

О возможности пространственного периодического распределения экситонов низкой плотности

© В.К. Мухоморов

Агрофизический научно-исследовательский институт,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: vmukhomorov@agrophys.ru

(Поступила в Редакцию 12 мая 2009 г.)

В окончательной редакции 10 июня 2009 г.)

Из решений зацепляющихся систем интегродифференциальных уравнений Боголюбова для функций распределения устанавливаются условия как по температуре, так и по концентрации, при которых пространственно однородное распределение экситонов самопроизвольно переходит в периодическое состояние с малой амплитудой. В основу анализа положено представление о существовании биекситонного потенциала взаимодействия. Критерий появления слабой периодической компоненты в распределении экситонов определяется из условия ветвления решений уравнений типа Гаммерштейна, как только параметры уравнения достигают критических значений.

Известно [1–3], что при определенных условиях (наиболее предпочтительно, когда эффективная масса одной частицы, например дырки m_h , много больше эффективной массы электрона m_e) между экситонами с суммарным спином $S = 0$ и его проекцией $S_z = 0$ возникает притяжение, приводящее к появлению связанных образований — биекситонов. Существование экситонных молекул с энергией связи много меньше энергии связи экситона строго доказано теоретически и имеет надежное экспериментальное подтверждение [4]. Существование парного потенциала притяжения между частицами может изменить их коллективные свойства и, в частности, привести к неустойчивости пространственно однородного распределения частиц [5–11].

Исследованию коллективных свойств экситонов посвящено достаточно много работ, авторы которых используют разные подходы. Так, например, появление различных особенностей в экситонных распределениях пытались объяснить Бозе-конденсацией экситонов [12], при этом предполагалось, что наличие Бозе-частиц может приводить к пространственной неустойчивости экситонной системы. Теоретически доказано [3], что Бозе-эйнштейновская конденсация экситонов в приближении среднего поля в принципе возможна, что в свою очередь может приводить к конденсату, напоминающему конденсат Бардина–Купера–Шриффера. При этом аналогом куперовских пар являются экситоны. Однако убедительных экспериментальных данных, подтверждающих такую возможность, пока не получено. В работе [13] предполагалось, что конденсированная фаза экситонов возникает не за счет Бозе-эйнштейновской конденсации, а в результате взаимного притяжения экситонов. В работах [14,15] исследовались решения нелинейных квантовых уравнений для распределения экситонов высокой концентрации с целью выявления возможных периодических структур. На возможность появления экситонных зарядовых волн плотности также указывалось в более ранней работе [16]. Как полагается в [3], атомарная

структура экситонов при высоких плотностях должна сопровождаться сильнейшей коллективизацией экситонов.

Образование неоднородной фазы экситонов в квантовых ямах обсуждалось в [17], где возникновение упорядоченной конденсированной фазы экситонов также связывалось с существованием притягивающего взаимодействия между экситонами. Влияние возникновения связанных пар экситонов на нелинейные кооперативные явления в системе когерентных экситонов анализировалось в [18]. В настоящее время существование биекситонов надежно установлено, в том числе и в одноосно деформированных кристаллах, например, в кремнии. Интересное физическое явление, связанное с коллективным поведением экситонов, было обнаружено в [19]. Экспериментально наблюдалось макроскопическое упорядочение в форме колец квазидвумерных экситонов в связанных квантовых ямах. Объяснение физических причин, приводящих к образованию кольцевых структур, приведено в [20]. В некоторых случаях кольца экситонов разбиваются на упорядоченные периодические фрагменты [21].

В настоящей работе исследуются условия, при которых однородное распределение экситонов становится неустойчивым, и на его фоне спонтанно появляется периодическая с малой амплитудой составляющая в их пространственном распределении. Будем рассматривать системы экситонов низкой плотности $10^{10} \leq n_{ex} \leq 10^{14} \text{ см}^{-3}$, так что экситонный уровень не исчезает вследствие эффектов экранирования, при этом температуры предполагаются достаточно низкими ($T \ll I_\sigma/k_B$), а время жизни экситонов значительно больше времени установления термодинамического равновесия в системе экситонов. При высоких плотностях экситон теряет свою индивидуальность.

