## Аномальный сигнал антистоксового рассеяния как индикатор макрозаполненных магнитоэкситонных уровней в режиме КЭХ

Б. Д. Кайсин $^{+*1)}, А. Б. Ваньков<math display="inline">^{+\times}, И. В. Кукушкин + ^{*\times}$ 

+Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

\* Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

<sup>×</sup>Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 мая 2020 г. После переработки 22 мая 2020 г. Принята к публикации 25 мая 2020 г.

В сильновзаимодействующих двумерных электронных системах на основе ZnO/MgZnO методом комбинационного рассеяния света обнаружена аномально сильная по интенсивности спектральная линия антистоксовой компоненты спинового экситона. Данная особенность проявляется в окрестности фактора заполнения  $\nu = 2$  при ферромагнитном упорядочении спиновой подсистемы, при этом в условиях парамагнитного упорядочения она не наблюдается. Показано, что происхождение данной линии может быть вызвано формированием ансамбля долгоживущих коллективных возбуждений в ферромагнитной фазе на факторе заполнения  $\nu = 2$ .

DOI: 10.31857/S1234567820130091

Двумерные электронные системы (ДЭС) с сильным кулоновским взаимодействием являются одним из наиболее интересных предметов исследования в современной физике конденсированного состояния с точки зрения изучения фундаментальных коллективных явлений. Вигнеровская кристаллизация [1], формирование экзотических дробных факторов заполнения в режиме квантового эффекта Холла (КЭХ) [2], Стонеровская неустойчивость [3] – далеко не полный перечень явлений, изучаемых в данных системах. Широкий спектр коллективных эффектов был изучен в высококачественных гетероструктурах GaAs/AlGaAs, обладающих рекордными электронными подвижностями. Кулоновское взаимодействие в ДЭС характеризуется безразмерным радиусом Вигнера–Зейтца  $r_s$ , который представляет собой среднее межчастичное расстояние в единицах боровского радиуса, в структурах GaAs/AlGaAs при плотности электронов в двумерном канале $n_s \sim 10^{11} \ {\rm cm}^{-2}$ этот параметр достигает значения  $r_s \sim 1$ . Существенно большего межчастичного взаимодействия удается получить в гетероструктурах ZnO/MgZnO, которые отличаются от структур GaAs/AlGaAs большей эффективной массой электронов в зоне проводимости и меньшей диэлектрической проницаемостью. Таким образом, при той же концентрации электронов характерное значение параметра взаимодействия

в структурах ZnO/MgZnO  $r_s \sim 10$ . На сегодняшний день значения подвижности в данных структурах достигают порядка 10<sup>6</sup> см<sup>2</sup>/В · с [4]. Сопоставимые по величине Зеемановское и циклотронное энергетические расщепления в комбинации с сильным межчастичным взаимодействием и высокой подвижностью позволяют наблюдать множество ранее неизученных, коллективных явлений. Одним из недавних вызывающих интерес результатов, полученных при изучении данных структур, является обнаружение ферромагнитной неустойчивости при четных факторах заполнения в режиме КЭХ. Данное явление было обнаружено и описано в серии магнитотранспортных работ [5–7]. Магнитооптические методы позволяют не только наблюдать данный переход, но и зондировать спектры коллективных возбуждений и их дисперсии [8–10]. Спектр коллективных возбуждений несет в себе информацию о ключевых энергетических параметрах, определяющих масштаб многочастичных корреляций. Так, в работе [10] было показано, что причиной ферромагнитной неустойчивости может служить смягчение одной из коллективных мод, которое приводит к переключению основного состояния из спин-неполяризованного (парамагнитного) в спин-поляризованное (ферромагнитное).

Одним из методических инструментов для исследования спиновой поляризации может служить комбинационное рассеяние света (КРС) на внутриподзонном спиновом экситоне (SE – *spin exciton*) [11]. В

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: tiesb@yandex.ru

длинноволновом пределе SE суть нижайшее по энергии возбуждение, его щель не зависит от кулоновского взаимодействия и определяется лишь Зеемановским расщеплением [12]. SE представляет собой волну, образованную переходом электронов между двумя спиновыми подуровнями одного уровня Ландау. В ДЭС в режиме КЭХ данное возбуждение не может образовываться при четных факторах заполнения с симметричным парамагнитным заполнением спиновых подуровней внутри одного уровня Ландау. Однако при ферромагнитном переходе на четных факторах заполнения происходит переключение поляризации с парамагнитной на ферромагнитную, и, как следствие, наблюдается резкое увеличение сигнала SE [8].

