Распределение по размерам и концентрация островков конденсированной фазы экситонов в квантовой яме

© В.И. Сугаков

Институт ядерных исследований Национальной академии наук Украины, 03680 Киев, Украина

E-mail: sugakov@kinr.kiev.ua

(Поступила в Редакцию 25 ноября 2003 г.)

Представлена теория формирования областей конденсированной фазы при большой концентрации экситонов в квантовой яме. Конденсированная фаза может представлять собой экситонную или электроннодырочную жидкость. В области сосуществования конденсированной фазы и экситонного газа островки конденсированной фазы рассматриваются в форме дисков. Найдено совместное решение кинетического уравнения, которое определяет размеры островков, и уравнения диффузии для экситонов вне островков при стационарной накачке. При этом экситонный газ вне островков предполагается невырожденным. Учитывается взаимное влияние островков друг на друга через концентрационные поля экситонов в условиях, когда средний радиус островков намного превышает среднее расстояние между островками. Получены функция распределения островков по радиусу и плотность островков в зависимости от скорости создания экситонов и параметров системы. Функция распределения островков по радиусу уширяется в окрестности порога появления конденсированной фазы.

Работа финансировалась программой Национальной академии наук Украины "Нанофизика и наноэлектроника" и грантом № 02.07/147 Министерства образования и науки Украины.

Конденсация экситонов в квантовых ямах широко изучается как экспериментально [1–7], так и теоретически [8–13]. Главным образом эти исследования связаны с поисками бозе-эйнштейновской конденсации экситонов. Особенно перспективными являются исследования экситонов в двухъямных потенциалах, в которых при наложении электрического поля, перпендикулярного плоскости слоев, создаются экситоны с разнесенными по разным слоям электроном и дыркой и которые имеют большое время жизни, что позволяет создать высокую концентрацию экситонов. Так, в работе [7] в кристалле (GaAl)As с двойными квантовыми ямами на фоне широкой полосы излучения света межъямными экситонами с ростом интенсивности облучения наблюдалась узкая полоса, которая появлялась при пороговом значении облучения и сужалась при увеличении интенсивности облучения. При этом широкая полоса связывалась с излучением экситонов, локализованных на ловушках, а узкая линия — с излучением экситонов бозе-эйнштейновской конденсированной фазы.

Непрямой (межъямный) экситон имеет дипольный момент. Поэтому на больших расстояниях между непрямыми экситонами действуют диполь-дипольные силы отталкивания. В то же время силы притяжения ван-дерваальса между непрямыми экситонами являются довольно большими и в области порядка 4–5 радиусов экситона (конкретная величина зависит от параметров ям) могут превышать диполь-дипольное отталкивание. В результате в системе возможно возникновение конденсированной фазы экситонов без образования Бозе-конденсата. В ряде теоретических работ [8] показана возможность сосуществования фаз экситонной жидкости и экситонного газа в некоторой области параметров системы. Однако исследуемая система является неравновесной, что влияет на параметры конденсированной фазы. Так, вследствие конечности времени жизни экситонов в области параметров сосуществования фаз размеры областей конденсированной фазы должны быть ограниченными и в двумерной системе фазы должны быть расположены в виде островков, находящихся в среде экситонного газа. Распределение областей конценсированных экситонных фаз по размерам должно зависеть от кинетических параметров системы (времени жизни, скорости диффузии экситона и др.). Статистическая теория распределения по размерам электронно-дырочных капель в объемных полупроводниках изучалась в работах [14–17]. Для двумерных систем такая задача не рассматривалась.