При низких температурах и невысоких плотностях экситонов самым низким по свободной энергии состоянием является слабо взаимодействующий экситонный газ. Газ экситонов низкой плотности состоит из экситонов,

причем для изотропных невырожденных зон в полупроводниках молекулярная фаза экситонов всегда более стабильна, чем металлическая [22]. Коллективные свойства экситонов, по-видимому, определяются характером межэкситонного взаимодействия. Как продемонстрировано в работе [23], обобщенный модельный парный потенциал экситон-экситонного взаимодействия как функция расстояния r между центрами тяжести экситонов для случая невырожденных зон и произвольного отношения $\sigma = m_e/m_h$ ($0 \leq \sigma \leq 1$) изотропных эффективных масс электрона и дырки может быть аппроксимирован аналитической формой в виде потенциала Морзе

$$\Phi(r) = \kappa I_\sigma S_\sigma^2 \left\{ \exp[-2\delta S_\sigma^{1/2}(r - r_0(\sigma))/r_0(\sigma)] - 2 \exp[-\delta S_\sigma^{1/2}(r - r_0(\sigma))/r_0(\sigma)] \right\}, \quad (1)$$

где $r_0(\sigma) = 1.4 a_{\text{ex}}/S_\sigma$ — равновесное расстояние между экситонами в биекситоне, $a_{\text{ex}} = \varepsilon \hbar^2/\mu e^2$ — радиус экситона в основном состоянии; безразмерный параметр $S_\sigma = (1 + \sigma^2)/(1 + \sigma)^2$ учитывает особенности биекситона. За нуль отсчета энергии в (1) принята энергия двух экситонов, разнесенных на бесконечность друг от друга и с кинетическими энергиями, равными нулю. Потенциал (1) инвариантен при взаимном обмене электронов на дырки, дырок на электроны и σ на $1/\sigma$. $I_\sigma = \mu e^4/2\hbar^2 \varepsilon^2$ — энергия диссоциации экситона при заданном значении приведенной массы экситона $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$. В дальнейшем для определенности принимаем значение статической диэлектрической проницаемости среды $\varepsilon = 15$ и значение эффективной массы электрона $m_e = 0.25m_0$. Безразмерные параметры $\kappa = 0.351$ и $\delta = 1.44$ [23] совпадают со значениями потенциала взаимодействия атомов водорода.

Одним из наиболее эффективных методов изучения многочастичных систем является метод равновесных функций распределения частиц $F_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N)$, удовлетворяющих бесконечной последовательности зацепляющихся интегродифференциальных уравнений Боголюбова [5]. Сущность метода состоит во введении последовательности функций $F_1(\mathbf{r}_1), F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2), \dots, F_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N)$ и установления совокупности зацепляющихся стационарных уравнений для этих функций. Физический смысл равновесных функций распределения частиц $F_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N)$ состоит в том, что $F_N(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \dots d\mathbf{r}_N$ определяет вероятность нахождения каких-либо N частиц в объеме $d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \dots d\mathbf{r}_N$ N -частичного пространства в окрестности точки $\{\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N\}$.

Запишем первое уравнение цепочки интегродифференциальных уравнений для асимптотических (число экситонов $N \rightarrow \infty$, объем $V \rightarrow \infty$, при условии $N/V = \text{const}$) равновесных функций распределения экситонов

$$\frac{\partial F_1(\mathbf{r}_1)}{\partial \mathbf{r}_1} + \frac{n_{\text{ex}}}{\vartheta} \int \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_1} \Phi(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_2 = 0, \quad (2)$$

где $\vartheta = k_B T$, причем функции распределения удовлетворяют условиям

$$\lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V} \int F_1(\mathbf{r}_1) d\mathbf{r}_1 = 1, \\ \lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V} \int F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_2 = F_2(\mathbf{r}_1). \quad (3)$$

Здесь $F_1(\mathbf{r}_1)$ — одночастичная функция распределения, $F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ — бинарная функция распределения частиц, положение которых в пространстве задается векторами \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 ; $n_{\text{ex}} = N/V$ — равновесная концентрация экситонов. Второе уравнение цепочки стационарных уравнений можно записать как

$$\vartheta \frac{\partial F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)}{\partial \mathbf{r}_1} + \frac{\partial \Phi(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)}{\partial \mathbf{r}_1} F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + n_{\text{ex}} \int \frac{\partial \Phi(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)}{\partial \mathbf{r}_1} F_3(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) d\mathbf{r}_3 = 0. \quad (4)$$

