

Бозе-конденсация межъямных экситонов в двойных квантовых ямах

А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев¹⁾, П. А. Ни, С. В. Дубонос⁺, И. Хвам^{* 2)}, К. Соеренсен^{* 2)}

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

¹⁾ Институт проблем проблем технологий микроэлектроники РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

^{*} Microelectronic Centre, DK 2800 Lyngby, Denmark

Поступила в редакцию 29 апреля 2002 г.

Исследована люминесценция межъямных экситонов в GaAs/AlGaAs двойных квантовых ямах ($n-i-n$ гетероструктуры), содержащих крупномасштабные флуктуации случайного потенциала в плоскостях гетерограниц. Изучались свойства экситонов, у которых фотовозбужденные электрон и дырка пространственно разделены между соседними квантовыми ямами при вариации плотности и температуры в пределах доменов масштаба менее одного микрона. С этой целью поверхность образцов покрывалась металлической маской, содержащей специально приготовленные отверстия (окна) микронного и меньшего размеров. Фотовозбуждение и наблюдение люминесценции велись через такие окна. При небольших накачках (меньше 50 мкВт) межъямные экситоны сильно локализованы из-за мелко масштабных флуктуаций случайного потенциала, а соответствующая линия фотолюминесценции неоднородно уширена (до 2.5 мэВ). При увеличении мощности резонансного возбуждения пороговым образом вырастает линия делокализованных экситонов, которая с ростом накачки линейно увеличивается по интенсивности, сужается (минимальная ширина 350 мкэВ) и сдвигается в сторону меньших энергий (около 0.5 мэВ) в соответствие с заполнением нижайшего состояния в домене. С ростом температуры эта линия исчезает в спектре ($T_c \leq 3.4$ К). Обнаруженное явление связывается с бозе-энштейновской конденсацией в квазидвумерной системе межъямных экситонов. В исследованном интервале температур (1.5–3.4 К) критические величины экситонной плотности и температуры растут по закону, близкому к линейному.

PACS: 73.20.Mf, 73.21.Fg

1. Водородоподобный экситон в полупроводнике состоит из двух фермионов – электрона и дырки, поэтому результирующий спин экситона целочисленный, а сам экситон является композитной бозе-частицей. На этом основано предположение, сформулированное в ряде теоретических работ еще в начале 60-х годов [1] о возможности бозе-энштейновской конденсации (БЭК) при достаточно низких температурах слабо неидеального и разреженного экситонного газа в полупроводниках ($na_{ex}^d \ll 1$, n – экситонная плотность, a_{ex} – боровский радиус экситона, d – размерность системы). В последние годы ведется интенсивный поиск БЭК экситонов в двумерных (2D) системах на основе полупроводниковых гетероструктур [2–18]. В идеальной и неограниченной 2D системе, где плотность одночастичных состояний постоянна, БЭК при конечных температурах не может происходить по принципиальным причинам: из-за необходимости числа заполняемых состояний, когда химический потенциал $\mu \rightarrow 0$, а также из-за флюкту-

аций, разрушающих параметр порядка [19]. В квазидвумерных системах и 2D системах с пространственным ограничением БЭК может, однако, происходить при конечных температурах. Критическая температура в латерально ограниченной 2D системе, где число состояний конечно, равна

$$T_c \approx \pi \hbar^2 N_{ex} / k_B m_{ex} \ln(N_x S), \quad (1)$$

то есть уменьшается логарифмически с ростом площади S , занятой 2D газом бозе-частиц с плотностью N_{ex} и эффективной массой m_{ex} , k_B – постоянная Больцмана.

Пространственные ограничения в плоскости квантовых ям могут возникать из-за крупномасштабных флуктуаций случайного потенциала, связанных с вариациями ширины квантовых ям на гетерограницах $w(r)$. С этими вариациями можно связать изменения эффективного латерального потенциала $U(r) = U(w(r))$ [14]. В условиях квазиравновесия распределение экситонной плотности будет определяться равенством $\mu(N(r)) + U(r) = \mu$, где химический потенциал межъямных экситонов μ связан с их средней

¹⁾e-mail: timofeev@issp.ac.ru

²⁾I. Hvam, K. Soerensen.

