Письма в ЖЭТФ, том 115, вып. 1, с. 35 – 39 © 2022 г. 10 января

Стимулированная Бозе конденсация электронно-дырочных пар в сильно вырожденном полупроводнике при комнатной температуре

П. П. Васильев[1)]

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 октября 2021 г.
После переработки 8 ноября 2021 г.
Принята к публикации 20 ноября 2021 г.

Описан механизм и построена упрощенная модель конденсации электронно-дырочных пар в фазовом пространстве в сильно вырожденном полупроводнике при участии резонансных фотонов электромагнитного поля. Продемонстрировано, что в таком полупроводнике при наличии фотонов в экситонной части спектра возможно формирование квазистационарного Бозе состояния коллективно спаренных электронов и дырок. При этом необходимая плотность носителей в несколько раз должна превосходить пороговую плотность возникновения лазерного излучения. Описанный эффект позволяет объяснить механизм появления сверхизлучающего квантового перехода и неравновесного БКШ-подобного электронно-дырочного состояния в полупроводниковых гетероструктурах при комнатной температуре, экспериментально наблюдавшихся ранее.

DOI: 10.31857/S1234567822010062

Коллективные свойства электронов и дырок в полупроводниках и возможность их Бозе конденсации привлекают большое внимание исследователей в течение долгого времени с момента публикации пионерских работ Л. В. Келдыша с сотрудниками в середине 1960-х гг. [1, 2]. Электроны и дырки в полупроводниках, по отдельности будучи фермионами, могут образовывать связанные состояния, которым при опредленных условиях присущи свойства статистики Бозе. В случае низких плотностей эти связанные состояния являются экситонами, а в режимах высокой плотности ансамбль коллективно спаренных электронов и дырок имеет сходство с системой куперовских пар в сверхпроводнике, и его часто называют e-h БКШ-подобным состоянием. При помещении электронно-дырочного ансамбля в одномодовый оптический микрорезонатор возможно появление экситонных состояний, связанных с фотонами резонансного поля – поляритонов. Бозе конденсация экситонов и экситон-поляритонов наблюдалась при низких температурах в некоторых полупроводниках, например, в Cu_2O и GaAs/AlGaAs квантово-размерных структурах [3–6].

Динамика Бозе конденсации экситонов при взаимодействии с фотонами теоретически изучалась в ряде работ [7–9]. Теоретическая модель на основе скоростных уравнений продемонстрировала возможность спонтанной конденсации экситонов, образованными с помощью резонансной накачки лазерным полем, при криогенных температурах. При этом было обнаружено, что кинетика дефазировки и потери когерентности конденсата сильно зависит от его плотности. Причем время дефазировки, а, следовательно, и время жизни конденсата, увеличивается пропорционально квадрату его плотности. Из этого следует, что разрушение когерентности при столкновениях внутри ансамбля не происходит, несмотря на увеличение частоты соударений при увеличении плотности конденсата [8].

В наших предыдущих работах [10–13] был экспериментально обнаружен факт возникновения неравновесного БКШ-подобного электронно-дырочного состояния в полупроводниковых гетероструктурах при комнатной температуре в процессе сверхизлучающего фазового перехода. При этом оказалось, что результаты экспериментов хорошо объясняются статистическими свойствами квазичастиц, получаемых при преобразовании Боголюбова, а не стандартными свойствами электронов и дырок, не связанных друг с другом. Условия и механизм возникновения такого необычного электронно-дырочного состояния, обладающего дальним порядком [14], при комнатной температуре был качественно описан в нашей предыдущей работе [12]. Двумя факторами, играющими решающую роль, являются высокая плотность электронов и дырок (сильное вырождение полупроводника) и наличие резонансных фотонов поля в экситонной части спектра, выполняющих

1)e-mail: peter@lebedev.ru

роль посредника при формировании когерентного состояния. Рекомбинация неравновесного БКШ-подобного состояния наблюдается в виде мощных фемтосекундных импульсов сверхизлучения. Причем когерентность сверхизлучения превосходит когерентность лазерного излучения, наблюдающегося в этих же образцах, а распространение импульсов в среде имеет сверхсветовую природу [14, 15].

