НП в МР с GaAs/AlAs КЯ в активной области резонатора с $Q \sim 7000$, обеспечивающей время жизни фотонов $\tau_C \sim 5$ пс. Благодаря увеличенному времени τ_C эффект узкого бутылочного горла в релаксации поляритонов оказывается сильно подавленным, а порог конденсации поляритонов при нерезонансном фотовозбуждении слабо зависит от величины расстройки фотонной и экситонной мод в широком пределе $\delta_C = E_C - E_X$ от $+2$ до -25 мэВ, в котором доля экситонной составляющей в НП уменьшается от 52 до 4%. Конденсация поляритонов происходит в латеральных ловушках с диаметром ~ 10 мкм, образующихся из-за наличия крупномасштабных флуктуаций потенциала поляритонов. При этом в газе НП с $|C_C|^2 \sim 0.9$ ширина линии излучения конденсата на полувысоте не превышает 0.12 мэВ.

Для проведения исследований использовалась МР структура, состоящая из двух брэгговских зеркал с 32(36) повторяющимися слоями $\lambda/4$ $Al_{0.13}Ga_{0.87}As/AlAs$ в переднем (заднем) зеркалах и активного слоя толщиной $\lambda/2$ между ними. Активный слой состоял из 4 GaAs/AlAs КЯ толщиной 7 нм, встроенных в пучности электромагнитного поля. Раби-расщепление взаимодействующих экситонной и фотонной мод составляло 10 мэВ.

Образец был расположен в оптическом криостате в парах гелия. Температура регулировалась в области $6 \div 20$ К. Нерезонансное возбуждение осуществлялось лазерными импульсами с длиной волны 532 нм, длительностью ~ 10 нс и частотой повторения 3 кГц. Возбуждение образца осуществлялось под углом 20° к нормали МР. Луч лазера фокусировался на образец в пятно размером $50 \div 100$ мкм. Распределение возбужденных поляритонов в k-пространстве определялось из измерений угловой зависимости излучения поляритонов: $k = (\omega/c)\sin(\phi)$ вследствие закона сохранения планарного волнового вектора. Угловое разрешение в эксперименте – 1°. Излучение МР анализировалось с помощью монохроматора RAMANOR U-1000 и регистрировалось ПЗС камерой.

На рис.1a показаны спектры излучения НП из области МР с $\delta_C = -11$ мэВ при $T_{\text{bath}} = 6.5$ К, записанные по нормали к плоскости МР при изменении плотности фотовозбуждения P от 40 до 110 кВт/см^2. Зависимости интегральной интенсивности излучения $I_{LP}(k = 0)$, а также спектрального положения и полуширины линии излучения от P показаны на рис.1b и 1c, соответственно. На рис.1 видно, что при $P > P_{thr} \sim 55$ кВт/см^2 линия излучения резко сужается, сдвигается в область больших энергий, а ее интенсивность возрастает пороговым образом. При дальнейшем увеличении P наблюдается медленное увеличение энергии перехода и плавное увеличение полуширины линии излучения.

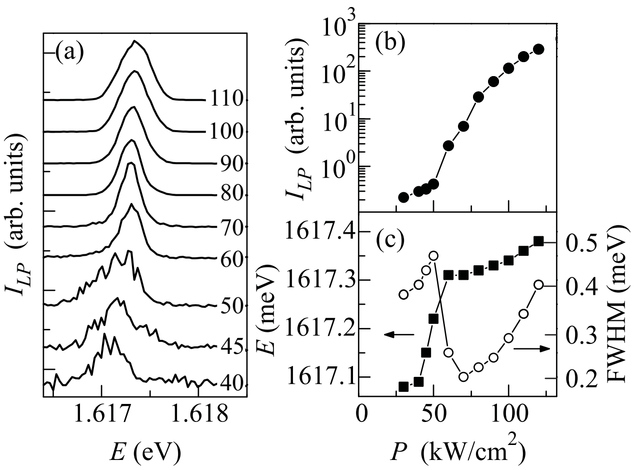

Рис.1. (a) Спектры излучения НП из области МР с $\delta_C = -11$ мэВ при $T_{\text{bath}} = 6.5$ К, записанные по нормали к плоскости МР с угловым разрешением 1° при P от 40 до 110 кВт/см^2, как показано цифрами около каждой кривой; (b) Зависимость интегральной интенсивности излучения $I_{LP}(k = 0)$ от P; (c) Зависимости спектрального положения (квадратные символы) и полуширины линии излучения (круглые символы) НП от P