В настоящей работе построена теория, описывающая распределение конденсированных фаз по размерам и концентрацию включений конденсированной фазы в зависимости от интенсивности накачки, температуры и параметров двумерной системы. Теория применима как для случая, когда новой фазой является экситонная жидкость, так и для случая электронно-дырочной жидкости. При этом параметрами теории являются энергия и поверхность, приходящиеся на электронно-дырочную пару в конденсированной фазе. Предполагается, что размеры конденсированной фазы намного превышают поперечные размеры системы и поэтому результаты применимы как для одноямного, так и для двухъямного потенциала. При расчетах учитывается неоднородное распределение экситонов в окрестности включений конденсированных фаз, возникающее вследствие диффузии экситонов, а также взаимодействие между различными островками конденсированных фаз, обусловленное влиянием одного островка на плотность экситонов в месте расположения другого. Экситонный газ в окрестности включений новой фазы предполагается невырожденным, а также считается, что расстояние между островками намного превышает размеры островков.

Модель системы. Решение уравнения Фоккера–Планка для функции распределения экситонных фаз по радиусу

Изучается двумерная система с большой концентрацией экситонов, создаваемой стационарной накачкой. При фазовых переходах первого рода зарождение новой фазы происходит путем возникновения и роста зародышей. Включения новой фазы (островки) должны иметь форму дисков, при которой реализуется минимум свободной энергии (рис. 1). Такие диски в двумерной системе являются аналогом капель в трехмерном случае. Для включений новой фазы существуют нижний критический радиус, определяемый поверхностной энергией, и верхний критический радиус, определяемый временем жизни экситона. Будем считать, что радиус дисков намного превышает длину свободного пробега экситонов. В этом случае пространственное распределение экситонов в окрестности островка может быть определено с помощью уравнения диффузии.

Размер островков определяется четырьмя процессами: захватом экситонов из окружающей диск области, испусканием экситонов из островка в окружающую среду, рождением экситонов внешним источником K, гибелью экситонов вследствие излучения света или разрушения различными механизмами. Обозначим число экситонов в островке через n, через \mathbf{R}_n — радиус островка, содержащего n экситонов (или n электронно-дырочных пар в случае электронно-дырочной жидкости). Пусть f(n) определяет функцию распределения островков по числу частиц. Учитывая приведенные выше процессы, кинетическое уравнение для функции распределения



Рис. 1. Распределение островков конденсированной фазы в плоскости ямы.

экситонов может быть представлено в виде

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = -j_{n+1} + j_n,\tag{1}$$

где *j_n* — ток вероятности экситонов,

$$j_n = (2\pi R_{n-1} W_{fi}(R_{n-1})c(R_{n-1}) + (n-1)s_0 K)f_{n-1} - 2\pi R_n W_{if}(R_n)c_i - \pi R_n^2 f_n/\tau;$$
(2)

 $c(R_n)$ и c_i — концентрации экситонов вне диска у его поверхности и внутри островка соответственно, $c_i = 1/s_0$, s_0 — площадь на один экситон внутри островка; $W_{fi}(R_n)$ и $W_{if}(R_n)$ — вероятности перехода экситона внутрь островка и наоборот, отнесенные к единице длины; τ — время жизни экситона.

Вследствие принципа детального равновесия существует связь между вероятностями переходов $W_{fi}(R_n)$ и $W_{if}(R_n)$:

$$\frac{W_{if}(R)}{W_{fi}(R)} = \frac{W_{if}(\infty)}{W_{fi}(\infty)} \exp\left(\frac{\alpha_2}{R}\right),\tag{3}$$

где $W_{fi}(\infty)$ и $W_{if}(\infty)$ — вероятности переходов в случае, когда границей раздела между конденсированной и газовой фазами является прямая линия, $W_{fi}(\infty)/W_{if}(\infty) = c_i/c_{\infty}, c_{\infty}$ — равновесная концентрация экситонов при прямолинейной границе раздела, ее значение может быть получено из равенства химических потенциалов экситона в газовой фазе и электроннодырочной пары в островке

$$c_{\infty} = \gamma \frac{m^{\bullet} \kappa T}{2\pi\hbar^2} \exp(-\phi/\kappa T), \qquad (4)$$

где φ — энергия конденсации на один экситон, m^{\bullet} — эффективная масса экситона, γ — кратность вырождения экситонного состояния, $\alpha_2 = \alpha_l s_0 / \kappa T$, α_l — поверхностная энергия на единицу длины окружности островка.