Попытка объяснить эти экспериментальные данные была предпринята нами ранее [16], когда была показана принципиальная возможность конденсации электронно-дыпочных пар в сильно вырожденном полупроводнике при комнатной температуре. Однако, динамика этого процесса изучена не была. В данной работе впервые построена простейшая модель, которая позволяет качественно понять механизм формирования квазистабильного бозонного состояния в сильно вырожденной электронно-дырочной системе. В дополнение к результатам, опубликованным ранее, в явном виде продемонстрировано, что в отсутствие фотонов резонансного электромагнитного поля сверхизлучающее состояние не формируется ни при каких угодно больших плотностях электронов и дырок.

Зонная диаграма в нашем случая схематически изображена на рис. 1. Будем рассматривать случай

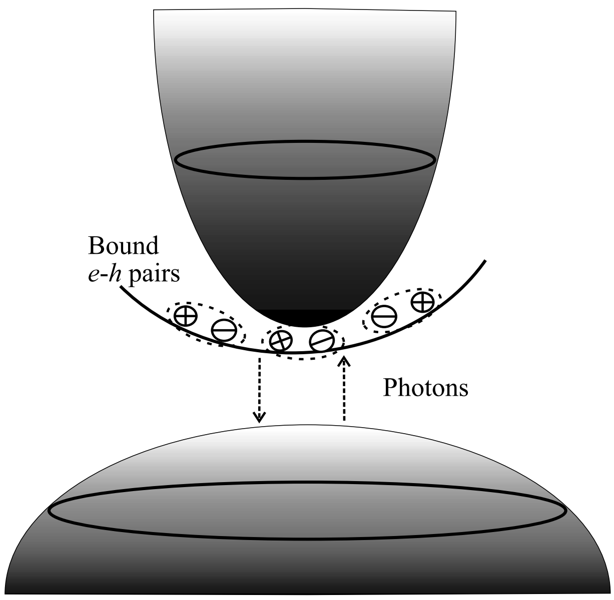

Рис. 1. Схематическое изображение зонной структуры

собственного GaAs при сильной токовой накачке, соответствующий экспериментальной ситуации в указанных публикациях. Имеется сильновырожденный ансамбль электронов и дырок. При этом выполняется критерий квантового вырождения, когда тепловая длина де Бройля превосходит среднее расстояние между электронами и дырками [17]. Эта диаграмма носит исключительно иллюстративный характер, чтобы показать наличие системы свободных электронов и дырок в зонах и системы связанных пар (бозонов) и их взаимное расположение на шкале энергий. В рамках нашей упрощенной модели мы не рассматриваем конкретные зависимости энергии от квазиимпульса. Для нашего механизма устойчивости бозонного состояния важно наличие заполненной зоны проводимости сверху от бозонного уровня, находящегося в экситонной части спектра. Будем рассматривать одновременно фермионный ансамбль внутри зон и ансамбль связанных электронов и дырок в экситонной части спектра. Перекачка фермионов в бозоны происходит с помощью фотонов поля, как предполагалось ранее [12, 16]. Для создания численной модели мы разделим зону проводимости и валентную зону на ряд эквидистантных энергетических уровней $\{E_i\}$.