В ДЭС с сильным взаимодействием на структуру основного состояния влияет высокий обменный вклад масштаба  $e^2/\epsilon l_B$  ( $l_B$  – магнитная длина). При некотором соотношении энергетической щели над основным состоянием и обменной энергии может произойти переключение спинового упорядочения на энергетически более выгодную ферромагнитную конфигурацию при  $\nu = 2$ . Одним из способов добиться условий перехода является поворот образца относительно магнитного поля. Связано это с тем, что при наклоне изменяется соотношение между Зеемановским расщеплением спиновых подуровней внутри одного уровня Ландау (зависит от полного поля) и циклотронным расщеплением между соседними уровнями Ландау (зависит только от перпендикулярной компоненты поля), вследствие чего уменьшается энергетическая щель над основным состоянием.

Изменение структуры основного состояния сильновзаимодействующих ДЭС проявляется в изменении спектра коллективных возбуждений, исследование которого позволяет наблюдать новые нетривиальные эффекты. Настоящая работа посвящена изучению аномального поведения сигнала антистоксовой компоненты комбинационного рассеяния на SE в ферромагнитной фазе на факторе заполнения  $\nu = 2$ . Исследуется вопрос о формировании уровней долгоживущих возбуждений в условиях фазового перехода, появление которых может стать причиной для образования ансамбля высококогерентных коллективных магнитоэкситонов.

Измерения проводились на высококачественных гетероструктурах  $Mg_x Zn_{1-x}O/ZnO$ , выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии [4]. Концентрация электронов в двумерном канале определяется долей магния в барьере  $Mg_x Zn_{1-x}O$ . Были исследованы два образца: S427 ( $n_s = 2.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ ,

 $\mu = 4.27 \cdot 10^5 \,\mathrm{cm}^2/\mathrm{B} \cdot \mathrm{c})$  и S448 ( $n_s = 4.5 \cdot 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-2}$ ,  $\mu = 2.5 \cdot 10^5 \,\mathrm{cm}^2/\mathrm{B}\cdot\mathrm{c}$ ). Электронные подвижности измерялись магнитотранспортным методом. Оптические эксперименты были выполнены в криостате с откачкой паров He<sup>3</sup> при температуре 0.35 K в постоянном магнитном поле в диапазоне 0-15 Т. Для изменения угла наклона ДЭС относительно магнитного поля образец крепился на вращательном столике. Угол наклона контролировался с точностью 0.5°. Оптический доступ к образцу осуществлялся с помощью многомодовых световодов диаметром 400 мкм. Магнитооптические измерения были выполнены методом КРС по двухсветоводной схеме для подавления паразитного света, рассеянного на световоде накачки. Возбуждение осуществлялось перестраиваемым по длине волны титан-сапфировым лазером в диапазоне 720-780 нм, который работал в режиме непрерывного излучения. Для получения резонансного надбарьерного фотовозбуждения использовался удвоитель частоты лазерного излучения на основе нелинейного кристалла BBO. В результате накачка ДЭС выполнялась в диапазоне длин волн 365-368 нм (спектральная ширина линии ~  $10 \,\mathrm{MTu}$ ) с плотностью мощности 0.5 мВт/см<sup>2</sup>, что исключало возможность перегрева электронной системы [13].

Система для регистрации спектральных линий состояла из спектрометра с линейной дисперсией 5 Å/мм и ПЗС-камеры (прибор с зарядовой связью), охлаждаемой при помощи жидкого азота. Для количественного описания данных, полученных в эксперименте, требовалось вычисление интенсивностей спектральных линий, расположенных на склоне высокоинтенсивной линии упруго рассеянного света лазера (рис. 1b). Для этого из зарегистрированного спектра устранялась спектральная линия лазера, полученный сигнал аппроксимировался гауссианой, а интенсивность вычислялась как площадь под этой кривой.