плотностью, а $\mu(N)$ – химический потенциал однородной экситонной фазы в области пространственного ограничения (домена). Очевидно, что $|\mu(r)| < |\mu|$, так как $\mu(N) = -|E_{ex}| + |\delta(U(r))|$ (E_{ex} – энергия связи экситона), поэтому в области латерального конфайнмента экситоны легче накопить и плотность экситонов в таких областях может существенно превысить среднюю плотность в плоскостях квантовых ям [14]. Критические условия, соответствующие бозе-конденсации межъямных экситонов, легче реализовать именно в латеральных доменах.

С этой целью мы исследовали свойства межъямных экситонов при изменении их плотности и температуры в GaAs/AlGaAs двойных квантовых ямах (ДКЯ) с крупномасштабными флуктуациями случайного потенциала, которые возникали благодаря использованию техники прерывания эпитаксиального роста (growth interruption technique) на гетерограницах квантовых ям [20]. В ДКЯ при приложении электрического смещения, наклоняющего зоны, можно возбуждать экситоны, у которых электрон и дырка находятся в разных КЯ, разделенных туннельно прозрачным барьером. Такие экситоны называют пространственно непрямыми, или межъямными (МЭ), в отличие от внутриямных, прямых экситонов, когда электрон и дырка находятся в одних и тех же КЯ. Межъямные экситоны, по сравнению с внутриямными, являются долгоживущими в силу ограниченного перекрытия волновых функций электрона и дырки через туннельный барьер, поэтому их нетрудно накапливать и охлаждать до достаточно низких температур. Межъямные экситоны имеют дипольный момент уже в основном состоянии, поэтому из-за диполь-дипольного отталкивания такие экситоны не связываются в молекулы.

Исследовалась $n-i-n$ GaAs/AlGaAs гетероструктура с двойными квантовыми ямами GaAs/AlAs/GaAs (ширина GaAs ям 120 Å и ширина AlAs барьера ≈ 11 Å). Структура выращивалась с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии на легированной GaAs подложке n -типа (концентрация легирующей примеси Si: $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) с кристаллографической ориентацией (001). На подложку сначала наращивался буферный слой 0.5 мкм GaAs, легированный Si ($2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$). Затем располагался изолирующий слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.35$) толщиной 20 нм и 10-периодная сверхрешетка AlAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.35$) с периодом 3 нм. Далее наращивались ДКЯ GaAs/AlAs/GaAs. За ДКЯ вновь располагался изолирующий слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.35$) толщиной 120 нм, содержащий 10-периодную сверхрешетку AlAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

($x = 0.35$) с периодом 3 нм. Затем шел слой 0.1 мкм GaAs, легированный Si ($2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$). Вся структура закрывалась слоем GaAs 100 Å. Металлические контакты из сплава Cr/Ge/Au/Cr/Au наносились на буферный слой и легированный слой на верхней части мезы.

На поверхность $n-i-n$ структуры с описанной архитектурой методом взрывной (“lift-off”) электронно-лучевой литографии формировалась металлическая маска (пленка алюминия) толщиной 120 нм с отверстиями до 0.5 мкм. Возбуждение и регистрация сигнала люминесценции велись через подготовленные таким образом окна. Алюминиевая пленка не имела контакта с легированной n^+ -контактной областью гетероструктуры.