При $P > 55$ кВт/см^2 качественно изменяется и угловое распределение интенсивности излучения, которое отражает распределение НП по квазиимпульсам. Изменение углового распределения излучения поляритонов показано на рис.2. На рис.2a видно, что при $P = 40\,\text{кВт/см}^2 < P_{thr}$ линия излучения поляри-

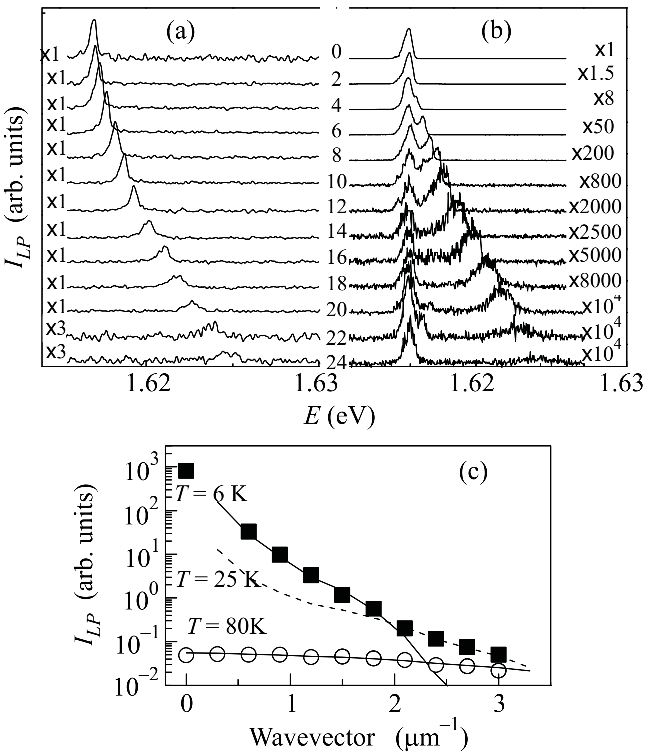

Рис.2. Угловое распределение излучения поляритонов при $P = 40\,\text{кВт/см}^2 < P_{thr}$ (a) и $P = 140\,\text{кВт/см}^2 > P_{thr}$ (b), $T_{\text{bath}} = 6.5\,\text{K}$. (c) аппроксимация измеренных угловых зависимостей интенсивности излучения поляритонов при $P = 40\,\text{кВт/см}^2$ (кружки) с использованием больцмановской функции распределения с T_{LP}=80 К (сплошная кривая) и при $P = 140\,\text{кВт/см}^2$ (квадраты) с использованием бозевской функции распределения с $\mu_{LP} = 0$, T_{LP}=6 К (сплошная кривая) и T_{LP}=25 К (пунктир)

тонов монотонно сдвигается в сторону больших энергий с увеличением $k \sim \sin\phi$, при этом ее полуширина и интенсивность почти не изменяются вплоть до $\phi \sim 10^\circ$ ($k \sim 1.45\,\text{мкм}^{-1}$). Интенсивность линии излучения $I_{LP}(k)$ начинает заметно уменьшаться лишь при $k \sim 2\,\text{мкм}^{-1}$, когда кинетическая энергия поляритонов превышает 4 мэВ.

