

PACS: 42.70.Qs, 73.21.Cd, 78.67.Pt, 71.36.+c

Ю.Д. Заворотнев¹, В.В. Румянцев¹, С.А. Федоров¹, Е.Ю. Томашевская²

ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ БОЗЕ-ЭЙНШТЕЙНОВСКОГО КОНДЕНСАТА ЭКСИТОНОВ В КРИСТАЛЛАХ С ДЕФЕКТАМИ

¹Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина

²Донецкий национальный университет экономики и торговли
имени Михаила Туган-Барановского

Статья поступила в редакцию 13 апреля 2020 года

Исследована возможность появления экситонного бозе-эйнштейновского конденсата (БЭК) в модельной неидеальной решетке молекулярного кристалла. Проведен соответствующий анализ спектра экситонных возбуждений. В рамках приближения виртуального кристалла (ПВК) выполнено численное моделирование зависимости химпотенциала от концентрации структурных дефектов и на этой основе изучены особенности появления экситонного конденсата в неидеальной системе. Показано, при каких условиях возможно появление БЭК светлых и темных экситонов.

Ключевые слова: экситон, бозе-эйнштейновский конденсат, химический потенциал, структурные дефекты, приближение виртуального кристалла

Введение

С появлением мощных источников когерентного излучения оказалось возможным создавать в кристаллах плотности экситонов порядка $10^{17}-10^{18} \text{ см}^{-3}$. В этом случае существенными становятся их коллективные состояния, в частности образование БЭК. Пионерами в изучении БЭК экситонов является группа С.А. Москаленко [1,2]. Из результатов исследований по обнаружению экситонного конденсата в различных кристаллах, которые ведутся на протяжении 50 лет [3–8], следуют два фундаментальных вывода: 1) БЭК образуется при некоторых критических плотностях экситонов в кристалле; 2) ширина линии люминесценции (одного из способов обнаружения экситонного конденсата) должна быть бесконечно узкой. Важно отметить также то обстоятельство, что экситон является не элементарным, а составным бозоном и время жизни этих квазичастиц чрезвычайно мало. Последнее в меньшей степени относится к экситонам Ванье–Мотта и в большей – к короткоживущим (светлым) экситонам Френкеля. Дополнительно к названным существуют и другие затруднения в образовании БЭК, часть из которых рассматривается в данной работе.

До настоящего времени БЭК экситонов изучался без учета структурных дефектов в кристаллах. Однако сегодня в связи с созданием новых функцио-

нальных материалов появляется возможность путем введения в исследуемую систему определенных дефектов добиваться необходимого изменения ее энергетической структуры и, следовательно, значительных изменений оптических свойств, обусловленных перенормировкой энергетического спектра соответствующих квазичастиц. Одной из важнейших характеристик конденсата является химический потенциал, величина которого определяет сдвиг частоты рассеянных волн в нелинейных оптических процессах [9]. Отметим, что химический потенциал БЭК экситонов, в отличие от соответствующей величины для газов [10], не равен нулю, поскольку экситоны конденсируются в возбужденное состояние (минимум дисперсионной ветви). Особый интерес представляет изучение БЭК экситонов в неидеальных системах и особенностей зависимости химпотенциала от концентрации структурных дефектов.

В последнее время появились работы, в которых рассматриваются экситоноподобные (типа экситонов Френкеля) электромагнитные возбуждения [11] в неидеальных пористых цепочках и квазидвумерных структурах с порами, а также исследуются экситоны Френкеля и поляритоны в подобных структурах, содержащих квантовые точки [12–14]. Авторами [11–14] представлена общая схема расчета спектра квазичастичных возбуждений неидеальной системы со случайным распределением структурных элементов. Расчет предполагает нахождение полюсов конфигурационно-усредненной резольвенты соответствующего гамильтониана [15], что может быть выполнено лишь в рамках некоторого приближения, определяемого спецификой исследуемой системы. Распространенным методом расчета квазичастичных состояний в неупорядоченных средах является ПВК [15], которое позволяет устанавливать особенности и трансформацию спектров элементарных возбуждений, обусловленную изменением концентрации дефектов в несовершенных структурах. Усредненная резольвента в ПВК равна резольвенте усредненного гамильтониана. В дальнейшем используем именно это приближение для расчета и анализа спектра экситонных возбуждений и особенностей зависимости химпотенциала от концентрации структурных дефектов исследуемой неидеальной решетки.