Результаты, свидетельствующие о конденсации экситонов, были получены при оптическом возбуждении образца через окна диаметром менее одного микрона. Работа велась в условиях резонансного лазерного возбуждения внутриямных экситонов на тяжелых дырках (1sHH-экситонов) с помощью перестраиваемого Ti-сапфирового лазера. Во всех измерениях размер сфокусированного лазерного пятна на образце не превышал 20 мкм. На рис.1 представлены спектры люминесценции межъямных (I) экситонов, измеренные при различных приложенных электрических смещениях. Исследуемые оптические переходы схематически проиллюстрированы на рис.1b. В области внутриямной люминесценции (этота область не показана на рисунке) при нулевом электрическом смещении видны две линии: 1sHH – свободного экситона на тяжелой дырке и связанного экситона [9]. Линия межъямных экситонов (I -линия) появляется в спектрах, когда, при включении электрического поля, величина штарковского сдвига зон размерного квантования в соседних квантовых ямах равна $eF\Delta(z) \geq E_D - E_I$ (E_D, E_I – энергии связи внутриямного и межъямного экситонов, соответственно, а F – величина электрического поля). I -линия сдвигается практически линейно при изменении электрического поля (рис.1c). При больших напряжениях, $U > 0.3$ В, и стационарном возбуждении в спектрах люминесценции линия МЭ является доминирующей, а люминесценция внутриямных экситонов и заряженных экситонных комплексов в этих же условиях на несколько порядков слабее по интенсивности. В исследуемых структурах квантовый выход люминесценции МЭ высокий, и безызлучательными переходами можно пренебречь. Это утверждение основывается на том, что с ростом приложенного напряжения времена жизни МЭ изменяются более чем на порядок, тогда как интен-

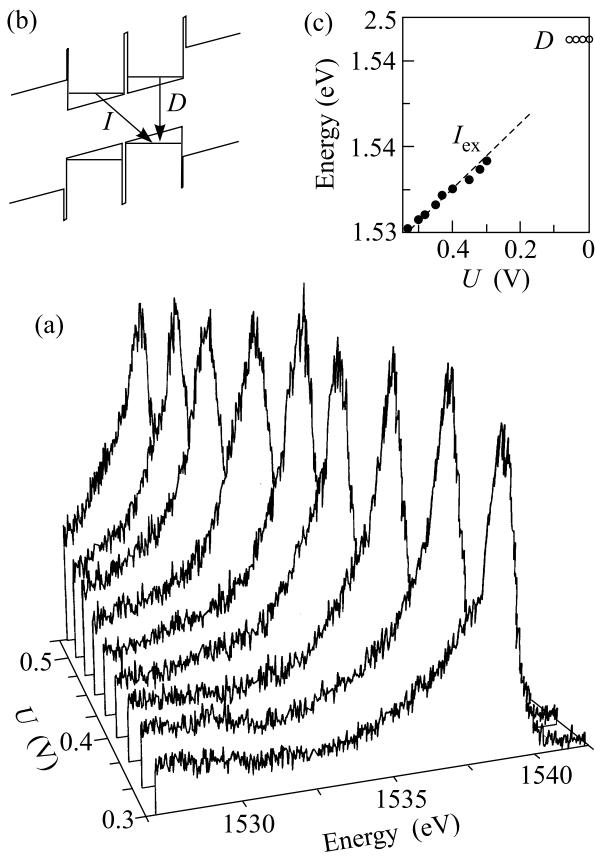


Рис.1. (а) Поведение спектров люминесценции межъямных экситонов при изменении приложенного напряжения, температура $T = 1.51$ К, мощность оптического возбуждения $P = 300$ мкВт. На (б) и (с) показаны: схема оптических переходов и зависимость спектральных позиций линий прямого экситона (D) и МЭ (I_{ex}) от электрического смещения, соответственно

сивность люминесценции практически не меняется (рис.1).

При малых плотностях возбуждения, менее 50 мкВт, в спектрах люминесценции наблюдается относительно широкая, асимметричная полоса межъямных экситонов (ширина полосы около 2.5 мэВ, см. рис.2). Эта полоса неоднородно уширена и обусловлена сильной локализацией межъямных экситонов на мелкомасштабных флуктуациях случайного потенциала, связанного с остаточными заряженными примесями. При увеличении накачки (≥ 50 мкВт) на фиолетовом краю широкой полосы пороговым образом вырастает узкая линия. Интенсивность этой линии растет с ростом накачки линейно (см. вставку на рис.2), однако существенно быстрее, чем фон люминесценции под ней; при этом сама линия несколько сужается и сдвигается примерно

на 0.5 мэВ в сторону меньших энергий. Минимальная измеренная ширина этой линии 350 мкэВ при спектральной ширине щели спектрометра (около 250 мкэВ). Поэтому с учетом аппаратной функции спектрометра можно считать, что реальная ширина обсуждаемой линии менее 250 мкэВ. Заметим, что бесструктурная полоса под узкой линией с ростом мощности возбуждения возрастает линейно. При дальнейшем увеличении накачки (более 0.5 мВт) узкая линия МЭ начинает уширяться и затем, монотонно расширяясь, сдвигаться в сторону больших энергий.