При $P = 140\,\text{кВт/см}^2$ (рис.2b) $I_{LP}(k = 0)$ почти на 4 порядка больше, чем при $P = 40\,\text{кВт/см}^2$. На рис.2b видно, что при $P = 140\,\text{кВт/см}^2$ сигнал от поляритонной моды с $k = 0$ наблюдается также в спектрах, записанных при $k \neq 0$. Хотя этот сигнал монотонно и быстро уменьшается с ростом $|k|$, он продолжает доминировать в спектрах вплоть до $k \sim 3.5\,\text{мкм}^{-1}$. Излучение поляритонов с $k \neq 0$ спектрально разрешается на его фоне лишь при $\phi \gtrsim 4^\circ$ ($k \sim 0.6\,\text{мкм}^{-1}$). При этом $I_{LP}(k = 0.6\ \text{мкм}^{-1})$ примерно в 600 раз больше, чем при $40\,\text{кВт/см}^2$. С ростом k интенсивность $I_{LP}(k)$ при $P = 140\,\text{кВт/см}^2$ резко падает, так что при $k > 2\,\text{мкм}^{-1}$ она оказывается близкой к величине $I_{LP}(k)$, измеренной при $P = 40\,\text{кВт/см}^2$.

Пороговое возрастание $I_{LP}(k = 0)$ с одновременным резким уменьшением полуширины линии излучения свидетельствует о конденсации НП в состояние с $k = 0$. Такая конденсация НП в исследуемой МР наблюдается вплоть до $\delta_C \sim -25$ мэВ, в то время как в МР с $Q \lesssim 4000$ конденсация наблюдалась лишь при $\delta_C > 0$ [5–7, 18–20, 22].

На рис.3 показаны спектры излучения НП из областей МР с величиной δ_C от -4 до -22 мэВ, записанные при $P \sim 0.5P_{thr}$, $\sim P_{thr}$ и $\sim 2P_{thr}$. Зависимость P_{thr} от спектрального положения линии излучения конденсата показана на вставке к рис.3. На вставке видно, что P_{thr} слабо зависит от глубины НП ветви в области энергий 1605–1625 мэВ, в которой δ_C изменяется от -22 до -4 мэВ, а доля экситонной моды в НП уменьшается от 50 до 4%. Таким образом, увеличение Q выше 7000 оказывается достаточным для обеспечения в GaAs МР эффективной энергетической релаксации и последующей конденсации НП с доминирующей фотонной компонентой. Более того, величина P_{thr} при малых отрицательных δ_C оказывается меньше, чем при положительных, благодаря меньшей величине эффективной массы НП.

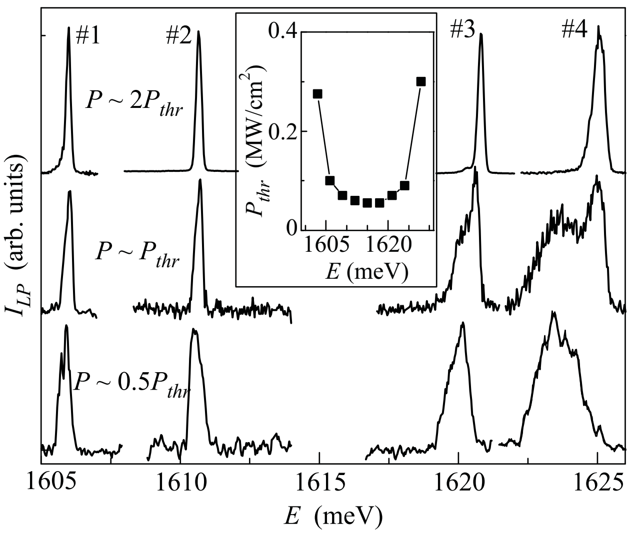

Рис.3. Спектры излучения НП из разных областей МР с величиной δ_C от -4 до -22 мэВ при $T_{\text{bath}} = 6.5\,\text{K}$, записанные при $P \sim 0.5P_{thr}$, $\sim P_{thr}$ и $\sim 2P_{thr}$. На вставке показана зависимость P_{thr} от спектрального положения линии излучения конденсата