1. Теоретическая модель

Рассмотрим подробнее случай конденсации экситонов малого радиуса (экситонов Френкеля), которые возникают, например, в молекулярных кристаллах. Соответствующий математический аппарат описания данных возбуждений представлен в работе [16]. В ней показано, каким образом следует переходить от операторов рождения и уничтожения, определяющих возбуждения в изолированных молекулах, к экситонным операторам. Экситоны Френкеля подчиняются статистике Паули, однако при относительно малых плотностях эти квазичастицы можно считать бозонами, и, следовательно, возможно достижение экситонного конденсата [16].

Рассмотрим неидеальный топологически упорядоченный молекулярный кристалл с примитивной решеткой в модели неподвижных молекул [16]. Для расчета перенормированного спектра экситонного конденсата с взаимодействием между экситонами в гамильтониане электронной подсистемы данной структуры в узельном представлении в одноуровневой модели и приближении Гайтлера–Лондона следует оставить лишь следующие слагаемые [17,18]:

$$H = H_2 + W_3 + W_4, \quad (1)$$

где

$$H_2 = \sum_n E_n B_n^+ B_n + \frac{1}{2} \sum_{n,m} \langle 0f | W_{nm} | f0 \rangle B_n^+ B_m \equiv \sum_n E_n B_n^+ B_n + \sum_{n,m} Q_{2nm} B_n^+ B_m, \quad (2)$$

$$W_3 = \sum_{n,m} \langle f0 | W_{nm} | ff \rangle B_n^+ B_n B_m \equiv \sum_{n,m} Q_{3nm} B_n^+ B_n B_m, \quad (3)$$

$$W_4 = \sum_{n,m} \langle ff | W_{nm} | ff \rangle B_n^+ B_m^+ B_n B_m \equiv \sum_{n,m} Q_{4nm} B_n^+ B_m^+ B_n B_m. \quad (4)$$

Здесь n и m – номера узлов; f – номер возбужденного уровня, на котором формируется БЭК; W_{nm} – оператор кулоновского взаимодействия между молекулами, находящимися в узлах n и m соответственно; B_n^+ , B_n – бозе-операторы рождения и уничтожения f -го возбуждения на узле n ; E_n – энергия возбуждения молекулы, находящейся в n -м узле. Поскольку экситоны Френкеля подчиняются статистике Паули и лишь приближенно являются бозе-частицами, в выражении (1) должны присутствовать четырехчастичные слагаемые, обусловленные кинематическим взаимодействием и описывающие взаимодействие конденсата с надконденсатными квазичастицами [16]. В настоящей работе рассматривается случай $T = 0$, надконденсатные экситоны отсутствуют и, следовательно, соответствующими слагаемыми можно пренебречь.

Матричные элементы оператора кулоновского взаимодействия [17,18] имеют вид

$$Q_{2nm} \sim \langle f0 | W_{nm} | 0f \rangle \sim \langle f | P_n | 0 \rangle \langle 0 | P_m | f \rangle, \quad (5)$$

$$Q_{3nm} \sim \langle f0 | W_{nm} | ff \rangle \sim \langle f | P_n | f \rangle \langle 0 | P_m | f \rangle, \quad (6)$$

$$Q_{4nm} \sim \langle ff | W_{nm} | ff \rangle \sim \langle f | P_n | f \rangle \langle f | P_m | f \rangle, \quad (7)$$

где P_n – оператор дипольного момента молекулы n -го узла. Если учитывать взаимодействие только между конденсатными экситонами, то матричный элемент $\langle 0 | P_m | f \rangle$, входящий в Q_{2nm} (5) и Q_{3nm} (6), будет отличен от нуля только для дипольно-разрешенных состояний (светлые экситоны). Дополни-

тельное ограничение накладывает множитель $\langle f | P_m | f \rangle$ в правой части (6) и (7). Он отличен от нуля только в кристаллах, у которых куб векторного представления содержит полносимметричное представление или (что то же самое) квадрат векторного представления содержит векторное представление. Примерами могут служить кристаллы с точечными группами симметрии C_{3V} , C_{4V} , T и т.д. Ясно, что в кристаллах с центром инверсии этот матричный элемент будет равен нулю. Следовательно, в таких кристаллах $W_3 = W_3 = 0$ $Q_3 = Q_4 = 0$ и экситоны БЭК являются невзаимодействующими.