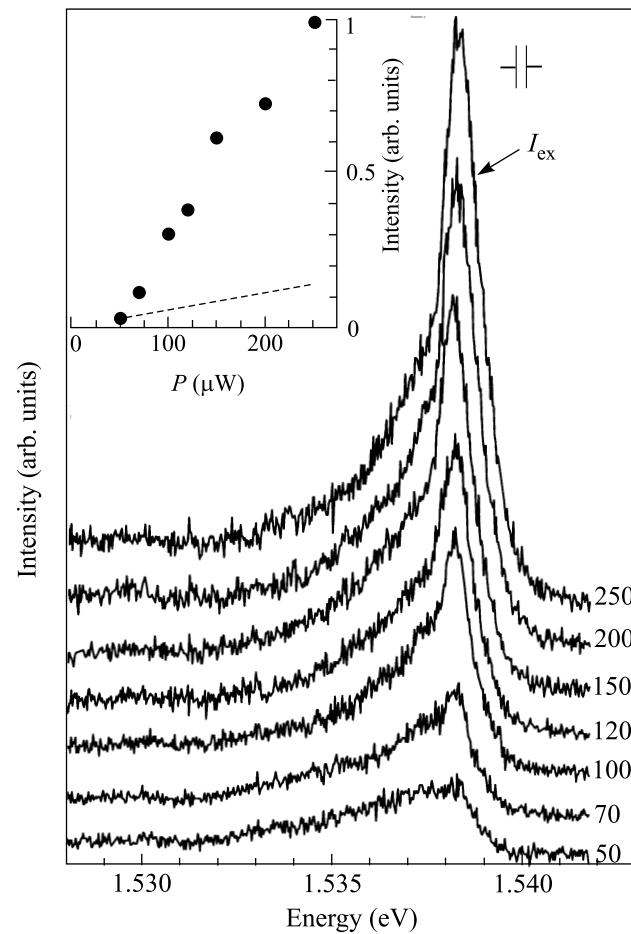


Рис.2. Спектры ФЛ межъямного экситона (линия I_{ex}) при различных мощностях резонансного возбуждения прямого 1sHH экситона, приложенном смещении $U = 0.3$ В и $T = 1.51$ К. Цифры справа от спектров соответствуют мощности возбуждения в мкВт. Вверху справа указано спектральное разрешение прибора. На вставке представлена зависимость интенсивности линии МЭ (точки) в функции мощности оптического возбуждения. Штриховая линия – экстраполяция линейной зависимости интенсивности фона под линией

Было исследовано поведение узкой линии межъядных экситонов в зависимости от температуры и установлено, что эта линия исчезает в спектре при температурах $T \geq 3.4$ К. Рис.3 иллюстрирует типичное поведение I -линии при вариации температуры и фиксированной накачке. Видно, что при $T = 1.8$ К и