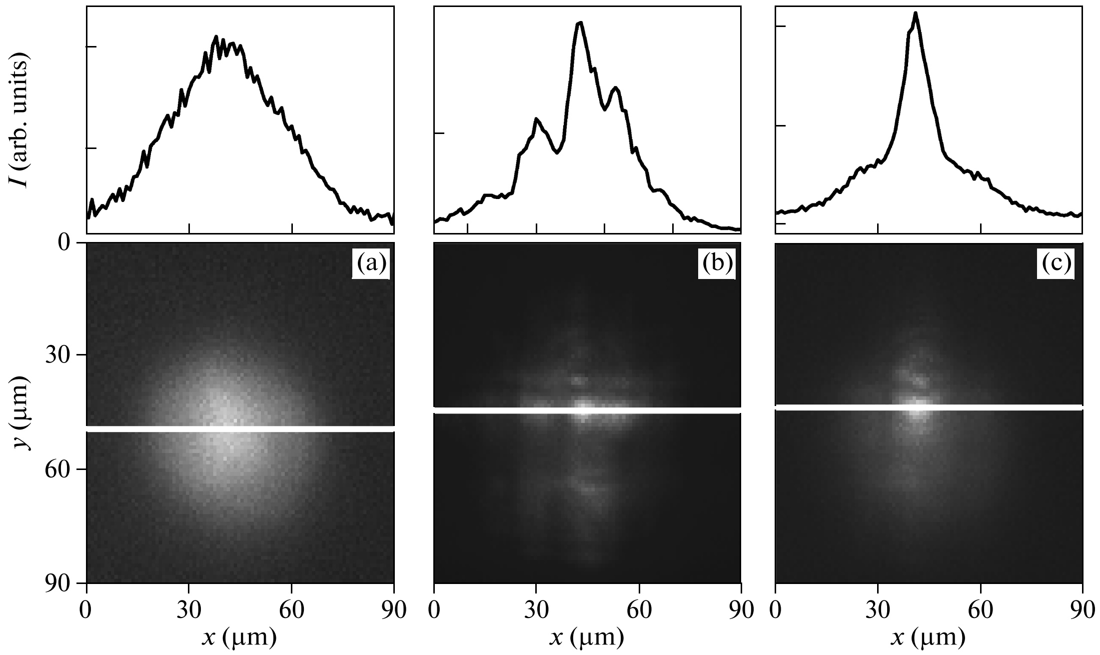

Рис.4. Пространственное распределение излучения НП (нижняя часть рисунка) при (a) $P = 40$ кВт/см^2 $< P_{thr}$; (b) $P = 50$ кВт/см^2 $> P_{thr}$ и (c) $P = 100$ кВт/см^2 $> P_{thr}$. В верхней части рисунка представлено распределение излучения НП по координате x при фиксированном значении y, соответствующем максимуму интенсивности излучения (отмечено белой полосой на нижней части рисунка)

На рис.3 видно, что при всех P ширина линии излучения растет по мере приближения E_{LP} к E_X, то есть с ростом доли экситонной моды в НП, причем наибольшее уширение линии наблюдается при малых плотностях возбуждения. Отсюда следует, что флуктуации потенциала для НП моды обусловлены, в основном, флуктуациями потенциала в КЯ.

Излучение конденсата возникает на высокоэнергетическом крае линии излучения локализованных поляритонов. Величина скачка фиолетового сдвига максимума линии излучения при переходе через P_{thr} увеличивается с ~ 0.2 до ~ 0.6 мэВ при уменьшении глубины НП ветви $\delta_{LP} = E_{LP} - E_X$ с -22 до -9 мэВ. Столь большой скачок нельзя объяснить только ростом отталкивательного взаимодействия поляритонов, величина которого пропорциональна экситонной плотности. На рис.3 видно, что при увеличении P с $\sim P_{thr}$ до $2P_{thr}$, когда средняя плотность возбужденных экситонов увеличивается в 2 раза, а плотность поляритонов в конденсированной моде более чем на порядок, фиолетовый сдвиг линии излучения не превышает 0.05 мэВ в МР с $E_{LP} - E_X = -22$ мэВ (#1) и 0.15 мэВ в МР с $E_{LP} - E_X = -9$ мэВ (#3).