Нулевой уровень E_0 соответствует дну зоны проводимости. Электроны и дырки на этом уровне энергии будут взаимодействовать с фотонами поля и формировать связаные пары (бозоны) в соответствии с предложенной ранее моделью [10, 12] .Внутризонная динамика носителей заряда хорошо изучена [18–20]. Динамика распределения электронов $f_e(E_i)$ и дырок $f_h(E_i)$ на уровнях $\{E_i\}$, $i > 0$, описывается уравнениями Больцмана [18, 20]

$$\frac{df_e(E_ei)}{dt} = \sum_{ej} \Gamma^e_{\rm in}(E_{ei}, E_{ej}) f_e(E_{ej})(1 - f_e(E_{ei})) -$$

$$- \sum_{ej} \Gamma^e_{\rm out}(E_{ei}, E_{ej}) f_e(E_{ei})(1 - f_e(E_{ej})) -$$

$$- \frac{f_e(E_{ei}) - F_e(\mu_e, T_{eh})}{\tau_{cc}}, \qquad (1)$$

$$\frac{df_h(E_{hi})}{dt} = \sum_{hj} \Gamma^h_{\rm in}(E_{hi}, E_{hj}) f_h(E_{hj})(1 - f_h(E_{hi})) -$$

$$- \sum_{hj} \Gamma^h_{\rm out}(E_{hi}, E_{hj}) f_h(E_{hi})(1 - f_h(E_{hj})) -$$

$$- \frac{f_h(E_{hi}) - F_h(\mu_h, T_{eh})}{\tau_{cc}}, \qquad (2)$$

где $F_{e,h}$ – распределение Ферми с энергией $E^F_{e,h}$ и температурой T_{eh}, а скорости рассеяния $\Gamma^e_{\rm in}$, $\Gamma^h_{\rm in}$, $\Gamma^e_{\rm out}$, $\Gamma^h_{\rm out}$ определяются взаимодействиями с фононами согласно [18, 20]. Поскольку характерное время соударения носителей заряда τ_{cc} составляет около 50 фс в

GaAs при комнатной температуре, функции распределения внутри зон практически мгновенно становятся фермиевыми. Энергии Ферми для электронов и дырок, отсчитываемые от дна зон, зависят от плотности носителей и определяются формулами

$$n_0 = N_e F_{\frac{1}{2}}(\eta_e), \quad N_e = 2\left[\frac{2\pi m_e^* kT}{h^2}\right]^{3/2},$$

$$n_0 = N_{hh} F_{\frac{1}{2}}(\eta_h) + N_{lh} F_{\frac{1}{2}}(\eta_h),$$

$$N_{hj} = 2\left[\frac{2\pi m_{hj}^* kT}{h^2}\right]^{3/2},$$

где $\eta_c = E_c^F/kT_c$, $c = e$, h, n_0 есть плотность носителей, $F_{1/2}$ есть интеграл Ферми половинного порядка, а индекс j соответствует тяжелым и легким дыркам. Скоростные уравнения для функции распределения f_0 самого нижнего уровня $i = 0$, для числа бозонов n_x и числа фотонов поля n_p могут быть записаны в виде [21–23]:

$$\frac{df_0}{dt} = -\frac{f_0 - F_e^0}{\tau_{cc}} + C(1 - f_0)n_x - K f_0 n_p, \qquad (3)$$

$$\frac{dn_x}{dt} = -\frac{n_x}{\tau_{sp}} + K_0 f_0 n_p - \sum_j \Gamma_j n_x, \qquad (4)$$