Уравнения (2) и (4) не являются замкнутыми. Для расцепления уравнений (2) и (4) и нахождения одночастичной функции распределения $F_1(\mathbf{r}_1)$ введем упрощающие предположения. Учитывая, что бинарная функция является радиально симметричной, корреляцию в пространстве между экситонами можно учесть аппроксимацией следующего вида:

$$F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = G_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) F_1(\mathbf{r}_1) F_1(\mathbf{r}_2), \quad (5)$$

причем функция (5) удовлетворяет условию нормировки

$$\lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V^2} \int F_1(\mathbf{r}_1) F_1(\mathbf{r}_2) G_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 = 1.$$

Функция G_2 учитывает парную корреляцию в пространственном положении двух экситонов. Это приближение справедливо, если среднее расстояние между экситонами значительно больше эффективного размера экситона $a_{\text{ex}} = (3/4\pi n_{\text{ex}})^{1/3}$. Для низких плотностей экситонов заметного образования биекситонов не происходит и функцию распределения биекситонов можно не учитывать [3]. Для принятых концентраций экситонов это неравенство выполняется. Принимая во внимание граничное условие, связанное с ослаблением межчастичных корреляций при увеличении расстояния между частицами, введем дополнительное требование, накладываемое на радиальную корреляционную функцию: $G_2 \rightarrow 1$ при $|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| \rightarrow \infty$. Будем искать приближенную аналитическую форму корреляционной функции вблизи однородного распределения частиц, т.е. в нулевом приближении полагаем, что $F_1 = \text{const}$. Для этого подставим аппроксимацию (5) в уравнение (4) и, пренебрегая в этом уравнении функцией $F_3(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3)$ в интегральных слагаемых, получаем уравнение для определения функции G_2

$$\vartheta \frac{\partial G_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)}{\partial \mathbf{r}_1} + \frac{\partial \Phi(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)}{\partial \mathbf{r}_1} G_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) = 0. \quad (6)$$

После интегрирования (6) получаем

$$G_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) = C \exp[-\Phi(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)/\vartheta], \quad (7)$$

где C — постоянная интегрирования. Учитывая граничное требование ослабления корреляций на больших межчастичных расстояниях и условие нормировки функции $F_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, находим, что $C = 1$.

Используя аппроксимацию (5) и результат (7) из уравнения (2), связывающего простую и бинарную функции распределения частиц, получаем нелинейное интегральное уравнение, включающее в себя только одночастичную функцию распределения

$$\ln[F_1(\mathbf{r}_1)\lambda] + n_{\text{ex}} \int K(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)F_1(\mathbf{r}_2)d\mathbf{r}_2 = 0. \quad (8)$$

Здесь используется обозначение для эффективного потенциала

$$K(r) = 1 - \exp(-\Phi(r)/\vartheta), \quad (9)$$

позволяющего произвести некоторый учет коллективного взаимодействия частиц, λ — множитель Лагранжа — от координат не зависит и определяется из условия нормировки функции распределения (3).

Тривиальным решением нелинейного интегрального уравнения (8) является $F_1 = \text{const}$, соответствующее однородному в пространстве распределению частиц. При достаточно высоких температурах тривиальное решение является единственным решением интегрального уравнения (8). Однако уравнение (8) содержит параметры, которые могут изменяться. Известно, что [24,25], что нелинейные интегральные уравнения типа Гаммерштейна, к которым относится уравнение (8), могут иметь множество решений, отличающихся от тривиального, при достижении параметров уравнения некоторых критических значений, в частности, например параметра T . При непрерывном понижении температуры, как только параметр T становится равным критическому значению $T_{\text{cr}} = \vartheta_{\text{cr}}/k_B$, при фиксированной концентрации n_{ex} появляются новые решения уравнения (8). Для нахождения нетривиальных решений воспользуемся методом последовательных приближений. Разложим функцию $F_1(\mathbf{r})$, параметры λ и ϑ в ряд по степеням параметра $(1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})^{1/2}$

$$F_1(\mathbf{r}) = \chi_0 + (1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})^{1/2}\chi_1(\mathbf{r}) + (1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})\chi_2(\mathbf{r}) + \dots,$$

$$\lambda = \lambda_0 + (1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})^{1/2}\lambda_1 + (1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})\lambda_2 + \dots,$$

$$\frac{1}{\vartheta} = \frac{1}{\vartheta_{\text{cr}}} + \left(1 - \frac{\vartheta}{\vartheta_{\text{cr}}}\right) \frac{1}{\vartheta_{\text{cr}}} + \dots \quad (10)$$

