Проявление коллективных свойств пространственно-непрямых экситонов в асимметричных двойных квантовых ямах GaAs/AlGaAs

© В.В. Криволапчук, Е.С. Москаленко, А.Л. Жмодиков, Т.С. Ченг*, С.Т. Фоксон*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия *Факультет физики Ноттингемского университета, NG7–2RD Великобритания

(Поступила в Редакцию 1 июля 1998 г.)

Исследовались спектры низкотемпературной (T = 1.8, 4.2 K) люминесценции двойных связанных асимметричных квантовых ям (ДКЯ) GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As при изменении электрического поля V_{dc} , приложенного вдоль нормали к плоскости слоев ДКЯ. Обнаружено, что полуширина линии излучения (FWHM) непрямого экситона *IX* испытывает в некотором интервале значений V_{dc} резкое (до 3.5 раз) сужение. При этом в переходной области значений V_{dc} , при которых возникает резкое уменьшение (или увеличение) FWHM наблюдаются аномально большие флуктуации интенсивности *IX* во времени. В ходе зависимости FWHM от уровня накачки I_p также наблюдалось резкое уменьшение FWHM в некотором интервале значений I_p . Полученные результаты обсуждаются в рамках предположения о связи наблюдаемых явлений с возникновением конденсированного состояния во взаимодействующем коллективе пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ.

Изучение свойств ДКЯ привлекает в настоящее время значительный интерес исследователей как с теоретической, так и с экспериментальной точек зрения.

Отличительной особенностью ДКЯ является существование в этом объекте пространственно-непрямых экситонов (IX), образованных из электрона (e) и дыр-(h), локализованных в разных ДКЯ. В силу пространственной разделенности *e*-*h IX* обладает значительно большим временем жизни (рекомбинации), чем прямой экситон DX, образованный из е и h, локализованных в одной и той же ДКЯ. Последнее обстоятельство позволяет на практике получать при низких температурах термализованный газ IX достаточно высоких концентраций ($\sim 10^{10}\,\mathrm{cm}^{-2}$) даже при сравнительно небольших плотностях оптической накачки ($\sim 1 \, {
m W cm^{-2}}$). Как следствие можно ожидать появления предсказанных теоретически [1-3] фаз коллективно взаимодействующих экситонов. Детальный теоретический анализ системы ІХ в ДКЯ, выполненный недавно в [4], определил условия существования стабильной жидкой фазы IX и предсказал возможность перехода системы IX в сверхтекучее состояние.

В настоящее время существует несколько экспериментальных работ [5-8], результаты которых демонстрируют необычные свойства двумерных экситонов, которые могут быть качественно описаны с помощью моделей, учитывающих эффекты коллективного взаимодействия. Так в [6] наблюдалось значительное сужение линии излучательной рекомбинации *IX* в связанной ДКЯ GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As при изменении внешнего электрического поля на ДКЯ и температуры, 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/AlAs. Эти флуктуации наблюдались в [7] только в сильном магнитном поле, приложенном перпендикулярно плоскости ДКЯ, и были интерпретированы в рамках модели доменов конденсированного состояния, возникновение которых облегчалось магнитным полем. Аномально большие флуктуации интенсивности линии IX в асимметричных ДКЯ GaAs/Al_{0.33}Ga_{0.67}As в магнитном поле недавно наблюдались также в работе [8]. Вместе с тем, к отмеченным выше особенностям, повидимому, могут приводить и некоторые другие процессы, не связанные с возникновением конденсированного состояния экситонов. Так сужение линии люминесценции IX при уменьшении температуры связывалось в [9] с неоднородной природой ширины линии, вызванной несовершенством интерфейсов и особенностями распределения IX по неоднородно-уширенному ансамблю состояний, связанных с наличием дипольных моментов у ІХ-экситонов. Возникновение низкочастотных флуктуаций в излучении из ДКЯ согласно [10] может быть связано с сильной нестабильностью и экранировкой электрических полей на ДКЯ, вызванной накоплением электронов в одной из ям. Таким образом, вопрос о существовании конденсированного состояния пространственнонепрямых экситонов нуждается в дальнейшем исследовании. Поскольку конденсированное состояние предполагает наличие определенной равновесной концентрации экситонов и определенной границы между различными фазовыми состояниями, то для вывода о существовании конденсата важно выяснить условия возникновения и разрушения конденсированного состояния.