Если изучается БЭК дипольно-запрещенных (темных) экситонов, то матричный элемент $\langle 0 | P_m | f \rangle = 0$, а слагаемое четвертого порядка существенно только для состояний, квадрат неприводимых представлений которых содержит векторное представление. Такая ситуация возможна лишь в низкосимметричных кристаллах, у которых одна из компонент вектора преобразуется по полносимметричному представлению. В высокосимметричных кристаллах темные экситоны БЭК являются невзаимодействующими.

В дальнейшем для описания неидеальной структуры используем приближение ПВК. Таким образом, гамильтониан исследуемой системы H необходимо заменить на конфигурационно-усредненный гамильтониан \bar{H} . Полагая также, что данный кристалл является двухкомпонентным (т.е. исследуемая структура варьируется по составу), величины E_n , Q_{2nm} , Q_{3nm} , Q_{4nm} в (1) следует заменить выражениями [15]:

$$E_n \rightarrow \bar{E}_n = \sum_{v=1}^2 c_v E^{(v)}, \quad Q_{2(3,4)nm} \rightarrow Q_{2(3,4)nm} = \sum_{v=1}^2 \sum_{\lambda=1}^2 c_v Q_{2(3,4)nm}^{(v,\lambda)} c_\lambda, \quad \sum_{v=1}^2 c_v = 1, \quad (8)$$

где c_v – концентрация молекул v -го сорта, $E^{(v)}$ – энергия возбуждения молекулы данного сорта, $Q_{2(3,4)nm}^{(v,\lambda)}$ – величины, соответствующие энергии взаимодействия молекулы v -го сорта в узле n с молекулой λ -го сорта в узле m . В отличие от идеальной исследуемая структура имеет разупорядочение по составу, и поэтому гамильтониан (1) не является трансляционно-инвариантным.

Одна из методик получения спектра квазичастичных возбуждений неидеальной системы со случайным распределением структурных элементов состоит в нахождении полюсов конфигурационно-усредненной резольвенты соответствующего гамильтониана [16]. Последняя является трансляционно-инвариантной, и, значит, соответствующий спектр элементарных возбуждений можно характеризовать волновым вектором \mathbf{k} , а соответствующий гамильтониан имеет вид: $\bar{H} = \bar{H}_2 + \bar{W}_3 + \bar{W}_4 = \sum_{\mathbf{k}} H(\mathbf{k})$. Слагаемое \bar{H}_2 диагона-

лизуется путем преобразования Боголюбова–Тябликова. В итоге получаем экситонный гамильтониан в k -пространстве, в котором происходит конденсация квазичастиц в состояние $\mathbf{k} = 0$. Поскольку состояние БЭК экситонов при $\mathbf{k} = 0$ является макроскопически заполненным, в гамильтониане можно

оставить только взаимодействие между конденсатными квазичастицами. В итоге получаем

$$\begin{aligned}
 H(\mathbf{k} = 0) &= E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)B^+(\mathbf{k} = 0)B(\mathbf{k} = 0) + \\
 &+ \frac{1}{\sqrt{V}}Q_3(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)B^+(\mathbf{k} = 0)B(\mathbf{k} = 0)B(\mathbf{k} = 0) + \\
 &+ \frac{1}{V}Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)B^+(\mathbf{k} = 0)B^+(\mathbf{k} = 0)B(\mathbf{k} = 0)B(\mathbf{k} = 0). \quad (9)
 \end{aligned}$$

Здесь

$$E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) = \bar{E}_n(c_1, c_2) + 2Q_2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0),$$

где

$$\begin{aligned}
 Q_{2(3,4)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) &= \left[\sum_n \bar{Q}_{2(3,4)nm}(c_1, c_2) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nm}) \right]_{\mathbf{k}=0}, \\
 B(\mathbf{k} = 0) &= \left[\frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n B_n \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n) \right]_{\mathbf{k}=0}, \quad (10)
 \end{aligned}$$

E_{ex} – энергия экситона молекулярного кристалла в приближении ПВК; $B^+(\mathbf{k} = 0)$, $B(\mathbf{k} = 0)$ – операторы рождения и уничтожения конденсатных экситонов; $Q_2(c_1, c_2, \mathbf{k})$ – фурье-образ матрицы резонансного межмолекулярного взаимодействия; $Q_{3(4)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)$ – фурье-образы матриц, описывающих 3(4)-частичные взаимодействия между конденсатными экситонами; N – число элементарных ячеек в объеме V ; $\mathbf{r}_{nm} = \mathbf{r}_n - \mathbf{r}_m$, $\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_m$ – векторы решетки.