Введем функцию распределения по радиусу $f(R) = f_n dn/dR = 2\pi R_n f_n/s_0$. При большом числе экситонов в островке $(n \gg 1)$ кинетическое уравнение (1) f(R) может быть приведено к уравнению Фоккера–Планка

$$\frac{\partial f(\tilde{R})}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial \tilde{R}} \left(A(\tilde{R}) f(\tilde{R}) - B(\tilde{R}) \frac{\partial}{\partial \tilde{R}} f(\tilde{R}) \right), \quad (5)$$

где

$$A(\tilde{R}) = \left(\nu \left(\tilde{c}(\tilde{R}) - \tilde{c}_{\infty} \exp(\alpha/(\tilde{R}T)) \right) + \frac{\tilde{R}}{2} \left(\tilde{c}_{K} - 1 \right) \right) \frac{1}{\tau},$$
(6)
$$B(\tilde{R}) = \left(\nu \left(\tilde{c}(\tilde{R}) - \tilde{c}_{\infty} \exp(\alpha/(\tilde{R}T)) \right) + \frac{\tilde{R}}{2} (1 + \tilde{c}_{K}) \right) \frac{1}{4\pi\tau},$$
(7)

величина $\tilde{c}_K = K\tau$ определяется накачкой и равна концентрации экситонов, которая реализовалась бы в системе при отсутствии образования фаз.

В формулах (5)–(7) введены безразмерные переменные

$$\tilde{R} = R/\sqrt{s_0}, \quad \tilde{c}(\tilde{R}) = c(\tilde{R})s_0, \quad v = W_{fi}\tau\sqrt{s_0}, \quad (8)$$

 φ и α выражены в единицах температуры.

В стационарном случае решение уравнения (5) имеет вид

$$f(\tilde{R}) = f_0 \exp\left(\int_0^R A(\tilde{R})/B(\tilde{R})d\tilde{R}\right).$$
 (9)

Учет неоднородного распределения экситонов в окрестности диска, а также влияние других дисков на функцию распределения содержатся в величине концентрации экситонов на границе диска c(R).

Пространственное распределение экситонов в окрестности островка конденсированной фазы

Уравнение диффузии для двумерного распределения экситонов в стационарном случае имеет вид

$$\Delta_2 \tilde{c}(\tilde{\rho}) - \tilde{c}(\tilde{\rho})/\tilde{l} + K = 0, \qquad (10)$$

где Δ_2 — оператор Лапласа в двумерном случае, $\tilde{l} = (D\tau/s_0)^{1/2}$ — безразмерный коэффициент диффузии свободных экситонов, D — коэффициент диффузии экситонов. Уравнение (10) должно быть решено с граничными условиями, которые будут определены далее на каждом островке. Экситонная концентрация в окрестности некоторого островка определяется не только параметрами рассматриваемого островка, но зависит также от других островков. Если островки расположены хаотично, создаваемые ими концентрационные поля имеют цилиндрическую симметрию. Тогда решение уравнения (10) может быть представлено в виде

$$\tilde{c}(\tilde{\boldsymbol{\rho}}) = c_K + \sum_{\mathbf{n}} a_{\mathbf{n}} K_0 \big((\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}) / l \big), \qquad (11)$$

где $c_K = K\tau$, $K_0(x)$ — модифицированная функция Бесселя, ρ_n — радиус-вектор, определяющий положение **n**-го островка.