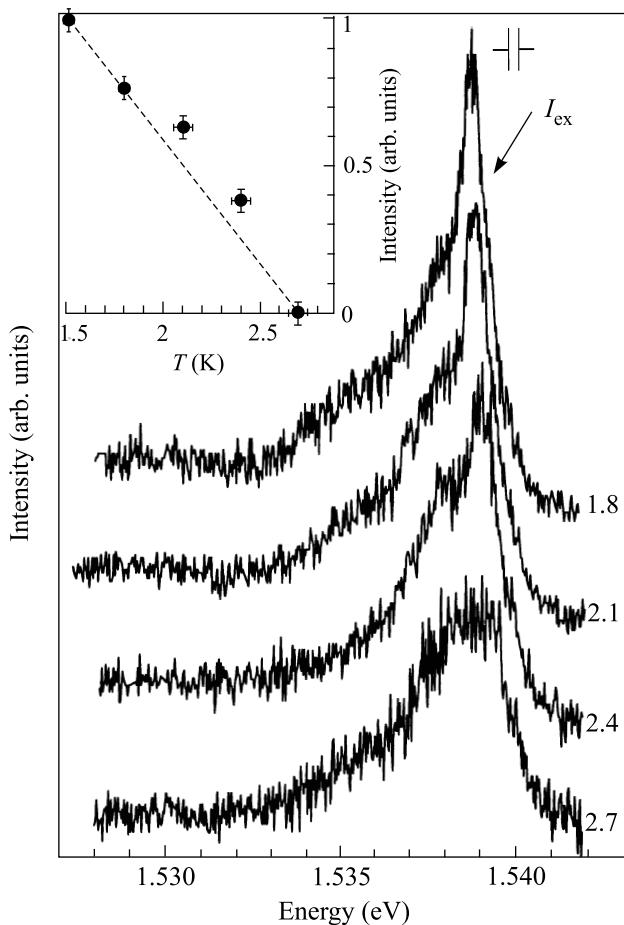


Рис.3. Температурная зависимость интенсивности линии фотолюминесценции МЭ при возбуждении $P = 150$ мВт и приложенном электрическом смещении $U = 0.3$ В. Цифры справа соответствуют температуре в кельвинах. Точки на вставке показывают поведение интенсивности линии МЭ от температуры, штриховая кривая – экстраполяция зависимости $I_T \propto (1 - T/T_c)$

мощности возбуждения 150 мВт эта линия отчетливо возвышается над бесструктурной полосой люминесценции локализованных экситонов и имеет большую интенсивность. При увеличении температуры интенсивность I -линии уменьшается неактивационным образом, ее ширина при этом мало меняется, и при $T = 2.7$ К эта линия исчезает на фоне бесструктурного спектра локализованных экситонов, который при этом сохраняет свою форму. Измерив поведе-

ние интенсивности I -линии при различных накачках в интервале температур $T = 1.51 \div 3.4$, мы установили следующую закономерность ее температурного поведения:

$$I_T \propto (1 - T/T_c), \quad (2)$$

где I_T – интенсивность линии при температуре T , а T_c – критическая температура, соответствующая исчезновению этой линии в спектре при заданной фиксированной накачке.

Мы считаем, что представленные экспериментальные результаты свидетельствуют о бозе-конденсации межъядных экситонов в одиночном латеральном домене размером менее одного микрона, происхождение которого обусловлено крупномасштабными флуктуациями случайного потенциала. При небольших накачках и достаточно низких температурах фотовозбужденные МЭ оказываются сильно локализованными из-за мелкомасштабных дефектов (например, остаточных заряженных примесей). Этому соответствует широкая, неоднородно уширенная полоса люминесценции МЭ при небольших плотностях возбуждения. На дефекте может локализоваться не более одного экситона из-за сильного диполь-дипольного отталкивания, поэтому этот канал люминесценции быстро насыщается. В исследованных структурах это происходит при концентрациях менее $5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. При дальнейшем увеличении накачки, выше порога протекания, межъядные экситоны оказываются делокализованными. При достижении критических величин плотности экситоны конденсируются в нижайшее делокализованное состояние. Это проявляется экспериментально в пороговом появлении узкой линии люминесценции, ее сужении с ростом накачки и сдвиге в сторону меньших энергий в соответствие с заполнением нижайшего состояния в домене экситонами, подчиняющимся статистике Бозе-Эйнштейна. Наиболее сильным аргументом в пользу конденсации экситонов является критичность обнаруженных свойств к температуре.

Обнаруженное явление бозе-конденсации в исследованных структурах проявляется в шкале экситонных концентраций в ограниченных пределах: $N_{loc} < N_{exc} < N_{I-M}$. Нижний предел (низкие плотности) обусловлен эффектами сильной локализации экситонов в домене на дефектах ($N_{loc} \approx 5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$), а верхний (большие плотности) – разрушением экситона вследствие перехода изолятор–металл, N_{I-M} . Действительно, при увеличении мощности возбуждения выше 0.5 мВт линия люминесценции межъядных экситонов начинает уширяться, а затем, продол-