Для нахождения спектра системы воспользуемся методом функций Грина (ФГ) [16]. Запаздывающую M -частичную ФГ (M – число конденсатных экситонов) вычислим с учетом слагаемых гамильтониана третьего и четвертого порядков по экситонным операторам:

$$D_M(t) = -i \left\langle T \left[\tilde{B}_0^M(t) \tilde{B}_0^{+M}(0) \right] \right\rangle_{\bar{H}_0 + \bar{W}_3 + \bar{W}_4}, \quad (11)$$

где

$$\tilde{B}_0(t) = e^{i(\bar{H}_0 + \bar{V}_3 + \bar{V}_4)t} B(\mathbf{k} = 0) e^{-i(\bar{H}_0 + \bar{W}_3 + \bar{W}_4)t}.$$

С целью облегчения расчетов предположим, что $\bar{W}_4 \ll \bar{W}_3$. Тогда можно провести расчет в два этапа: на первом – учесть слагаемое \bar{W}_3 , а на втором – \bar{W}_4 . Для учета слагаемых третьего порядка сначала вычислим одночастичную ФГ в лестничном приближении, как показано на рис. 1. В ω -представлении соответствующее уравнение Дайсона для ФГ с учетом трехчастичных слагаемых гамильтониана имеет вид ($\hbar = 1$):

$$D^{(3)} = \frac{1}{\omega - E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} + \frac{1}{\omega - E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} \cdot \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{V(\omega - 2E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0))} D^{(3)}. \quad (12)$$

Отсюда

$$D^{(3)} = \frac{\omega - 2E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{(\omega - E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0))(\omega - 2E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)) - \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{V}}. \quad (13)$$

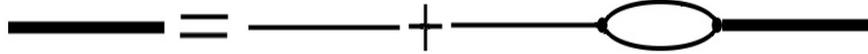


Рис. 1. Графическое представление уравнения Дайсона для вычисления спектра при учете трехчастичного взаимодействия. Сплошная линия – ФГ конденсатного экситона при отсутствии взаимодействия, жирная сплошная – ФГ с учетом трехчастичного взаимодействия

Корни знаменателя определяют энергетический спектр системы. Из соотношения (13) следуют выражения для энергетических уровней E_1, E_2 , соответствующих двум состояниям системы:

$$E_1 = E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) - \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}, \quad (14)$$

$$E_2 = 2E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}.$$

Учитывая (12)–(14), для M -частичной ФГ получаем уравнение Дайсона

$$D_M^{(3)} = \frac{1}{\omega - ME_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} + \frac{M^2 Q_3^2}{V(\omega - ME_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0))(\omega - (M + 1)E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0))} D_M^{(3)}. \quad (15)$$

Корни этого уравнения дают спектр БЭК:

нижняя ветвь –

$$E_M^{(1,3)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) = ME_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) - \frac{M^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}, \quad (16)$$

верхняя ветвь –

$$E_M^{(2,3)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) = (M + 1)E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + \frac{M^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}. \quad (17)$$

Пользуясь методом неопределенных коэффициентов, запишем M -частичную ФГ в виде

$$D_M^{(3)} = -\frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)M^2}{VE_{\text{ex}}^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) \left[\omega - (M+1)E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) - \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)M^2}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} \right]} +$$

$$+ \frac{VE_{\text{ex}}^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)M^2}{VE_{\text{ex}}^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) \left[\omega - ME_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + \frac{Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)M^2}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} \right]}. \quad (18)$$

С учетом только нижайшего уровня $E_M^{(1)}$ и с использованием преобразования

$$B(\mathbf{k} = 0) = A\tilde{B} = \left(\frac{VE_{\text{ex}}^2 + Q_3^2 M^2}{VE_{\text{ex}}^2} \right)^{1/2} \tilde{B} \quad (19)$$

гамильтониан конденсатных экситонов можно записать в виде

$$H = H'_0 + W'_4 = \frac{E_M^{(1,3)}}{N} \tilde{B}_0^+ \tilde{B}_0 + \frac{\bar{Q}_4}{V} \tilde{B}_0^+ \tilde{B}_0^+ \tilde{B}_0 \tilde{B}_0, \quad (20)$$