$$\frac{dn_p}{dt} = -\frac{n_p}{\tau_{ph}} + K_1 n_x n_p. \qquad (5)$$

Уравнение (3) описывает установление фермиевской функции распределения на нулевом уровне энергии за счет быстрых соударений, увеличение числа электронов на этом уровне за счет распада бозонов и их уменьшение за счет стимулированной генерации бозонов резонансными фотонами. Уравнение (4) описывает процесс спонтанной рекомбинации бозонов, стимулированную генерацию бозонов фотонами поля и распад бозонов на электрон и дырку за счет соударений. Последний процесс сильно зависит от степени вырождения полупроводника или, другими словами, от энергии Ферми электронов и дырок. Этот механизм подробно описан в [12, 24]. Поскольку при распаде бозона необходимо наличие свободных уровней для электрона и дырки одновременно, то отсутствие свободного уровня хотя бы для одной частицы делает распад бозона невозможным. В нашем случае достаточно сильного вырождения электронов. Распад бозонов происходит за счет соуданения друг с другом, со свободными электронами и дырками, а также при взаимодействии с акустическими и оптическими фононами. Точно рассчитать динамику всех этих процессов достаточно сложно. В данной упрощенной модели мы используем простое соображение, состоящие в том, что суммарная скорость распада бозонов $\sum_j \Gamma_j$ в уравнении (4) пропорциональна числу свободных уровней в зоне проводимости. Число свободных уровней существенно уменьшается при увеличении E_e^F и стремится к нулю, когда все уровни заняты [12]. Другими словами, скорость распада бозонов $\sum_j \Gamma_j$ должна зависеть от степени вырождения (плотности носителей). Максимальная энергия, которую может получить электрон при распаде бозона, составляет величину энергии оптического фонона, которая составляет $\hbar\Omega = 36$ мэВ в GaAs. Поэтому будем считать, что скорость распада пропорциональна числу свободных уровней в полосе $\hbar\Omega$ выше дна зоны проводимости, или

$$\sum_j \Gamma_j = 3\left[\frac{2}{3}(\hbar\Omega)^{3/2} - \int_0^{\hbar\Omega} \frac{\sqrt{y}dy}{1 + \exp(y - E_e^F)}\right].$$

Уравнение (5) описывает динамику фотонов поля, причем первый член описывает уменьшение числа фотонов за счет рассеяния, излучения во внешнюю среду и т.д. со временем жизни τ_{ph}, а второй член – стимулированную генерацию фотонов за счет распада бозонов. Коэффициенты K, K_0, и K_1 пропорциональны коэффициенту оптического усиления в GaAs.

Уравнения (1)–(5) численно решались при разных начальных плотностях носителей n_0, менявшейся в широком диапазоне от 5×10^{17} до 7×10^{18} см$^{-3}$. Этот диапазон охватывает типичные значения при лазерной генерации ($1 - 2 \times 10^{18}$ см$^{-3}$) и характерные величины плотностей при сверхизлучающем фазовом переходе, измеренные экспериментально ($5–6 \times \times 10^{18}$ см$^{-3}$) [10, 13, 24]. Результаты вычислений представлены на рис. 2–5. На рисунках 2 и 3 показаны вычисленные зависимости плотности бозонов n_x и фотонов n_p от энергии Ферми электронов, нормированной на величину kT. Режим лазерной генерации в гетероструктурах на GaAs соответствует нормированной энергии Ферми не более 2, тогда как в режим сверхизлучения эта величина превосходит 5. Плотность бозонов экспоненциально растет с энергией Ферми. На рисунке 3 отчетливо видно, что при определенном значении энергии Ферми интенсивность рекомбинационного свечения бозонов резко увеличивается. Эта точка соответствует наступлению режима сверхизлучения в системе.

Такое поведение числа бозонов и плотности фотонов можно объяснит следующим. При плотностях носителей заряда $n_0 \sim 10^{17} - (1–2) \times 10^{18}$ см$^{-3}$ (спонтанное и лазерное излучение) вырождение зоны проводимости недостаточно сильно (энергия Ферми $E_e^F < 5$). В зоне проводимости в полосе энергий $\sim\hbar\Omega$ достаточно свободных уровней, которые занимают электроны при сверхбыстром разрушении