Рассмотрим концентрационное поле экситонов в окрестности некоторого островка, например островка с $\mathbf{n} = \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}} = 0$. Представим (11) в виде

$$\tilde{c}(\tilde{\boldsymbol{\rho}}) = c_0 + a_0 K_0(\rho/l), \qquad (12)$$

где

$$c_0 = c_K + \sum_{\mathbf{n}\neq 0} a_{\mathbf{n}} K_0 \big((\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}) / l \big).$$
(13)

Далее будем предполагать, что вклад в концентрационное поле, создаваемое другими островками в месте расположения данного, формируют многие островки. Тогда в последнем члене формулы (13) можно положить $\rho \approx 0$ и заменить сумму по **n** интегралом. В результате получим

$$c_0 = c_K + 2\pi \bar{a} c_N l^2, \tag{14}$$

где $c_N = \frac{N}{S}$ — концентрация островков, N — их полное число, S — поверхность системы, \bar{a} — значение коэффициента a_n , усредненное по многим островкам. При этом мы пренебрегаем корреляцией в расположении островков, а сделанное приближение соответствует приближению самосогласованного поля.

Граничное условие на границе островка определяется из закона сохранения частиц: поток частиц, падающих на островок, должен равняться разности числа экситонов, захватываемых островком и освобождаемых с островка,

$$2\pi R D \frac{\partial c(R)}{\partial R} = 2\pi R \big(W_{fi} c(R) - W_{if} c_i \big).$$
(15)

Используя (3), (12) и (15), получим значение коэффициента a_0

$$a_0(R) = -\frac{\nu \left(c_0 - c_\infty \exp(\alpha/R)\right)}{K_1(R/l)l + \nu K_0(R/l)}.$$
 (16)

Усредним левую и правую части уравнения (16) на функции распределения островков по радиусу f(R). Будем предполагать, что функция распределения имеет резкий максимум при $R = \bar{R}$. Далее это предположение будет подтверждено. Тогда в соотношении (16) после усреднения получим \bar{a} , а в правой части (16) положим \bar{R} вместо R. Из полученного выражения, используя зависимость c_0 от \bar{a} , согласно (14) найдем \bar{a}

$$\bar{a} = -\frac{\nu \left(c_K - c_\infty \exp(\alpha/\bar{R})\right)}{lK_1(\bar{R}/l) + \nu K_0(\bar{R}/l) + 2\pi c_N \nu l^2}.$$
 (17)

Таким образом, из (9) следует

$$f = f_0 \exp(-F(c_N, R)),$$

где

$$F(c_N, R) = 4\pi$$

$$\times \int_{0} \frac{2\nu \left(c(R) - c_{\infty} \exp(\alpha/R)\right) + R(c_{K} - 1)}{2\nu \left(c(R) + c_{\infty} \exp(\alpha/R)\right) + R(c_{K} + 1)} R dR, \quad (18)$$

$$c(R) = c_K + 2\pi c_N \bar{a}l^2 + a_0(R)K_0(R/l), \qquad (19)$$

 $a_0(R)$, \bar{a} определяются формулами (14), (16) и (17). При резком максимуме функции распределения средний радиус совпадает с наиболее вероятным и определяется из условия

$$\frac{\partial F(c_N, R)}{\partial R} = 0.$$
 (20)

Вероятность системе иметь N островков с радиусами R_1, R_2, \ldots, R_N равна

$$W(N, R_1, R_2, \dots, R_N) \approx \exp\left(-\sum_i F(c_N, R_i)\right).$$
 (21)

8 Физика твердого тела, 2004, том 46, вып. 8

После интегрирования по радиусам островков получим вероятность распределения по числу островков

$$W(N) = W_0 \exp(-\Phi(N)), \qquad (22)$$

где

$$\Phi(N) = -N\ln z(c_N); \quad z(c_N) = \int_0^\infty \exp\left(-F(c_N, R)\right) dR.$$
(23)

Наиболее вероятная концентрация островков определяется условием

$$\frac{d\Phi}{dN} = 0. \tag{24}$$

Разложим функцию распределения $F(c_N, R)$ в ряд в окрестности наиболее вероятного радиуса

$$F(c_N, R) = F(c_N, \bar{R}) + b(R - \bar{R})^2 + \dots$$
 (25)

В этом случае

$$\Phi(N) = S\psi(c_N), \tag{26}$$

$$\psi(c_N) = c_N \bigg(F(c_N, \bar{R}) - \frac{1}{2} \ln(\pi/b) \bigg).$$
(27)

При фиксированной поверхности квантовой ямы (S) дифференцирование по N в (24) эквивалентно дифференцированию по c_N . Формулы (18), (24) и (26) определяют средний радиус островков конденсированной экситонной фазы и их среднюю концентрацию.