где

$$\bar{E}_M^{1,3} = A^2 E_M^{1,3}, \quad \bar{Q}_4 = A^4 Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0).$$

Для вычисления ФГ с учетом четырехчастичного слагаемого

$$\tilde{D}_M(t) = -i \left\langle T \tilde{B}^M(t) \tilde{B}^{+M}(t) \right\rangle_{H'_0 + W'_4} \quad (21)$$

просуммируем графически последовательность (21) в ω -представлении. Эта задача легко решается методом уравнений движения. Известно [16], что операторы в представлении Гейзенберга подчиняются уравнению

$$i\hbar \frac{\partial \tilde{B}(t)}{\partial t} = [\tilde{B}(t), H'_0 + W'_4], \quad (22)$$

поэтому, используя явный вид H'_0 (20), получаем

$$i \frac{\partial \tilde{B}(t)}{\partial t} = \frac{E_M^{(1,3)}}{N} \tilde{B}(t) + [\tilde{B}(t), W'_4]. \quad (23)$$

Непосредственное вычисление дает

$$[\tilde{B}_0, W'_4] = \frac{2\bar{Q}_4}{V} \tilde{B}_0^+ \tilde{B}_0 \tilde{B}_0. \quad (24)$$

Дифференцируя ФГ (21) по времени и используя выражения (23) и (24), имеем

$$\left[i \frac{\partial}{\partial t} - E_M^{(1,3)} - \frac{\bar{Q}_4}{V} M(M-1) \right] D_M^{(4)}(t) = N! \delta(t). \quad (25)$$

Записывая (25) в ω -представлении и вычисляя полюса $D_M^{(4)}(\omega)$, получаем явные выражения для энергий M -частичной системы экситонного конденсата:

нижняя ветвь –

$$E_M^{(1,4)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) = MA^2 E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) - \frac{M^2 A^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} + M(M-1) \frac{A^4 Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{V}, \quad (26)$$

верхняя ветвь –

$$E_M^{(2,4)}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) = (M+1)A^2 E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + \frac{M^2 A^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{VE_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} + M(M-1) \frac{A^4 Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{V}. \quad (27)$$

Химический потенциал исследуемой неидеальной структуры имеет вид:

для нижайшего уровня –

$$\mu_1 = E_{M+1}^{(1,4)} - E_M^{(1,4)} = A^2 E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) - \frac{A^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} \left(2n + \frac{1}{V} \right) + 2A^4 Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)n, \quad (28)$$

для верхнего уровня –

$$\mu_2 = E_{M+1}^{(2,4)} - E_M^{(2,4)} = 2A^2 E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0) + \frac{A^2 Q_3^2(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)}{E_{\text{ex}}(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)} \left(2n + \frac{1}{V} \right) + 2A^4 Q_4(c_1, c_2, \mathbf{k} = 0)n, \quad (29)$$

где $n = M/V$ – плотность частиц в конденсате. Из (28) и (29) следует, что в случае светлых экситонов слагаемые гамильтониана третьего порядка энергию квазичастиц на нижнем уровне системы понижают, а слагаемые четвертого порядка – повышают, т.е. ответственны за притяжение и отталкивание квазичастиц. Если вклад слагаемых третьего порядка больше, то образование конденсата невозможно и формируются экситонные капли. В случае темных экситонов слагаемые третьего порядка вклада в энергию не дают, и образование конденсата возможно. При наличии слагаемых третьего порядка возможно появление конденсата светлых экситонов на верхнем энергетическом уровне, поскольку эти слагаемые ответственны за отталкивание. Статистические условия возникновения БЭК бозе-частиц рассматривались во многих работах (см., напр., [7]).

Необходимо отметить, что выводы, сделанные в данном разделе, применимы и для двумерной подсистемы, а также для упомянутых выше систем с порами и квантовыми точками.