Цель настоящей экспериментальной работы — исследование эволюции ансамбля пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ при изменении внешних параметров величины электрического поля V_{dc} , приложенного к ДКЯ, плотности оптического возбуждения I_p , а также температуры образца T_b . Эти параметры существенно определяют условия возникновения конденсированного

состояния экситонов в двойных квантовых ямах [4]. При этом исследования — в отличие от предыдущих работ — проводились на слегка асимметричной ДКЯ, обладающей достаточно высоким совершенством (малая амплитуда случайного потенциала, приводящего к неоднородному уширению спектральных линий). Поскольку наиболее яркого проявления конденсированного состояния следует ожидать при низких температурах, то все измерения проводились при температурах $T_b = 1.8$ и 4.2 К. При различных фиксированных плотностях оптической накачки І_р исследовалась форма линии фотолюминесценции (ФЛ) IX в ДКЯ GaAs/Al_{0.33}Ga_{0.67}As при плавном изменении внешнего электрического поля *V*_{dc}, прикладываемого перпендикулярно плоскости ДКЯ. Приложение электрического поля, которое смещает положение е и h в ямах, позволяет эффективно управлять временем жизни IX (зависящим от перекрытия волновых функций е и h в IX в направлении роста структуры), а тем самым и концентрацией IX, что существенно для создания условий, при которых может возникать конденсированное состояние экситонов.

Нами обнаружено резкое уменьшение полуширины (FWHM) линии IX в некотором интервале V_{dc} и I_p при монотонном изменении величины V_{dc} и I_p . Кроме того, в области переходных значений V_{dc} , при которых имеет место резкое изменение полуширины линии (уменьшение или увеличение), наблюдается возникновение аномально больших низкочастотных флуктуаций интенсивности линии IX. Изучение свойств IX при изменении V_{dc} , I_p , T_b важно для выяснения областей существования различных фаз экситонных состояний (фазовая диаграмма). Полученные результаты обсуждаются в рамках предположения о возникновении конденсированного состояния в системе пространственно-непрямых экситонов в ДКЯ.

1. Образцы и схема эксперимента

Исследованные образцы (NU1117) были выращены в Ноттингемском университете (Великобритания) методом молекулярно-пучковой эпитаксии при T = 630°C на (001)-подложке GaAs толщиной 0.4 mm. Последовательно выращены: тонкий (~ 1 µm) буферный слой GaAs и три пары слегка асимметричных квантовых ям (КЯ) с толщинами (КЯ/барьер Al_{0 33}Ga_{0 67}As/КЯ в nm) 20.07/3.82/1.95, 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 Al_{0.33}Ga_{0.67}As толщиной 20 nm. Исследования проводились на ДКЯ 10.18/3.82/9.61. Постоянное электрическое напряжение V_{dc} прикладывалось к двум индиевым контактам, нанесенным на подложку и сторону образца с ДКЯ (рис. 1, a). Возбуждение и регистрация ФЛ осуществлялись через небольшое отверстие $(0.2 \times 0.2 \text{ mm}^2)$ в контакте со стороны ДКЯ (рис. 1, *a*). Образец освещался светом непрерывного Ті: Sp-лазера $(P < 10 \,\mathrm{mW}, \lambda = 765.2 \,\mathrm{nm},$ диаметр сфокусированного лазерного пятна на образце составлял 100-200 µm),

а



Рис. 1. Схема эксперимента (*a*) и энергетическая диаграмма в случае "непрямого" режима (*b*).

что соответствует подбарьерному возбуждению ДКЯ. Спектры люминесценции ДКЯ регистрировались при помощи двойного дифракционного спектрометра ДФС-52 в режиме время-коррелированного счета фотонов.