На рисунке 1а представлен спектр КРС, на котором присутствуют стоксова и антистоксова компоненты рассеяния на спиновом экситоне (образец S427) при угле наклона 31° в поле 6.8 Т, что соответствует ферромагнитному упорядочению на факторе заполнения  $\nu = 2$  в области ферромагнитного перехода [8] для данного образца. Рамановский сдвиг обеих компонент одинаков и соответствует Зеемановской энергии с g фактором  $\approx 2$ . Спектр получен при температуре 0.35 К и имеет аномально высокую интенсивность антистоксовой компоненты. Действительно, при данной температуре следовало ожидать, что отношение интенсивностей этих линий вследствие термоактивации SE будет порядка  $I_{ast}/I_{st} \sim$ 



Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Спектр стоксовой и антистоксовой компоненты SE, полученный на образце S427 при угле наклона 31° и поле 6.8 T, соответствующих ферромагнитному упорядочению на факторе заполнения  $\nu = 2$ . (b) – Процесс аппроксимации антистоксовой компоненты SE, находящейся на склоне спектральной линии лазера

 $\sim e^{(-E_z/kT)} \sim 10^{-11}$ , в то время как из эксперимента следует, что это отношение  $\sim 1/3$ . Данный результат является нетривиальным и свидетельствует о том, что возникновение высокоинтенсивной антистоксовой компоненты SE происходит по иным причинам. Стоит отметить, что в зависимости от длины волны лазера накачки резонансные условия для данных спектральных линий могут изменяться, однако в среднем отношение уровней сигнала этих компонент соответствует отображенному на спектре.

Как отмечалось выше, при фазовом переходе в ДЭС на факторе заполнения  $\nu = 2$  происходит изменение спектра коллективных возбуждений. Одним из таких изменений является появление уровня SE. На сегодняшний день нет строгого теоретического описания данного возбуждения при ферромагнитном упорядочении на  $\nu = 2$ , однако оно неоднократно наблюдалось и описывалось в экспериментальных работах [8, 9]. Очевидно, что интенсивность антистоксовой компоненты прямо пропорциональна заселенности уровня SE, в свою очередь, количество данных возбуждений пропорционально их времени жизни. Поскольку данное низкоэнергетическое возбуждение происходит с переворотом спина, оно не имеет существенных каналов распада, что способствует увеличению его времени жизни. Таким образом, в процессе накачки лазером может происходить постепенное заселение уровня долгоживущих возбуждений SE, образующих макрозаполнение, а последующее стимулированное КРС приводит к образованию высокоинтенсивной спектральной линии антистоксовой компоненты.

Проследим за эволюцией данной линии при изменении характера спинового упорядочения. На рисунке 2 представлены спектры антистоксовой компонен-



Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры антистоксовой компоненты SE, полученные на образце S427 при разных состояниях спиновой подсистемы на факторе заполнения  $\nu = 2$ :  $22^{\circ}$  – парамагнитное упорядочение,  $27^{\circ}$  и  $31^{\circ}$  – переходная область,  $44^{\circ}$  – ферромагнитное упорядочение. Различие в Зеемановской энергии возбуждений при разных углах наклона связано с различной величиной полного магнитного поля



Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Модуль рамановского сдвига для антистоксовой компоненты SE (образец S427) при разных углах наклона в зависимости от полного магнитного поля. Пунктирной линией проведена зависимость Зеемановской энергии от магнитного поля с g = 1.97. (b) – Зависимость интенсивности антистоксовой компоненты SE (образец S427) от угла наклона для факторов заполнения  $\nu = 2$  и  $\nu = 1$ . Пунктирной линией проведена экстраполяция в парамагнитную и ферромагнитную области спинового упорядочения на факторе заполнения  $\nu = 2$ . (c) – Зависимость интенсивности антистоксовой и стоксовой компонент SE для двух образцов (S427, S448) от мощности накачки в двойном логарифмическом масштабе. Для сравнения пунктирными линиями изображены линейная и квадратичная зависимости