2. Результаты и обсуждение

Детально исследуем зависимость химического потенциала от концентрации компонент, а также от разницы их характеристик. Рассмотрение выполним для конкретного случая двухкомпонентной неидеальной системы с концентрациями элементов соответственно c_1 и c_2 . Таким образом, подставляя выражения (8) в (28), с учетом $V \rightarrow \infty$ ($A=1$) получим следующее соотношение для химпотенциала:

$$\mu_1(c_1, c_2) = \sum_{i=1}^2 c_i \left(E^{(i)} + 2 \sum_{j=1}^2 Q_2^{ij} c_j \right) - \frac{2 \left(\sum_{i,j=1}^2 c_i Q_3^{ij} c_j \right)^2}{\sum_{i=1}^2 c_i \left(E^{(i)} + 2 \sum_{j=1}^2 Q_2^{ij} c_j \right)} n + 2 \sum_{i,j=1}^2 c_i Q_4 c_j n, \quad (30)$$

где

$$Q_{2(3,4)}^{ij} = \left[\sum_n Q_{2(3,4)nm}^{ij} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nm}) \right]_{\mathbf{k}=0}.$$

Условием образования конденсата является наличие отталкивающего взаимодействия между квазичастицами. Характер экситон-экситонного взаимодействия отражают второе и третье слагаемые в (30). При этом БЭК экситонов возможен лишь в случае, когда их сумма положительна. В случае темных экситонов в кристаллах без центра инверсии второе слагаемое отсутствует, а поскольку третье всегда положительное, то БЭК оказывается возможным. Появление БЭК в случае светлых экситонов обуславливается «конкуренцией» второго и третьего слагаемых в (30). Зависимости этих слагаемых от концентраций c_1 и $c_2 = 1 - c_1$ параболические, однако характеристики парабол различны. Поэтому возможны ситуации, при которых для определенных значений параметров и концентраций знак суммарного взаимодействия может меняться на противоположный. В силу этого возможны различные условия образования БЭК.

Ситуация 1. Численное моделирование проведем для тех же значений параметров исследуемой структуры, что и в работах [19,20]:

$$\begin{aligned} E^{(1)} &= 4.5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad E^{(2)} = 4 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}; \\ Q_2^{11} &= 3 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_2^{22} = 3.1 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_2^{12} \approx Q_2^{21} = 3.5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}; \\ Q_3^{11} &= 2 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_3^{22} = 2.5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_3^{12} \approx Q_3^{21} = 2.1 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}; \\ Q_4^{11} &= 0.4 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_4^{22} = 0.3 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}, \quad Q_4^{12} \approx Q_4^{21} = 0.1 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}. \end{aligned}$$

На рис. 2,1 приведены кривые, соответствующие данной ситуации (параметры модели указаны выше), когда при малых концентрациях взаимодействие экситонов отрицательное (притяжение), что приводит к образованию «капель», а при больших – положительное (отталкивание), и появляется возможность возникновения БЭК экситонов.

Ситуация 2. При другом наборе параметров [19,20]:

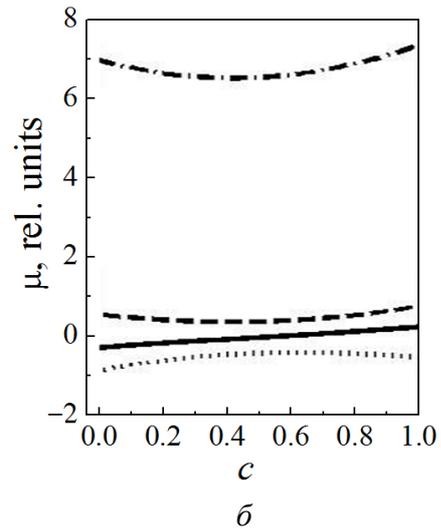
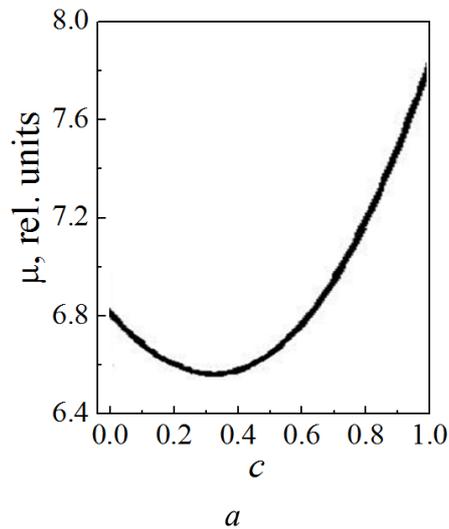
$$E^{(1)} = 4.5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad E^{(2)} = 4 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1};$$

$$Q_2^{11} = 3.5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_2^{22} = 3.3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_2^{12} \approx Q_2^{21} = 3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1};$$

$$Q_3^{11} = 2.7 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_3^{22} = 2.3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_3^{12} \approx Q_3^{21} = 1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1};$$

$$Q_4^{11} = 0.4 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_4^{22} = 0.3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad Q_4^{12} \approx Q_4^{21} = 0.1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1},$$