Подставляя степенные ряды (10) в исходное уравнение (8) и собирая слагаемые при одинаковых степенях параметра $(1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})^{1/2}$, получим последовательность уравнений. В нулевом приближении по параметру $(1 - \vartheta/\vartheta_{\text{cr}})^{1/2}$ имеем уравнение

$$\ln(\lambda_0\chi_0) + n_{\text{ex}} \int \chi_0 K(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)d\mathbf{r}_2 = 0, \quad (11)$$

при дополнительном условии $\lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V} \int \chi_0 d\mathbf{r} = 1$ и в первом приближении

$$\chi_1(\mathbf{r}_1) + n_{\text{ex}} \int K(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)\chi_1(\mathbf{r}_2)d\mathbf{r}_2 = -\lambda_1/\lambda_0, \quad (12)$$

при условии $\lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V} \int \chi_1(\mathbf{r})d\mathbf{r} = 0$. Ограничимся случаем малых амплитуд $\chi_1 \ll \chi_0$ отклонений распределения частиц от пространственно однородного распределения. Для высоких температур уравнение (11) имеет единственное и точное решение $\chi_0 = \text{const}$, которое очевидно соответствует пространственно однородному распределению частиц.

При температурах ниже T_{cr} решения уравнения (12), отличающиеся от тривиального решения, появляются как решения однородного линейного интегрального уравнения

$$\chi_1(\mathbf{r}_1) + n_{\text{ex}} \int K(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)\chi_1(\mathbf{r}_2)d\mathbf{r}_2 = 0. \quad (13)$$

В общем случае уравнение (13) имеет непрерывный спектр собственных значений. Поэтому в качестве дополнительного условия потребуем, чтобы нетривиальное решение уравнения (13) имело периодический вид

$$\chi_1(\mathbf{r}) = A \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{r}), \quad (14)$$

где A — нормировочная постоянная. Подставляя (14) в однородное интегральное уравнение (13), в соответствии с [24] получим условие существования решений в данном классе функций

$$-n_{\text{ex}} \int K(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) \exp[-i\mathbf{k}(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)]d\mathbf{r}_2 \geq 1. \quad (15)$$

Условие обращения (15) в равенство для заданной концентрации экситонов n_{ex} определяет критическую температуру T_{cr} — точку ветвления решений уравнения (13), ниже которой однородное распределение экситонов становится неустойчивым, и на его фоне спонтанно появляется периодическая компонента в функции распределения с малой амплитудой. Условие (15) можно переписать в компактной форме

$$-n_{\text{ex}}\xi(k) \geq 1, \quad \xi(k) = \frac{4\pi}{k} \int_0^{\infty} K(r)r \sin(kr)dr. \quad (16)$$

Температура T_{cr} определяет границу неустойчивости однородного распределения экситонов по отношению к спонтанному появлению периодического распределения, область существования которого задается неравенством $T < T_{\text{cr}}$.

Оптимальное волновое число периодической компоненты k_{opt} определяется из условия минимальности Фурье-образа $\xi(k)$. Критерий (16) выполняется только при условии $\xi(k) < 0$. Решение будет устойчивым при наличии минимума $\xi(k)$ (рис. 1). Для потенциала (1)

уравнение (16) имеет несколько минимумов. Волновое число k_{opt} определяется из наиболее глубокого минимума. Нетрудно показать, что для всех волновых векторов других минимумов конфигурационная часть свободной энергии системы частиц лежит выше по шкале энергий по сравнению с $k = k_{\text{opt}}$ и является более тер-