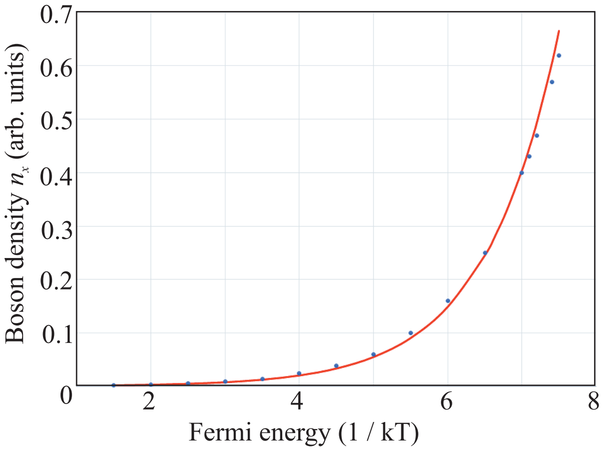

Рис. 2. (Цветной онлайн) Плотность бозонов как функция нормировонной энергии Ферми электронов. Красная линия соответствует зависимости $\sim \exp(E_e^F)$

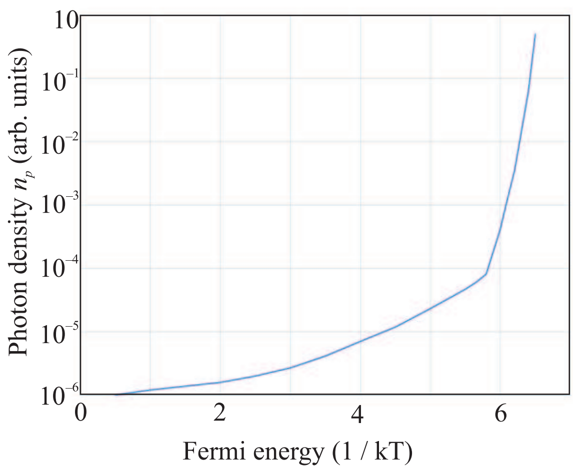

Рис. 3. (Цветной онлайн) Плотность фотонов излучения бозонов в зависимости от нормированной энергии Ферми элктронов. Критическая энергия Ферми $\mu_{\rm cr} \approx 5.8$ соответствует резкому росту интенсивности излучения

бозонов. Поэтому число бозонов исчезающе мало, что и понятно, так как температура среды составляет 300 K. Однако при повышении плотности до $n_0 \sim (5-6) \times 10^{18}\,\text{см}^{-3}$ вырождение зоны настолько сильно, что все уровни в рассматриваемой полосе энергий оказываются занятыми электронами. В этом случае скорость разрушения бозонов резко падает, так как электрону связанной пары некуда перейти на свободный уровень (снизу – запрещенная зона, сверху – зона, полностью заполненная электронами). Происходит резкий рост числа бозонов и стремительное увеличение интенсивности излучения (сверхизлучающий переход). Этот процесс качественно был описан в предыдущих публикациях [12, 24].

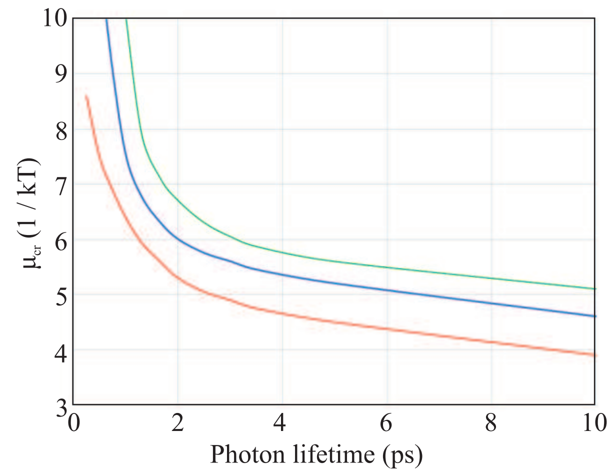

Рис. 4. (Цветной онлайн) Нормированная критическая энергия Ферми как функция времени жизни фотона при значениях коэффициента оптического усиления 2.0, 3.0 и $4.0 \times 10^{-16}\,\text{см}^{-2}$ (зеленая, синяя и красная линии соответственно)