3. Расчеты и обсуждение

Функция $\psi(c_N)$ имеет минимум при некотором значении c_N , которое определяет наиболее вероятное значение концентрации островков. Качественно наличие оптимального значения островков может быть получено из следующих соображений. В области сосуществования конденсированной и газовой фаз плотность экситонов в конденсированной фазе выше плотности, создаваемой внешним источником. Поэтому островки для поддержания своих размеров должны черпать экситоны из окружающих их областей. Верхний радиус островков должен быть ограничен, поскольку приток экситонов определяется линейными размерами границы островка, а число погибших экситонов пропорционально площади островка. Вследствие этого плотность островков не может быть слишком высокой. Плотность островков не может быть также очень низкой, поскольку при низкой плотности имеется вероятность зарождения нового островка в системе. В результате зависимость $\psi(c_N)$ (26) имеет минимум при некотором значении с_N, которое определяет среднее значение плотности островков. Проведен численный анализ параметров островков из решения уравнения (24) в широкой области изменения внутренних и внешних параметров. Значение величины накачки определялось параметром $c_K = K\tau$, т.е. концентрацией экситонов, создаваемой накачкой в отсутствие



Рис. 2. Зависимость среднего радиуса \bar{R} от накачки c_K . Параметры системы следующие: $\varphi = 15$ K, $\alpha_2 = 4$ K, $\nu = 10000$. $I - l_D = 1000, 2 - l_D = 1500$.



Рис. 3. Зависимость среднего расстояния между островками d от накачки c_K . Параметры системы те же, что на рис. 2.

конденсированной фазы. Главные результаты можно сформулировать следующим образом.

Островки новой фазы появляются, если накачка больше некоторого критического значения, которое зависит от "поверхностной" энергии, температуры и времени жизни экситонов.

Средний радиус островков растет с ростом накачки (рис. 2), а среднее расстояние между ними ($d = 1/\sqrt{c_N}$) при этом уменьшается (рис. 3). Но радиус увеличивается быстрее, чем уменьшается расстояние. На рисунках результаты представлены в безразмерных единицах. Единица длины (расстояние между частицами в конденсированной фазе) имеет порядок нескольких экситонных радиусов. Для типичных параметров полупроводников это величина порядка (100-300) Å. "Поверхностная" энергия островков конденсированной фазы в настоящее время неизвестна и рассматривалась как параметр. При значениях параметров, указанных в подписях к рисункам, пороговое значение плотности экситонов равно $2 \cdot 10^9 \, {\rm cm}^{-2}$. Это значение ниже критической плотности для бозе-эйнштейновской конденсации при выбранной температуре, что оправдывает использование статистики



Рис. 4. Экситонная плотность вне островков c_0 как функция накачки. Параметры системы те же, что на рис. 2.



Рис. 5. Функция распределения островков по радиусу для различных значений накачки: $\varphi = 15$ K, $\alpha_2 = 4$ K, $\nu = 10000$. $I - c_K = 0.004$, $2 - c_K = 0.008$, $3 - c_K = 0.012$.

выржденного газа для экситонов. Хотя для описания областей внутри островков, где концентрация экситонов выше, учет бозе-эйнштейновской статистики может быть существенным. Однако, как уже указывалось, при рассмотрении задачи внутренняя область островков учитывалась введением феноменологических параметров (энергии и поверхности, приходящихся на электроннодырочную пару).