I



II

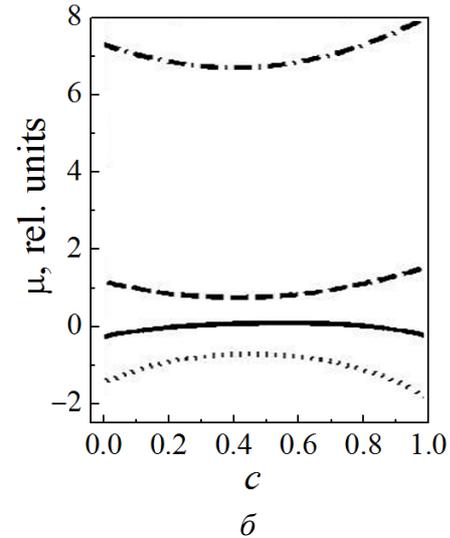
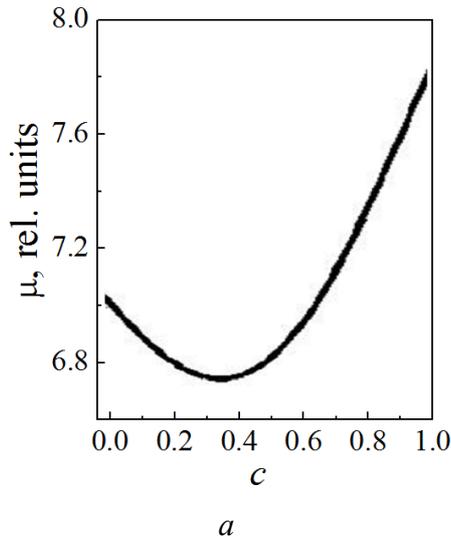


Рис. 2. Зависимости химического потенциала $\mu(c) \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ для описанных в тексте ситуаций 1(I) и 2 (II): а – от концентрации c_1 ($c_2 = 1 - c_1$) структурных компонент; б – от концентрации первого (---), второго (···) и третьего (---) слагаемых (30); сплошная линия – сумма второго и третьего слагаемых (30)

как показано на рис. 2,II, образуются БЭК экситонов для промежуточных значений концентрации структурных дефектов. Причем в случае предельных значений концентрации имеет место притяжение и возникновение БЭК экситонов невозможно. Следует учесть, что если распределение компонент в кристалле неоднородно, то в обоих случаях возможно появление хаотических пространственно разделенных областей с БЭК экситонов (БЭК экситонных «капель»), между которыми находятся запрещенные области. Отметим, что этот вывод справедлив при произвольных значениях концентраций n , поскольку оба слагаемые имеют одинаковую зависимость от плотности.

Если в кристалле слагаемое третьего порядка доминирует, то БЭК светлых экситонов на нижнем уровне невозможен при любых концентрациях составляющих элементов. В то же время возможен БЭК на верхнем уровне, однако существенным фактором становится время жизни квазичастиц. Темные экситоны могут конденсироваться, но поскольку они не способны люминесцировать, то их наблюдение затруднено. Для обнаружения таких состояний необходимо применять другие методики, в частности рассматривать нелинейные оптические процессы с участием БЭК [8,9].

Заключение

Использование приближения виртуального кристалла для численного моделирования с последующим анализом спектра экситонных возбуждений и особенностей зависимости химпотенциала от концентрации структурных дефектов исследуемой неидеальной решетки молекулярного кристалла позволило изучить возможности появления экситонного БЭК в модельной неидеальной структуре. Показано, при каких условиях возможно возникновение БЭК светлых и темных экситонов. Полученные результаты представляют интерес для интерпретации экспериментальных данных при получении соответствующих оптических характеристик.