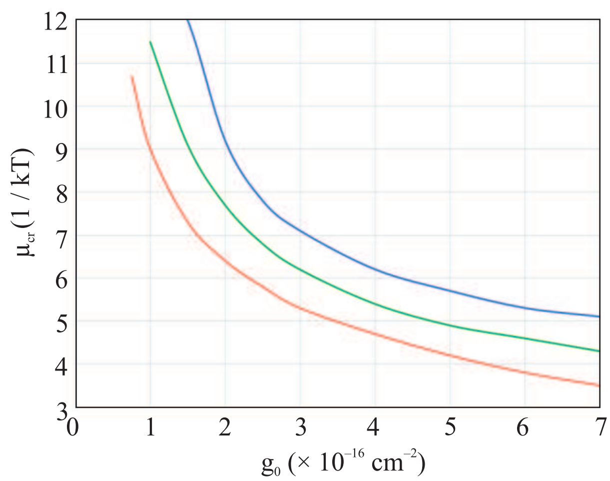

Рис. 5. (Цветной онлайн) Нормированная критическая энергия Ферми как функция коэффициента оптического усиления при значениях времени жизни фотона 1.0, 2.0 и 3.3 пс (синяя, зеленая и красная линии соответственно)

Расчеты показали,что критическая энергия Ферми $\mu_{\rm cr}$ зависит от коэффициента оптического усиления полупроводника, т.е. от скорости размножения фотонов (а, следовательно, и бозонов) в среде, и от времени жизни фотонов $\tau_{\rm ph}$, т.е. от величины потерь фотонов. Последний параметр определяется длиной образца L, коэффициентом отражения от грани образца R, внутренними потерями α_i и групповой скоростью света в среде v_g

$$\tau_{\rm ph} = \left[v_g \left(\alpha_i + \frac{1}{2L} \ln \frac{1}{R} \right] \right.^{-1}.$$

При типичных значениях $L = 100{-}500$ мкм, $R = 0.30{-}0.35$, $a_i = 10{-}20\,\text{см}^{-1}$ время жизни фотона в реальных структурах лежит в диапазоне 1–10 пс.

На рисунке 4 представлены расчетные зависимости критической энергии Ферми от $\tau_{\rm ph}$ для трех значений коэффициента оптического усиления. Очевидно, что при отсутствии фотонов резонансного поля $\tau_{\rm ph} \to 0$ сверхизлучающий фазовый переход не достижим ни при каких плотностях электронов и дырок. В экспериментах [10–15] величина $\tau_{\rm ph}$ составляла 2–3 пс, и сверхизлучение наблюдалось при концентрациях $(5{-}6)\times 10^{18}\,\text{см}^{-3}$, что хорошо соответствует расчетным значениям μ_e на рис. 4.

На рисунке 5 представлены расчетные зависимости критической энергии Ферми от коэффициента оптического усиления для трех значений $\tau_{\rm ph}$. Согласно нашей модели и аналогично рис. 4, при отсутствии оптического усиления в среде сверхизлучающий фазовый переход не наступает ($\mu_{\rm cr} \to \infty$). Типичные величины эффективного сечения коэффициента оптического усиления в объемном GaAs лежат в диапазоне $(2{-}3)\times 10^{-16}\,\text{см}^{-2}$ [25]. Вычисленные критические μ_e значения составляют от 5 до 7, что хорошо соответствует экспериментальным данным.