Доля экситонов, находящихся в островках, растет быстрее с ростом накачки, чем часть экситонов, находящихся в газовой фазе (рис. 4). Плотность экстонов в газовой фазе (c_0) меньше в несколько раз по сравнению с плотностью экситонов в случае, если бы фазообразование отсутствовало (c_K).

Из рис. 5 видно, что функция распределения является острой функцией радиуса. С уменьшением накачки функция распределения становится шире. Это связано с увеличением роли флуктуаций при уменьшении размеров системы. Энергия на один экситон должна зависеть от размеров, в особенности при пороговых накачках, когда радиус островков мал. Этот факт должен приводить к увеличению ширины излучения при пороговых накачках. Таким образом, сужение полос излучения с увеличением интенсивности накачки, наблюдаемое в некоторых экспериментах [7], не может быть единственным признаком бозе-эйнштейновской конденсации. Оно может быть также связано со значительной ролью флуктуаций радиусов островков малых размеров при накачках в окрестности порога возникновения конденсированной фазы.

При накачках большой интенсивности, когда средний радиус островков становится сравнимым с расстоянием между островками, приближение среднего поля, примененное в настоящей работе, становится неприменимым. В этом случае должна учитываться корреляция в положении островков. Возможность периодического распределения островков при больших накачках требует дополнительного исследования.

4. Заключение

Представленная теория определяет в двумерном случае средний радиус островков конденсированной фазы экситонов, среднее расстояние между островками и функцию распределения островков по радиусу в зависимости от интенсивности накачки, температуры и параметров кристалла, таких как энергия связи и плотность экситонов в конденсированной фазе, "поверхностная" энергия, коэффициент диффузии и время жизни экситонов. Функция распределения островков по радиусу сужается с увеличением накачки.

Список литературы

- T. Fukuzava, E.E. Mendez, J.M. Hohg. Phys. Rev. Lett. 64, 3066 (1990).
- [2] L.V. Butov, A. Zrenner, G.A. Abstreiter et al. Phys. Rev. Lett. 64, 3066 (1994).
- [3] L.V. Butov, A.C. Gossard, D.S. Chemla. Nature 418, 751 (2001).
- [4] D. Snoke, S. Donev, Y. Liu, L. Pfeiffer, K. West. Nature 418, 754 (2001).
- [5] А.В. Ларионов, В.Б. Тимофеев, И. Хвам, К. Соеренсен. Письма в ЖЭТФ 75, 233 (2002).
- [6] B.M. Ashkinadze, V. Voznyy, E. Cohen, A. Ron, V. Umansky. Phys. Rev. B 65, 073 311 (2002).
- [7] А.А. Дремин, А.В. Ларионов, В.Б. Тимофеев. ФТТ 46, 168 (2004).
- [8] Ю.Е. Лозовик, О.Л. Берман. Письма в ЖЭТФ 64, 526 (1996).
- [9] H. Chu, Y.C. Chang. Europhys. Lett. 35, 535 (1996).
- [10] P.B. Littlewood, Zhu Xuejun. Physica Scripta T68, 56 (1996).
- [11] P. Stenius, W. Zhao, A. Imamoglu. Phys. Stat. Sol. (a) 164, 365 (1997).
- [12] Z.G. Koinov. J. Phys. Condens. Matter. 11, L127 (1999).
- [13] Kuan-Ming Hung, Chun-Wei Tseng, H.-H. Cheng. Physica B 298, 431 (2001).
- [14] R.N. Silver. Phys. Rev. B 11, 1569 (1975).
- [15] В.С. Багаев, Н.В. Замковец, Л.В. Келдыш, Н.Н. Сибельдин, В.А. Цветков. ЖЭТФ 70, 1501 (1976).
- [16] R.M. Westerwelt. Phys. Stat. Sol. (b) 74, 727 (1976).
- [17] V.I. Sugakov. Mol. Cryst. Liq. Cryst. 384, 1 (2002).