Спектр люминесценции асимметричной ДКЯ 10.18/3.82/9.61 нашего образца NU1117 и влияние на спектр приложенного внешнего напряжения V_{dc} подробно описаны в работе [11]. В [11] найдена энергетическая схема прямых (DX) и непрямых (IX) экситонов в этой ДКЯ. В настоящей работе полярность V_{dc} (плюс на контакте подложки) выбиралась таким образом, чтобы реализовать "непрямой режим" (рис. 1, b), который отвечает низшему энергетическому положению непрямого экситона IX (электрон локализован в широкой, а дырка — в узкой яме) по отношению к энергии перехода прямого экситона DX (электрон и дырка находятся в ши-

рокой яме) в ФЛ. В используемом интервале V_{dc} величина фототока через образец была крайне мала (~ 100 nA).

2. Результаты измерений

Спектры ФЛ, полученные при $I_p = 2.5 \,\mathrm{W cm^{-2}}$ и $T_b = 1.8 \,\mathrm{K}$ и разных значениях V_{dc} , представлены на рис. 2. При $V_{dc} = 0$ (рис. 2, *a*) в спектре видны две линии, отвечающие излучению прямого экситона DX из узкой ($E = 1.559 \,\text{eV}$) и широкой ($E = 1.555 \,\text{eV}$) ям. Приведенный на рис. 2, а спектр близок к спектру "плоских зон" в ДКЯ и факт его наблюдения при $V_{dc} = 0$ свидетельствует о том, что "встроенное" электрическое поле V_0 здесь мало. Следует отметить, что V_0 зависит от положения исследуемого участка на плоскости образца и в других участках образца "встроенное" электрическое поле может иметь разный знак, что требует приложения соответствующего компенсирующего напряжения V_{dc}. В режиме не слишком больших значений электрических полей, приложенных к ДКЯ (< 10⁵ V/cm), при которых квадратичным эффектом Штарка можно пренебречь, спектральное положение линии прямого экситона не зависит от значения электрического поля на структуре. В то же время спектральное положение линии непрямого экситона IX зависит от поля существенно, что схематически иллюстрируется рис. 1, b. Действительно, при ненулевом значении V_{dc} линия IX появляется в спектре $\Phi \Pi$ и сильно смещается в сторону меньших энергий с увеличением V_{dc} (рис. 2, *b*-*d*). Спектральное положение E_{IX} линии IX отражает величину результирующего электрического поля, прикладываемого к ДКЯ, и характеризует энергетическую схему экситонных состояний ДКЯ [11], включая интересующие нас непрямые экситоны. Таким образом, величина Е_{IX}, непосредственно измеренная на



Рис. 2. Спектры ФЛ при $I_p = 2.5 \text{ W cm}^{-2}$, $T_b = 1.8 \text{ K}$ и $V_{dc} = 0$ (*a*), -0.8 (*b*), -1.3 (*c*), -1.6 V (*d*).



Рис. 3. Зависимость полуширины линии *IX* (FWHM) от спектрального положения, определяемого величиной электрического поля, приложенного к ДКЯ, полученная при $T_b = 1.8$ К и $I_p = 2.5$ W cm⁻².

опыте, является удобным экспериментальным параметром, однозначно определяющим реальную энергетику ДКЯ в различных условиях опыта.

Из рис. 2 видно, что при значениях V_{dc}, отличных от нуля, исчезает линия излучения DX из узкой ямы $(E = 1.559 \,\mathrm{eV})$. Исчезновение линии прямого экситона из узкой ямы и одновременное появление непрямого экситона IX, состоящего, в данном случае, из электрона, локализованного в широкой, и дырки в — узкой ямах (рис. 1, b), свидетельствует о том, что электронные состояния узкой ямы не заселены. Такое перераспределение заселенности экситонных состояний ДКЯ в электрическом поле обусловлено быстрыми релаксационными процессами, связанными с туннелированием электрона между ямами [11]. Отметим также, что при $V_{dc} \neq 0$ в спектре появляется линия BDX, соответствующая излучению прямого экситона из широкой ямы, связанного на примеси [12], причем спектральное положение этой линии, также как и линии DX не зависит от величины V_{dc} (рис. 2, *b*-*d*).