Таким образом, впервые построена простейшая модель, которая позволяет качественно понять механизм формирования квазистабильного бозонного состояния в сильно вырожденной электронно-дырочной системе. Представленная теоретическая модель подтверждает и развивает высказанную ранее гипотезу об условиях и механизме возникновения сверхизлучающего фазового перехода в полупроводнике при комнатной температуре [10–13]. Для его осуществления необходимо выполнение двух условий. Во-первых, плотность электронно-дырочных пар и, соответственно, вырождение зоны проводимости должны быть столь высоки, чтобы в полосе энергий шириной, равной энергии оптического фонона, все уровни были заняты электронами. В объемном собственном GaAs это соответствует плотностям $(5{-}6)\times 10^{18}\,\text{см}^{-3}$ и выше. Во-вторых, в образце должно присутствовать резонансное электромагнитное поле с энергией фотонов, близкой ширине запрещенной зоны. В явном виде продемонстрировано, что в отсутствие фотонов резонансного электромагнитного поля сверхизлучающее состояние не формируется ни при каких угодно больших плотностях электронов и дырок. В экспериментах [10–15] с гетероструктурами GaAs/AlGaAs геометрия образцов, состоящих из трех секций в одном резонаторе, подобрана так, что это оптическое поле возникает за счет свободной рекомбинации электронов и дырок, находящихся вблизи запрещенной зоны. Альтернативным методом может быть присутствие внешнего поля от перестраиваемого лазерного источника. Построенная упрощенная численная модель на основе скоростных уравнений хорошо описывает экспериментальные данные, полученные и опубликованные нами ранее.

В заключение автор выражает благодарность Х. Кан и Х. Ота за создание образцов гетероструктур и Р. Пенти за поддержку.

1. Л. В. Келдыш, Ю. В. Копаев, ФТТ **6**, 2791 (1964).
2. Л. В. Келдыш, А. Н. Козлов, ЖЭТФ **54**, 978 (1968).
3. D. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. **64**, 2643 (1990).
4. L. V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter, G. Bohm, and G. Weimann, Phys. Rev. Lett. **73**, 304 (1994).
5. А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **73**, 342 (2001).
6. H. Deng, H. Haug, and Y. Yamamoto, Rev. Mod. Phys. **82**, 1489 (2010).
7. O. M. Schmitt, P. Gartner, L. Banyai, D. B. Tran Thoai, and H. Haug, Phys. Stat. Sol. (b) **221**, 221 (2000).
8. O. M. Schmitt, D. B. Tran Thoai, P. Gartner, and H. Haug, Eur. Phys. J. B **16**, 217 (2000).
9. H. Haug, Solid State Commun. **134**, 3 (2005).
10. П. П. Васильев, Х. Кан, Х. Ота, Т. Хирума, ЖЭТФ **120**, 1486 (2001).
11. P. P. Vasil'ev, H. Kan, H. Ohta, and T. Hiruma, JETP **96**, 310 (2003).
12. P. P. Vasil'ev, Phys. Stat. Sol. (b) **241**, 1251 (2004).
13. П. П. Васильев, Письма в ЖЭТФ **82**, 129 (2005).
14. P. P. Vasil'ev, V. Olle, R. V. Penty, and I. H. White, EPL **104**, 40003 (2013).
15. P. P. Vasil'ev, R. V. Penty, and I. H. White, Light Sci. Appl. **5**, e16086 (2016).
16. P. P. Vasil'ev and I. V. Smetanin, Phys. Rev. B **74**, 125206 (2006).
17. P. P. Vasil'ev and R. V. Penty, EPL **133**, 37004 (2021).
18. R. Binder, D. Scott, A. E. Paul, M. Lindberg, K. Henneberger, and S. W. Koch, Phys. Rev. B **45**, 1107 (1992).
19. S. S. Prabhu, A. S. Vengurlekar, S. K. Roy, and Jagdeep Shah, Phys. Rev. B **51**, 14233 (1995).
20. A. H. Zhang, Q. Huang, and J. M. Zhou, J. Phys.: Condens. Matter **9**, 10185 (1997).
21. B. K. Ridley, Phys. Rev. B **41**, 12190 (1990).
22. J. Szczytko, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, and B. Deveaud, Phys. Rev. Letts. **93**, 137401 (2004).
23. Yu. Gladush, C. Piermarocchi, and V. Agranovich, Phys. Rev. B **84**, 205312 (2011).
24. P. P. Vasil'ev, Rep. Prog. Phys. **72**, 076501 (2009).
25. P. Vasil'ev, *Ultrafast Diode Lasers: Fundamentals and Applications*, Artech House, Norwood (1995).