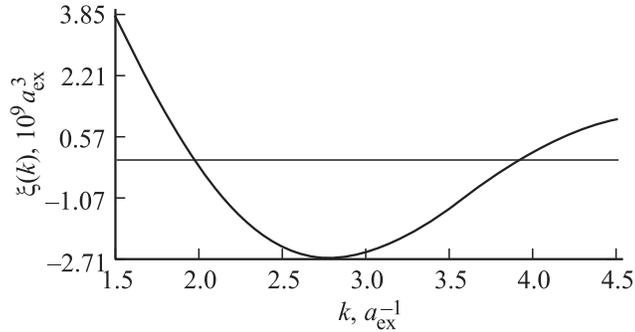


Рис. 1. Фурье-образ парного экситонного потенциала $\xi(k)$ для безразмерного параметра $\sigma = 0.05$ и критической температуры $T_{\text{cr}} = 2.339$ К.

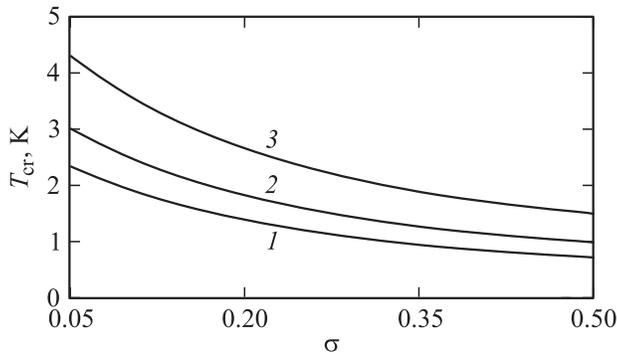


Рис. 2. Зависимость критической температуры появления периодической структуры в распределении экситонов от безразмерного параметра σ . Концентрация $n_{\text{ex}} = 10^{10}$ (1), 10^{12} (2) и 10^{14} cm^{-3} (3).

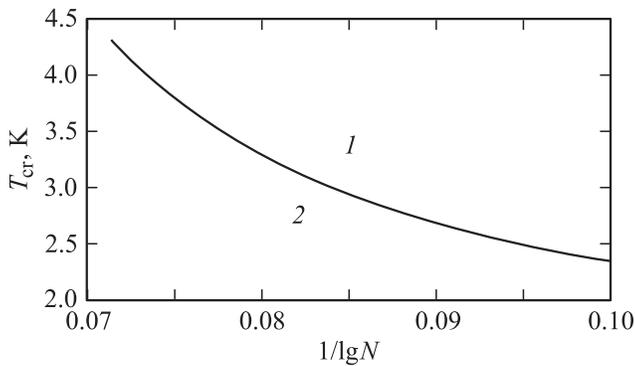


Рис. 3. Фазовая диаграмма для функции распределения экситонов при $\sigma = 0.05$. 1 — область однородного распределения экситонов, 2 — область появления периодической компоненты в распределении экситонов.

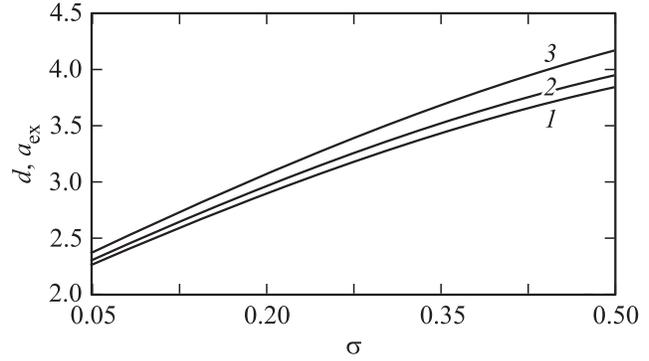


Рис. 4. Зависимость постоянной периодической структуры от безразмерного параметра σ . Концентрация $n_{\text{ex}} = 10^{10}$ (1), 10^{12} (2) и 10^{14} cm^{-3} (3).

модинамически устойчивой, чем однородное состояние. Волновое число k_{opt} дает значение периода $d = 2\pi/k_{\text{opt}}$ пространственно-периодического решения для системы экситонов.