Важно отметить, что при монотонном увеличении прикладываемого электрического поля V_{dc} полуширина (FWHM) смещающейся в длинноволновую сторону линии *IX* испытывает резкое изменение (рис. 3). При некотором спектральном положении линии, определяемом величиной V_{dc} , происходит резкое уменьшение FWHM в несколько (до 3.5) раз. Малая пирина практически сохраняется в некотором интервале E_{IX} (интервале приложенных полей), после чего вновь резко увеличивается до величины, сравнимой с начальной (рис. 3). Все при-



Рис. 4. Зависимость полуширины линии *IX* (FWHM) от плотности оптической накачки I_p при спектральном положении $E_{IX} = 1.543$ eV и $T_b = 1.8$ K.

веденные на рис. 2, 3 данные относятся к одной фиксированной плотности оптической накачки $I_p = 2.5 \,\mathrm{Wcm^{-2}}$. Аналогичным образом были измерены серии спектров ФЛ при различных приложенных к образцу напряжениях V_{dc} для случаев других фиксированных плотностей накачки в диапазоне $0.6 < I_p < 12.5 \,\mathrm{Wcm^{-2}}$. В этих экспериментах также наблюдался эффект сужения линии излучения *IX*, спектральное положение которой зависело, однако, не только от величины приложенного к образцу напряжения V_{dc}, но и от уровня накачки I_p (последнее обстоятельство указывает на изменение реального поля, приложенного к ДКЯ, в зависимости от уровня оптического возбуждения образца). На рис. 4 для разных уровней накачки I_p приведены полуширины FWHM линии IX, занимающей в спектрах $\Phi \Pi$ одно и то же положение $E_{IX} = 1.543$ eV. Данные рис. 4, очевидно, характеризуют поведение IX экситонов в ДКЯ с фиксированными энергетическими параметрами IX (как и других экситонных состояний) в зависимости от концентрации IX экситонов, меняющейся при изменении уровня накачки. Видно, что с увеличением уровня накачки FWHM линии IX испытывает сильное уменьшение в некотором интервале I_p, но затем вновь увеличивается. Кроме того, в области резкого изменения FWHM (участки *a-b* и с-d рис. 3) наблюдаются гигантские флуктуации во времени интенсивности $\Phi \Pi$ линии IX, характерный вид которых представлен на рис. 5. Эксперимент показал, что аналогичное поведение линии ІХ наблюдается и при T = 4.2 К.

3. Обсуждение

При рассмотрении вопроса о форме линии излучения непрямых экситонов *IX* ДКЯ, являющейся основным объектом нашего исследования, отметим известную роль сложного пространственного рельефа потенциала, в котором находится *IX* в ДКЯ. Этот случайный потенциал обусловлен как флуктуациями толщины в пределах одного–двух монослоев КЯ и барьера слоев, образующих ДКЯ, так и электрическим полем примесей в барьерах. При характерных размерах флуктуаций *L*, превышающих радиус *IX*-экситона a_{ex} ($L > a_{ex}$), экситоны при низких температурах локализуются на флуктуациях потенциала



Рис. 5. Флуктуации интенсивности линии IX во времени, полученные на участке (c-d) рис. 3.

и разброс в энергии фотонов, испускаемых при излучательной аннигиляции IX, ответственен за неоднородное уширение линии IX. В нашем случае ширина этого контура составляет приблизительно 5 meV (рис. 3). Наблюдение резкого (до ~1.5 meV) сужения линии излучения IX-экситонов при изменении приложенного к ДКЯ электрического поля, происходящего в определенном (при данном уровне оптической накачки) интервале полей, несомненно свидетельствует о резком изменении состояния излучающего коллектива IX-экситонов в указанном интервале полей, ограниченном с обеих сторон.

Недавно в [4] было теоретически исследовано концентрационное поведение системы экситонов, состоящей из пространственно-разделенных электронов и дырок (такая ситуация имеет место и в рассматриваемом нами случае ІХ-экситонов в ДКЯ). Вследствие пространственного разделения е и h в экситоне, последний обладает постоянным электрическим дипольным моментом eD, ориентированным перпендикулярно слоям (здесь D есть расстояние между слоями, в которых находятся электроны и дырки). Поэтому на поведении системы экситонов существенно сказывается диполь-дипольное отталкивание между экситонами, имеющими одинаковое направление дипольного момента. Показано [4], что при относительно малых D ($D < 1.1a_{ex}$) с ростом концентрации nэкситонов в определенном интервале *n* экситонный газ должен переходить в двухслойную экситонную жидкость. Однако при больших D ($D > 1.9a_{ex}$) всегда стабильна газовая фаза и при этом квантовый переход газ-жидкость по параметру *D* становится невозможным.