Большой фиолетовый сдвиг линии излучения поляритонов на пороге конденсации следует связать с эффектом от флуктуаций потенциала для поляритонов. На рис.2 видно, что при $P > P_{thr}$ угловая ширина диаграммы направленности излучения конденсированной НП моды на полувысоте $\Delta\phi = 4°$. Эта ширина отвечает области когерентности поляритонного конденсата $\Delta l \sim \lambda/\Delta\phi \sim 15$ мкм, что существенно меньше диаметра возбуждаемой области $d \sim 50$ мкм. С целью выяснения причины столь большого расхождения величин Δl и d размер излучающей области был определен из измерений излучения поляритонов в ближнем поле (см. рис.4). При $P = 40$ кВт/см^2 излучение из возбуждаемой области с размером $d \sim 50$ мкм почти однородно, однако уже при увеличении P до 50 кВт/см^2 пространственная однородность излучения нарушается, и появляются области с сильно увеличенной интенсивностью излучения. Линия излучения при этом слегка уширяется и сдвигается в область больших энергий.

Появление областей с повышенной плотностью НП свидетельствует о том, что по мере роста средней плотности поляритонов начинается преимущественная релаксация поляритонов во флуктуационные минимумы потенциала. При $P > 60$ кВт/см^2 излучение НП развивается в одном из таких минимумов с характерным размером 7–15 мкм. Этот размер совпадает с размером области когерентности излучающего диполя, определенного из угловой ширины диаграммы направленности излучения конденсированной поляритонной моды.

Учитывая, что: (i) фиолетовый сдвиг энергии поляритонов на пороге конденсации существенно превосходит энергию их отталкивательного взаимодействия в конденсате и (ii) основные флуктуации поляритонного потенциала в невозбужденном МР обусловлены флуктуациями потенциала в КЯ, мы связываем этот сдвиг с эффектом от локализации долгоживущих темных экситонов с моментом $J = 2$ в минимумах потенциала в КЯ. Темные экситоны не взаимодействуют непосредственно с фотонной модой, однако увеличение их концентрации ведет к уменьшению силы осциллятора для светлых экситонов и, как следствие, к уменьшению раби-расщепления и дополнительному фиолетовому сдвигу энергии НП.

В заключение обратимся к вопросу о возможности достижения в плотной фотовозбужденной поляритонной системе теплового квазиравновесия и интерпретации наблюдаемого явления в терминах равновесной бозе-эйнштейновской конденсации поляритонов. На рис.2с приведена аппроксимация угловой зависимости интенсивности излучения поляритонов, отражающей распределение НП по квазиимпульсам с использованием бозевской функции распределения $f = (\exp((E_{LP}(k) - \mu_{LP})/kT_{LP}) - 1)^{-1}$. При аппроксимации учтено, что вероятность излучения НП пропорциональна $|C_C|^2$. Температура T_{LP} и химпотенциал μ_{LP} НП являются подгоночными параметрами.

На рис. 2с видно, что распределение поляритонов $n(k)$ при $P = 40\,$кВт/см^2 более или менее удовлетворительно описывается больцмановским распределением с $T_{LP} = 80\,$К $\gg T_{\text{bath}} = 6.5\,$К. С увеличением плотности возбуждения и включением поляритон-поляритонного механизма рассеяния скорость энергетической релаксации НП увеличивается, что приводит к более сильной зависимости n от k, то есть к понижению эффективной температуры. При $P = 140$ кВт/см^2, когда наблюдается конденсация НП в $k = 0$, химпотенциал $\mu_{LP} = 0$. На рис.2с видно, что в этом случае описать распределение излучения поляритонов $I_{LP}(k)$ во всей области k одной эффективной температурой не представляется возможным. В области $k > 2$ мкм$^{-1}$ для аппроксимации $I_{LP}(k)$ необходимо выбрать $T_{LP} \sim 25\,$К (пунктирная кривая), однако при этом рассчитанные значения интенсивности излучения $I_{LP}(k)$ в области $k < 1.5\,$мкм$^{-1}$ оказываются более чем на порядок меньше экспериментальных. Для описания $I_{LP}(k)$ при $k = 0.6 \div 1.6\,$мкм$^{-1}$ необходимо выбрать существенно меньшую величину T_{LP}, близкую к $T_{\text{bath}} = 6.5\,$К (рис.2с). Увеличение скорости энергетической релаксации в области малых k находит естественное объяснение, если учесть что в этой области числа заполнения поляритонных состояний превышают 1 и быстро растут с приближением к $k = 0$. Как следствие, процессы рассеяния сильно ускоряются благодаря стимулированному рассеянию НП в макрозаполненные моды.