жая уширяться, сдвигается в сторону больших энергий. Уширение I -линий происходит вследствие перекрытия волновых функций экситонов и возникающего фермиевского отталкивания между электронами в одной яме и дырками в другой. Оценимаемая плотность, при которой межъямные экситоны теряют свою индивидуальность и возникает $e-h$ плазма с пространственно разделенными между соседними квантовыми ямами электронами и дырками, равна $N_{I-M} \approx 8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Соответствующий этой плотности безразмерный параметр $r_s = 1/(\sqrt{\pi N_{I-M}} \cdot a_B) = 1.8$ (величина боровского экситонного радиуса $a_B = 150 \text{ \AA}$ оценивалась по диамагнитному сдвигу межъямного экситона). Возникающая $e-h$ плазма начинает экранировать внешнее электрическое поле, и полоса межъямной рекомбинации начинает двигаться в сторону больших энергий. Отсюда можно определять величину $e-h$ плотности. Отметим, что при работе с доменами микронного масштаба число экситонов в конденсате порядка нескольких сотен.

Сконденсировавшиеся экситоны должны быть пространственно когерентны. Пространственная когерентность должна возникать по меньшей мере на масштабах термической де-бройлевской длины волны межъямных экситонов, λ_{ex} , которая при $T = 2 \text{ K}$ равна $\lambda_{ex} = h/\sqrt{\pi m_{ex} kT} = 1.5 \cdot 10^3 \text{ \AA}$, что на порядок превышает боровский экситонный радиус. На масштабах пространственной когерентности экситоны должны быть сфазированы, что может сопровождаться увеличением скорости излучательного распада сконденсированной части экситонов. С этой целью были проведены эксперименты по резонансному возбуждению экситонов циркулярно поляризованным светом. Напомним, что основное состояние межъямного экситона не является крамерсовским дублетом и 4-кратно вырождено по проекциям углового момента $M = \pm 1, \pm 2$ (оптически активны только состояния $M = \pm 1$). При резонансном возбуждении циркулярно поляризованным светом внутридимерных $1s\text{HH}$ экситонов мы обнаружили резкое возрастание степени циркулярной поляризации узкой линии межъямных экситонов (см. рис.4). Этот эффект свидетельствует о существенном увеличении скорости излучательной рекомбинации экситонов в конденсате по сравнению со скоростью рекомбинации локализованных, некогерентных экситонов. При этом предполагается, что скорость спиновой релаксации существенно не меняется. Реализованная в эксперименте высокая степень циркулярной поляризации I -линии (около 30%) свидетельствует также о возможности оптичес-