Сравнивая наши экспериментальные результаты с выводами работы [4], отметим, что новое состояние системы пространственно-непрямых экситонов, характеризуемое узкой линией излучения, возникает в наших опытах при увеличении электрического поля, приложенного к ДКЯ, которое существенно меняет параметры IX. Действительно, с ростом поля увеличивается время рекомбинации IX (за счет уменьшения перекрытия волновых функций е и h при противоположном по направлению смещении е и h в соответствующих ямах), что должно приводить к возрастанию концентрации n IX (при фиксированной накачке). По нашим оценкам, при плотности накачки $I_p = 2.5 \,\mathrm{W cm^{-2}}$ концентрация IX-экситонов может достигать достаточно больших значений $\sim 10^{10} - 10^{11} \, {\rm cm}^{-2}$. Одновременно за счет увеличения в поле расстояния между е и h растет величина дипольного момента непрямых экситонов и возрастает эффект из отталкивания. В соответствии с [4], такой рост *n* и *D* должен качественно приводить к тому, что новая жидкая фаза будет устойчива в ограниченном интервале приложенных полей, что и наблюдается на опыте (рис. 3). Поэтому флуктуации интенсивности линии IX (рис. 5), наблюдаемые в областях существенного изменения FWHM (т.е. в областях перехода системы IX из одной устойчивой фазы в другую), ествественно рассматривать как критические флуктуации вблизи фазового перехода.

Качественно согласуется с [4] и наблюдение эффекта сужения линии при изменении плотности оптической накачки I_p , определяющей концентрацию IX-экситонов (рис. 4), где этот эффект возникает в ограниченном интервале I_p . Наблюдаемое сильное сужение линии излучения IX указывает на подавление сильного неоднородного уширения линии IX и, вероятно, является следствием "усреднения" потенциального рельефа ДКЯ по значительной площади за счет большого размера упорядоченной фазы.

Таким образом, представленная совокупность экспериментальных данных: зависимость FWHM от электрического поля (при фиксированном I_p) и от I_p (при фиксированном eD), а также существование аномально больших флуктуаций интенсивности линии IX в области резкого изменения полуширины линии IX позволяют сделать вывод, 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.

Авторы считают своим приятным долгом выразить признательность А.А. Каплянскому за поддержку работы и многочисленные плодотворные обсуждения экспериментальных результатов, а также С.А. Пермогорову, Ю.Е. Лозовику и В.Б. Тимофееву за полезные критические замечания.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 98-02-18296).

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] Л.В. Бутов, В.Д. Кулаковский. Письма в ЖЭТФ 53, 444 (1991).
- [6] T. Fukuzawa, E.E. Mendez, J.M. Hong. Phys. Rev. Lett. 64, 3066 (1990).
- [7] L.V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter, G. Bohm, G. Weimann. Phys. Rev. Lett. **73**, 304 (1994).
- [8] В.В. Криволапчук, Д.А. Мазуренко, Е.С. Москаленко, Н.К. Полетаев, А.Л. Жмодиков, Т.С. Ченг, С.Т. Фоксон. ФТТ 40, 5, 803 (1998).
- [9] J.A. Kash, M. Zachau, E.E. Mendez, J.M. Hong, T. Fukuzawa. Phys. Rev. Lett. 66, 2247 (1991).
- [10] В.Б. Тимофеев, А.В. Ларионов, Дж. Земан, Г. Мартинез, Дж. Хвам, Д. Биркедал, К. Соеренсен. УФН 168, 117 (1998).
- [11] A.V. Akimov, E.S. Moskalenko, A.L. Zhmodikov, D.A. Mazurenko, A.A. Kaplyanskii, L.J. Challis, T.S. Cheng, C.T. Foxon. ΦΤΤ **39**, *4*, 735 (1997).
- [12] E.S. Moskalenko, A.L. Zhmodikov, A.V. Akimov, A.A. Kaplyanskii, L.J. Challis, T.S. Cheng, O.H. Hughes. Annalen der Physik 4, 127 (1995).