Таким образом, в высокодобротном GaAs МР с $Q \sim 7000$, благодаря увеличенному времени жизни поляритонов ($\tau_{LP} \sim 10\,$пс) оказывается возможным реализовать конденсацию поляритонов с доминирующей долей фотонной компоненты (вплоть до 0.95%). Однако тепловое квазиравновесие, необходимое для интерпретации наблюдаемой конденсации поляритонов в терминах квазиравновесной бозе-эйнштейновской конденсации, не достигается. Конденсация поляритонов происходит в термодинамически неравновесных условиях в латеральных флуктуационных ловушках с диаметром $\sim 10\,$мкм, образующихся благодаря крупномасштабным флуктуациям потенциала поляритонов.

Авторы выражают благодарность В.Б. Тимофееву, С.С. Гаврилову, Н.А. Гиппиусу, С.Г. Тиходееву и А.А. Деменеву за плодотворные обсуждения, за помощь в эксперименте. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Правительства Земли Бавария ФРГ.

1. А. В. Горбунов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **83**, 178 (2006); V. B. Timofeev and A. V. Gorbunov, Phys. Status Solidi (c) **5**, 2379 (2008).
2. L. V. Butov et al., Nature **417**, 47 (2002).
3. J. P. Eisenstein and A. H. MacDonald, Nature **432**, 691 (2004).
4. В. Д. Кулаковский, Д. Н. Крижановский, А. И. Тартаковский и др., УФН **173**, 995 (2003).
5. J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann et al., Nature (London) **443**, 409 (2006).
6. R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke et al., Science **316**, 1007 (2007).
7. A. Kavokin and G. Malpuech, *Cavity Polaritons*, Elsevier, Amsterdam, 2003.
8. J. J. Hopfield, Phys. Rev. **112**, 1555 (1958).
9. C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett. **69**, 3314 (1992).
10. M. S. Skolnick, T. A. Fisher, and D. M. Whittaker, Semicond. Sci. Technol. **13**, 645 (1998).
11. F. Tassone and Y. Yamamoto, Phys. Rev. B **59**, 10830 (1999).
12. D. Porras, C. Ciuti, J. J. Baumberg, and C. Tejedor, Phys. Rev. B **66**, 085304 (2002).

13. T. D. Doan, H. T. Cao, D. B. Tran Thoai, and H. Haug, Phys. Rev. B **72**, 085301 (2005).
14. R. M. Stevenson, V. N. Astratov, M. S. Skolnick et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 3680 (2000).
15. A. I. Tartakovskii, D. N. Krizhanovskii, and V. D. Kulakovskii, Phys. Rev. B **62**, R13298 (2000).
16. P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 1547 (2000).
17. V. D. Kulakovskii, A. I. Tartakovskii, D. N. Krizhanovskii, Nanotechnology **12**, 475 (2001).
18. J. J. Baumberg, A. V. Kavokin, S. Christopoulos et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 136409 (2008).
19. L. Klopotowski, A. Amo, M. D. Martin et al., Solid State Commun. **139**, 51 (2006).
20. J. Kasprzak, R. Andre, Le Si Dang et al., Phys. Rev B **75**, 045326 (2007).
21. R. Butté, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker et al., Phys. Rev. B **68**, 115325 (2003).
22. A. A. Demenev, A. A. Shchekin, A. V. Larionov et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 136401 (2008).
23. G. Roumpos, Chih-Wei Lai, T. C. H. Liew et al., Phys. Rev. B **79**, 195310 (2009).