ты SE при четырех различных углах наклона в полях, соответствующих  $\nu = 2$ . Данные углы отвечают различным фазовым состояниям ДЭС. При угле наклона 22° спиновая подсистема имеет парамагнитное упорядочение, близкое к полному. Как отмечалось выше, в таких условиях SE не может формироваться, а остаточный сигнал, появляющийся на спектре, может быть связан с неоднородностью системы или наличием примесных центров, которые могут захватывать электроны в различных спиновых состояниях. Двигаясь по углу в сторону ферромагнитной неустойчивости, наблюдается резкое увеличение сигнала (угол 27°), связанное с изменением спектра коллективных возбуждений. Это изменение вызвано преобладанием в данной точке фазового пространства доменов с ферромагнитным упорядочением. С этого момента в системе возникает уровень долгоживущих возбуждений SE. Далее на краю области ферромагнитной неустойчивости (угол 31°) сигнал антистоксовой компоненты SE достигает максимума и система полностью переходит в ферромагнитное состояние. Вследствие этого при дальнейшем увеличении угла наклона интенсивность линии перестает расти. Зависимости интенсивностей антистоксовых компонент SE от угла наклона при факторе заполнения  $\nu = 2$  представлены на рис. 3b (оранжевые точки). Пунктирной линией проведена экстраполяция данных в парамагнитную и ферромагнитную области. Резкий рост интенсивности линии в диапазоне углов 18°-27° говорит о зарождении доменов с ферромагнитным упорядочением в данной области, а переход к константному сигналу в области углов, больших 31°, свидетельствует о полном ферромагнитном упорядочении на факторе заполнения  $\nu = 2$ . Данный результат полностью согласуется с работой [8].

Спектральные линии стоксовой компоненты SE в области углов, соответствующих ферромагнитному упорядочению на факторе заполнения  $\nu = 2$ , имеют близкие по величине интенсивности при  $\nu = 1$  и  $\nu = 2$  [8]. Данный результат связан с полным спиновым упорядочением при этих факторах заполнения. Существенным образом отличается отношение интенсивностей антистоксовых компонент при данных факторах заполнения (рис. 3b), при переходе от  $\nu = 2$  к  $\nu = 1$  интенсивность линии значительно ослабевает. Принимая во внимание тот факт, что интенсивность стоксовой компоненты не претерпевает значительного изменения, можно сделать вывод о сохранении силы осциллятора. Следовательно, причиной для столь сильного подавления сигнала антистоксовой компоненты является уменьшение времени жизни возбуждений. В отличие от фактора заполнения  $\nu = 2$ , при факторе заполнения  $\nu = 1$  спиновой экситон описан теоретически [14], в длинноволновом пределе SE имеет слабую квадратичную дисперсию. Изменение времени жизни возбуждений может быть вызвано рядом причин, одной из которых может являться образование минимума в законе дисперсии при k > 0 на факторе заполнения  $\nu = 2$ .

Рассмотрим зависимость рамановского сдвига спектральной линии антистоксовой компоненты SE от магнитного поля при различных углах наклона (рис. 3а). Как упоминалось выше, спиновой экситон не имеет существенных каналов распада и может наблюдаться в широком диапазоне магнитных полей и факторов заполнения. Нижняя граница диапазона по полю, в котором наблюдается данное возбуждение, определяется критерием экспериментального разрешения спектральных линий упруго рассеянного света лазера и неупруго рассеянного света на спиновом экситоне, в условиях эксперимента этой границе соответствует поле  $\sim 5 \,\mathrm{T}$ . Пунктирной линией на рис. За проведена экстраполяция к нулевому полю, откуда видно, что при всех углах наклона и во всем диапазоне факторов заполнения антистоксова компонента спинового экситона имеет Зеемановскую энергию с g-фактором, равным 1.97.

Главный аргумент, подтверждающий предположение о формировании антистоксовой компоненты SE в результате накопления долгоживущих возбуждений при накачке ДЭС, может быть получен из анализа зависимости интенсивности линии от мощности накачки. Очевидно, что интенсивность антистоксовой компоненты (I) является функцией мощности возбуждающего излучения дазера (W) и количества накопленных системой возбуждений SE (N), однако количество возбуждений N тоже является функцией мощности, следовательно, интенсивность линии должна иметь сверхлинейный характер зависимости от  $W: I(W) \sim W \cdot N(W)$ . На рисунке 3с представлены зависимости интенсивностей линий для двух образцов от мощности накачки в двойном логарифмическом масштабе. Результаты были получены для переходной области при ферромагнитном упорядочении на факторе заполнения  $\nu = 2$ . Для сравнения пунктирной линией проведены линейная и квадратичная зависимости от мощности. Как видно на графике (рис. 3с), для стоксовой компоненты характерна линейная зависимость от мощности накачки, следовательно, и для антистоксовой компоненты, полученной в результате термоактивации возбуждений, зависимость должна носить линейный характер. Однако из рис. Зс видно, что зависимости существенно нелинейные, что характерно для процесса с накоплением долгоживущих возбуждений.