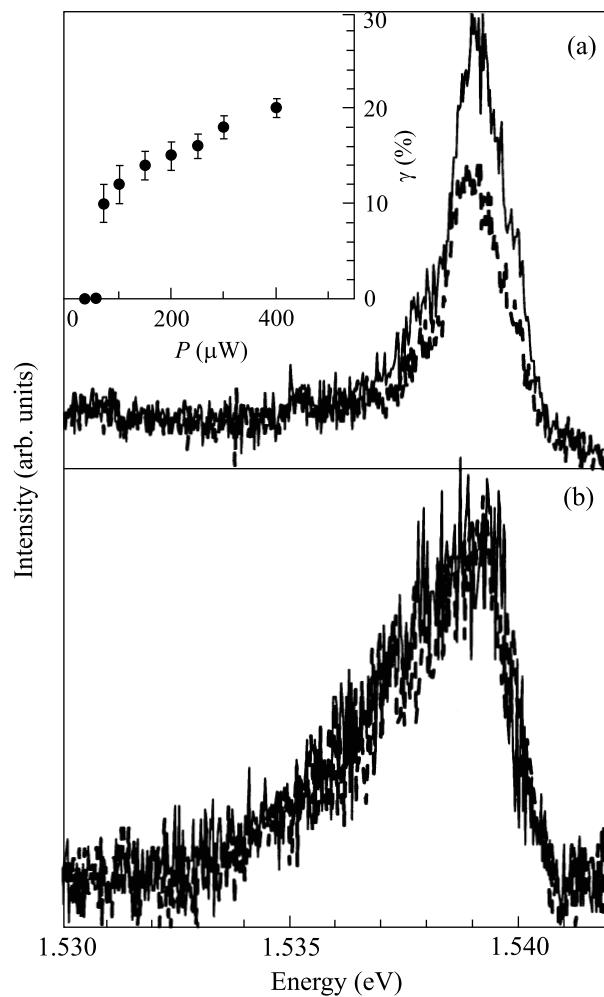


Рис.4. Спектры фотолюминесценции МЭ, измеренные при резонансном возбуждении внутриямного $1s\text{HH}$ экситона циркулярно поляризованным светом (σ^+) мощностью 50 мкВт (b) и 500 мкВт (a). Сплошные кривые отвечают измеренной интенсивности в поляризации σ^+ , а штриховые – в поляризации σ^- . Вставка представляет зависимость степени циркулярной поляризации γ (точки) от мощности резонансного оптического возбуждения в максимуме линии. Вклад бесструктурного фона при определении степени циркулярной поляризации не учитывался. Температура $T = 1.51 \text{ K}$ и электрическое смещение $U = 0.3 \text{ В}$

кого возбуждения когерентных вихревых состояний межъямных экситонов.

В заключение авторы благодарят Г. М. Элиашберга и С. В. Иорданского за очень интересные обсуждения, а также Российский фонд фундаментальных исследований (проекты # 01-02-16471, # 02-02-06349 и # 02-02-16791) и Государственную научно-техническую

программу ФТНС по наноструктурам за частичную финансую поддержку.

1. C. A. Moskalenko, ФТТ **4**, 276 (1962); I. M. Blatt, K. W. Boer, and W. Brandt, Phys. Rev. **126**, 1691 (1962); R. S. Casella, J. Appl. Phys. **34**, 1703 (1963).
2. Yu. E. Lozovik and V. I. Yudson, JETP Lett. **22**, 274 (1975).
3. T. Fukuzawa, E. E. Mendez, and J. M. Hong, Phys. Rev. Lett. **64**, 3066 (1990).
4. J. E. Golub, K. Kash, J. P. Harbison, and L. T. Flores, Phys. Rev. **B41**, 8564 (1990).
5. L. V. Butov, A. Zrenner, G. A. Abstreiter et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 304 (1994); L. V. Butov, in *Proc. of the 23d Intern. Conf. on Physics of Semiconductors*, Berlin, 1996.
6. V. B. Timofeev, A. V. Larionov, A. S. Ioselevich et al., JETP Lett. **67**, 613 (1998).
7. V. V. Krivolapchuk, E. S. Moskalenko, A. L. Zhmodikov et al., Solid State Commun. **111**, 49 (1999).
8. L. V. Butov, A. Imamoglu, A. V. Mintsev et al., Phys. Rev. **B59**, 1625 (1999).
9. A. V. Larionov, V. B. Timofeev, J. M. Hvam et al., JETP **90**, 1093 (2000).
10. L. V. Butov, A. V. Mintsev, Yu. E. Lozovik et al., Phys. Rev. **B62**, 1548 (2000).
11. A. V. Larionov, V. B. Timofeev, J. M. Hvam et al., JETP Lett. **75**, 200 (2002).
12. D. Yoshioka and A. H. MacDonald, J. Phys. Soc. Jpn. **59**, 4211 (1990).
13. X. M. Chen and J. J. Quinn, Phys. Rev. Lett. **67**, 895 (1991).
14. Xuejun Zhu, P. L. Littlewood, M. S. Hybersten, and T. Rice, Phys. Rev. Lett. **74**, 1633 (1995).
15. J. Fernandez-Rossier and C. Tejedor, Phys. Rev. Lett. **78**, 4809 (1997).
16. Yu. E. Lozovik and O. L. Berman, JETP **84**, 1027 (1997).
17. Yu. E. Lozovik and I. V. Ovchinnikov, JETP Lett. **74**, 288 (2001).
18. V. B. Timofeev, A. V. Larionov, M. Grassi Alessi et al., Phys. Rev. **B60**, 8897 (1999).
19. P. C. Hoenberg, Phys. Rev. **158**, 383 (1967).
20. S. W. Brown, T. A. Kennedy, D. Gammon et al., Phys. Rev. **b54**, R17339 (1996).