1. С.А. Москаленко, Бозе-эйнштейновская конденсация экситонов, Штиинца, Кишинев (1970).
2. S.A. Moskalenko, D.W. Snoke, Bose–Einstein Condensation of Excitons: And Biexcitons and Coherent Nonlinear Optics with Excitons, Cambridge University Press (2000).
3. И.Х. Аюбян, Е.Ф. Гросс, Б.С. Разбирин, Письма в ЖЭТФ **12**, 366 (1970).
4. Y. Kato, T. Goto, T. Fuji, M. Ueta, J. Phys. Soc. Jpn. **36**, 169 (1974).
5. V. Shahnazaryan, O. Kyriienko, I.A. Shelykh, Phys. Rev. **B91**, 085302 (2015).
6. A. Kogar, M.S. Rak, S. Vig, A.A. Husain, F. Flicker, Young Il Joe, L. Venema, G.J. MacDougall, T.C. Chiang, E. Fradkin, J. van Wezel, P. Abbamonte, Science **358**, 1314 (2017).
7. M. Combescot, R. Combescot, F. Dubin, Rep. Prog. Phys. **80**, 066501 (2017).
8. Yu.D. Zavorotnev, V.V. Romyantsev, O.Yu. Popova, Journal of Photonic Materials and Technology **4**, 39 (2018).
9. Ю.Д. Заворотнев, Л.Н. Овандер, Известия РАН. Серия физическая **69**, 984 (2005).
10. А.Г. Сотников, К.В. Серета, Ю.В. Слюсаренко, ФНТ **43**, 172 (2017).
11. V. Romyantsev, S. Fedorov, K. Gumennyk, M. Sychanova, A. Kavokin, Sci. Rep. **4**, 6945 (2014).

12. *В.В. Румянцев, С.А. Федоров, К.В. Гуменник*, ФТТ **59**, 741 (2017).
13. *V.V. Rumyantsev, S.A. Fedorov, K.V. Gumennyk, D.A. Gurov, A.V. Kavokin*, Superlattices Microstruct. **120**, 642 (2018).
14. *V.V. Rumyantsev, S.A. Fedorov, K.V. Gumennyk, Yu.A. Paladyan*, Physica **B571**, 296 (2019).
15. *Дж. Займан*, Модели беспорядка, Мир, Москва (1982).
16. *В.М. Агранович*, Теория экситонов, Наука, Москва (1968).
17. *В.М. Агранович, М.Д. Галанин*, Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах, Наука, Москва (1978).
18. *Ю.Д. Заворотнев, Л.Н. Овандер*, Нелинейные оптические эффекты в молекулярных кристаллах, Норд-Пресс, Донецк (2005).
19. *Л.Н. Овандер*, УФН **86**, 3 (1965).
20. *Yu.D. Zavorotnev, L.N. Ovander*, Phys. Status Solidi **68**, 443 (1975).
21. *А.А. Абрикосов, Л.П. Горьков, И.Е. Дзялошинский*, Методы квантовой теории поля в статистической физике, Физматгиз, Москва (1962).
22. *Yu.D. Zavorotnev, O.Yu. Popova*, Journal of Photonic Materials and Technology **1**, 10 (2015).

Yu.D. Zavorotnev, V.V. Rumyantsev, S.A. Fedorov, E.Yu. Tomashevskaya

FEATURES OF FORMATION OF BOSE-EINSTEIN CONDENSATE OF EXCITONS IN DEFECT-CONTAINING CRYSTALS

Possible formation of exciton Bose-Einstein condensate (BEC) in a model non-ideal lattice of a molecular crystal is studied. The related analysis of the spectrum of excitonic excitations has been carried out. Within the framework of virtual crystal approximation (VCA), structural defect concentration dependence of the chemical potential is modeled and the features of the emergence of exciton condensate in a non-ideal system are studied on this basis. The conditions of the emergence of BEC of dark and bright excitons are demonstrated.

Keywords: exciton, Bose-Einstein condensate, chemical potential, structural defects, virtual crystal approximation

Fig. 1. Presentation of Dyson equation for calculation of the spectrum with account of the three-body interaction. Solid line is Green function of condensate exciton without an interaction, bold solid line is Green function with account of the three-body interaction

Fig. 2. Chemical potential $\mu(c) \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ in the cases 1 (I) and 2 (II) described in the text: a – dependence on the concentration of the structural components $c_1 (c_2 = 1 - c_1)$; b – dependence on the concentration of the first term (---), the second (···) and the third one (---) (30); solid line is the sum of the second term and the third one (30)