Обнаружение в ДЭС уровней долгоживущих возбуждений вызывает интерес для исследования образования в системе так называемого нестационарного конденсата, формирующегося из основного (термодинамически равновесного) состояния при приложении внешнего возмущения. К появлению высококогерентного состояния, образующего конденсат, приводит накопление большого количества возбуждений с целым спином в узкой области фазового пространства. Данное явление при парамагнитном упорядочении на факторе заполнения  $\nu = 2$  было рассмотрено теоретически [15] и обнаружено экспериментально [16, 17]. В настоящей работе было показано, что при ферромагнитном упорядочении на факторе заполнения  $\nu = 2$  в ДЭС с сильным взаимодействием также образуются уровни долгоживущих возбуждений, способные накапливать большое количество SE.

2020

Аномальный сигнал антистоксового рассеяния ...

Потенциально такие уровни могут стать причиной для формирования нестационарного конденсата.

В заключение: в сильновзаимодействующих ДЭС на основе ZnO/MgZnO была обнаружена аномально сильная по интенсивности антистоксова компонента SE при низких температурах порядка 0.35 К. Данная спектральная линия формируется при ферромагнитном упорядочении в окрестности фактора заполнения  $\nu = 2$ . При переходе от фактора заполнения  $\nu = 2$  к фактору заполнения  $\nu = 1$  интенсивность линии сильно падает, что может быть вызвано изменением закона дисперсии при данных целочисленных факторах заполнения. При изменении спиновой конфигурации на факторе заполнения  $\nu = 2$  с ферромагнитной на парамагнитную спектральная линия исчезает, что связано с невозможностью формирования SE в условиях парамагнитного упорядочения на четных факторах заполнения. Показано, что происхождение данной линии не может быть вызвано термоактивацией возбуждений, а связано с формированием уровня долгоживущих возбуждений SE при ферромагнитном упорядочении на факторе заполнения  $\nu = 2$ .

Оптические эксперименты выполнены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках научного проекта #19-32-90203.

Коллектив авторов благодарит Российский научный фонд (грант #19-42-04119) за возможность использования приборного парка Центра Коллективного Пользования ИФТТ РАН.

1. E. Wigner, Phys. Rev. 46, 1002 (1934).

- 2. R. Willett, J. P. Eisenstein, H. L. Störmer, D. C. Tsui, A.C. Gossard, and J.H. English, Phys. Rev. Lett. 59, 1776 (1987).
  - 3. E.C. Stoner, Rep. Prog. Phys. 11, 43 (1947).
  - 4. Y. Kozuka, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki, Appl. Phys. Lett. 1, 011303 (2014).
  - 5. A. Tsukazaki, A. Ohtomo, M. Kawasaki, S. Akasaka, H. Yuji, K. Tamura, K. Nakahara, T. Tanabe, Kamisawa, T. Gokmen, J. Shabani, and Α. M. Shayegan, Phys. Rev. B 78, 233308 (2008).
  - 6. Y. Kozuka, A. Tsukazaki, D. Maryenko, J. Falson, C. Bell, M. Kim, Y. Hikita, H.Y. Hwang, and M. Kawasak, Phys. Rev. B 85, 075302 (2012).
  - 7. D. Marvenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki, Phys. Rev. B 90, 245303 (2014).
  - 8. A. B. Vankov, B. D. Kaysin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B 96, 235401 (2017).
  - 9. А.Б. Ваньков, Б.Д. Кайсин, И.В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ 107, 110 (2018).
- 10. A. B. Vankov, B. D. Kavsin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B 98, 121412(R) (2018).
- 11. А.Б. Ваньков, Б.Д. Кайсин, И.В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ 110, 268 (2018).
- 12. M. Dobers, K. von Klitzing, and G. Weimann, Phys. Rev. B 38, 5453 (1988).
- 13. Л. В. Кулик, В. Е. Кирпичев, УФН 176, 365 (2006).
- 14. C. Kallin and B. I. Halperin, Phys. Rev. B 30, 5655 (1984).
- 15. S. Dickmann, Phys. Rev. Lett. 110, 166801 (2013).
- 16. L.V. Kulik, A.V. Gorbunov, A.S. Zhuravlev, V. B. Timofeev, S. Dickmann, and I. V. Kukushkin, Sci. Rep. 4, 10354 (2015).
- 17. L.V. Kulik, A.S. Zhuravlev, S. Dickmann, A.V. Gorbunov, V.B. Timofeev, I.V. Kukushkin, and S. Schmult, Nat. Commun. 7, 13499 (2016).