На рис. 2 и 3 представлены зависимость критической температуры от величины безразмерного параметра σ и фазовая диаграмма, отделяющая область однородного распределения экситонов от появляющегося пространственно-периодического состояния. Уменьшение параметра σ приводит к расширению области периодического состояния экситонов на фазовой диаграмме. Рост концентрации экситонов также сопровождается повышением T_{cr} , что обусловлено усилением внутренних взаимодействий в газе экситонов. Как известно, с увеличением параметра σ в области $0 \leq \sigma \leq 1$ энергия связи биэкситона монотонно уменьшается [26], одновременно возрастает кинетическая энергия относительного движения экситонов, сопровождаемая возрастанием равновесного расстояния между экситонами. Аналогично поведение параметров, определяющих появление периодической компоненты в коллективном распределении экситонов. Увеличение параметра σ приводит к монотонному уменьшению T_{cr} и возрастанию периодической постоянной d (рис. 4). Характер поведения кривых на рис. 2 и 4 вполне реалистичен. Действительно, уменьшение параметра $\sigma \rightarrow 0$ соответствует предельному случаю образования периодической структуры в газе из атомов водорода (или щелочных металлов) и сопровождается уменьшением периодической постоянной и повышением критической температуры.

Автор признателен профессору G. Iadonisi за полезные дискуссии.

Список литературы

- [1] M.A. Lampert. Phys. Rev. Lett. **1**, 450 (1958).
- [2] А.И. Бобрышева. В сб.: Некоторые вопросы теории экситонов. Изд-во РИО АН МССР, Кишинев (1966). С. 18.

- [3] С.А. Москаленко. Введение в теорию экситонов большой плотности. Штинца, Кишинев (1983). С. 111.
- [4] В.Б. Тимофеев. УФН **175**, 315 (2005).
- [5] Н.Н. Боголюбов. Проблемы динамической теории в статистической физике. Избранные труды по статистической физике. Изд-во МГУ, М. (1979). Гл. 1.
- [6] С.В. Тябликов. ЖЭТФ **17**, 386 (1947).
- [7] H.J. Raveche, C.A. Stuart. J. Math. Phys. **17**, 1949 (1976).
- [8] I.E. Perakis. Nature (London) **417**, 33 (2002).
- [9] V.K. Mukhomorov. Physica Scripta **70**, 330 (2004).
- [10] G. Iadonisi, V.K. Mukhomorov, G. Cantele, D. Ninno. Phys. Rev. B **72**, 094 305 (2005).
- [11] В.Н. Бондарев, Д.В. Тарасевич. ФТТ **49**, 131 (2007).
- [12] L.S. Levitov, B.D. Simons, L.V. Butov. Phys. Rev. Lett. **94**, 176 404 (2005).
- [13] В.И. Сугаков. ФТТ **48**, 1868 (2006).
- [14] C.S. Lin, H.G. Luo, W.C. Wu. J. Phys.: Cond. Matter **18**, 9659 (2006).
- [15] A. Paraskevov, T.K. Khabarova. Phys. Lett. A **368**, 151 (2007).
- [16] X.M. Chen, J.J. Quinn. Phys. Rev. Lett **67**, 895 (1991).
- [17] V.I. Sugakov. Phys. Rev. B **76**, 115 303 (2007).
- [18] В.З. Трончу, К.В. Шура, А.Х. Ротару. ФТТ **44**, 226 (2002).
- [19] L.V. Butov, L.S. Leviov, A.V. Mintsev, B.D. Simons, A.C. Gossard, D.S. Chemla. Phys. Rev. Lett. **92**, 117401-1 (2004).
- [20] R. Raparport, G. Chen, D. Snoke, S.H. Simon, L. Pfeiffer, K. West, Y. Liu, S. Denev. Phys. Rev. Lett. **92**, 117 405, (2004).
- [21] L.V. Butov, A.C. Gosard, D.S. Chemla. Nature (London) **418**, 754 (2002).
- [22] Т. Райс, Дж. Хенсел, Т. Филлипс, Г. Томас. Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках. МИР, М. (1980). Гл. 3.
- [23] И.А. Карп, С.А. Москаленко. ФТП **8**, 285 (1974).
- [24] Н. Назаров. Нелинейные интегральные уравнения типа Гаммерштейна. Тр. СГУ. Сер. V-а. Математика. Вып. 33. Узгосиздат, Ташкент (1941). Гл. 1.
- [25] А.А. Власов. ЖЭТФ **18**, 840 (1948).
- [26] J. Adamowski, S. Bednarek, M. Suffezynski. Solid State Commun. **9**, 2037 (1971).