

УДК 535.375.5 : 621.371.8

## ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ МАКРОЗАПОЛНЕННОЙ ПОЛЯРИТОННОЙ МОДЫ С НЕКОГЕРЕНТНЫМИ ПОЛЯРИТОНАМИ В КРИСТАЛЛАХ $\text{HgI}_2$

М. С. Бродин, В. Н. Кадан, М. Г. Мацко

Изучена перестройка спектров люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$ , индуцированная интенсивным лазерным излучением. Наблюдаемые изменения интерпретированы на основе теории, развитой в работах [1-3]. Характер перестройки указывает на наличие активного поглощения поляритонов нижней ветви (НПВ) когерентной макрозаполненной поляритонной модой (МПМ), т. е. неравновесной Бозе-конденсации.

Распространение интенсивной поляритонной волны или МПМ в резонансной области кристаллов ниже дна экситонной зоны рассматривается в ряде теоретических работ [1-3]. В них предсказывается перестройка спектров поляритонов и фононов в антистоксовой области, а также анализируется возможность возникновения в присутствии МПМ неравновесной Бозе-конденсации поляритонов. В то же время экспериментальные работы, посвященные данным вопросам, весьма малочисленны. Насколько нам известно, в настоящее время существует единственная экспериментальная работа [4], в которой уменьшение пропускания в антистоксовой области для кристаллов  $\text{CdS}$  в присутствии интенсивного лазерного излучения с  $I_0=50 \text{ МВт/см}^2$  интерпретируется с фоновитонных позиций. Сообщения о реализации неравновесной Бозе-конденсации поляритонов посредством описанного в работе [1] механизма отсутствуют. В настоящей работе предпринята попытка восполнить образовавшийся дефицит экспериментальных данных по указанным вопросам.

Сущность выполненного нами эксперимента заключалась в регистрации изменений спектра люминесценции кристалла, возбуждаемого в область экситонного поглощения лазером на красителе (далее лазер 1), которые возникают в присутствии излучения другого лазера (далее лазер 2) в области прозрачности кристалла ниже дна экситонной зоны. Оба перестраиваемых лазера (1 и 2) идентичной конструкции со спектральной шириной линии 0.4—0.7 мэВ одновременно накачивались расщепленным пучком  $\text{N}_2$ -лазера мощностью 500 кВт в импульсе с длительностью 8 нс и частотой повторения 10 Гц. Излучение лазеров 1 и 2 фокусировалось в одну точку на поверхности кристалла толщиной 100 мкм. Температура рабочей камеры криостата регулировалась в диапазоне 4.2—60 К. Временное совпадение импульсов излучения лазеров 1 и 2 обеспечивалось равенством оптических путей. Люминесцентные спектры регистрировались с помощью дифракционного спектрометра PGS-2.

Измерения выполнялись в два этапа. На первом этапе температура кристаллов составляла 4.2 К. Геометрия опыта изображена на вставке к рис. 1. Энергия квантов лазера 1  $\hbar\omega$  не изменялась в процессе измерений и составляла 2.350 эВ при плотности мощности возбуждения  $I=100 \text{ кВт/см}^2$ . Возникающая при этом широкая люминесцентная полоса обеспечивала зондирующее излучение со сплошным спектром в диапазоне 2.314—

2.325 эВ ниже уровня поперечного экситона  $\hbar\omega_T=2.3348$  эВ (рис. 1, 1). Природа зондирующего излучения в данном случае принципиального значения не имеет и не анализируется. МПМ создавалась излучением лазера 2 с  $I_0=100$  кВт/см<sup>2</sup> в области прозрачности кристалла длинноволноее полосы люминесценции. На рис. 1 (2, 3, 4) приведены три спектра, полученные в отличие от рис. 1, 1 в присутствии МПМ с различными  $\hbar\omega_0$ . Следует особое внимание уделить тому факту, что в присутствии МПМ в зондирующем люминесцентном спектре возникает узкий интенсивный (~50 %) провал перепоглощения с энергией  $\hbar\omega_n$ , расположенный в антистоксовой области относительно  $\hbar\omega_0$ . При перестройке  $\hbar\omega_0$  от 2.300 до 2.310 эВ провал без изменения формы линейно смещается в ту же сторону в пределах зондирующей люминесцентной полосы, отслеживая изменение

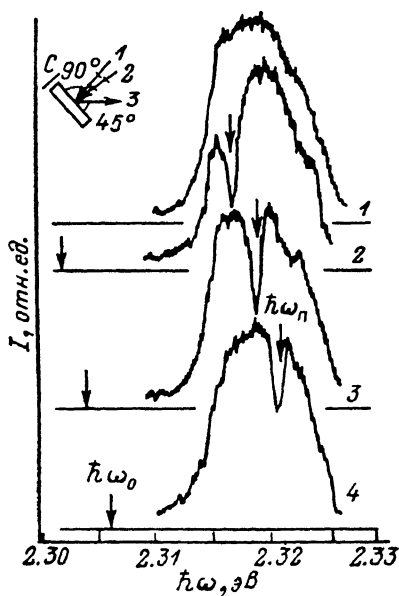


Рис. 1. Спектры люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$  при 4.2 К без МПМ (1) и при различных  $\hbar\omega_0$ , эВ: 2 — 2.302, 3 — 2.304, 4 — 2.306.

На врезке: 1 — лазер 1 ( $\hbar\omega$ ), 2 — лазер 2 ( $\hbar\omega_0$ ), 3 — люминесценция.

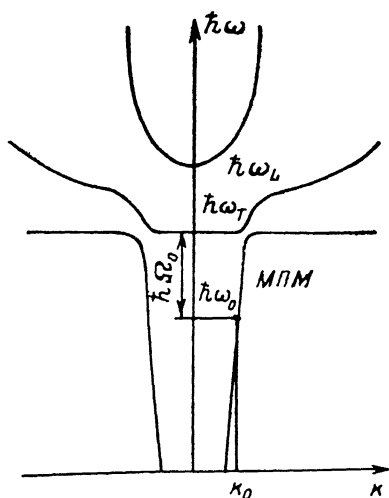


Рис. 2. Схема фоновитонных дисперсионных ветвей.

Область фоновитонной дисперсии находится на пересечении поляритонных и фононных дисперсионных ветвей.

$\hbar\omega_0$ . Интервал  $\hbar\omega_n - \hbar\omega_0$  при этом остается неизменным и равным 14.6 мэВ, т. е. энергии  $\hbar\Omega_0$  оптического фонона симметрии  $A_{1g}$ .

Физическая природа наблюдаемых нами провалов в люминесцентном спектре достаточно проста и связана, очевидно, с тем, что вероятность любого комбинационного рассеяния (КР) пропорциональна числам заполнения не только начального, но и конечного состояний [5]. Интенсивная когерентная поляритонная волна обеспечивает макрозаполнение конечных поляритонных состояний. Поэтому вероятность КР поляритонов с энергией  $\hbar\omega_n = \hbar\omega_0 + \hbar\Omega_0$  именно в МПМ оказывается максимальной. Именно это обстоятельство приводит в конечном счете к формированию провала в сплошном спектре поляритонов люминесценции, энергия которого  $\hbar\omega_n$  превышает  $\hbar\omega_0$  в точности на энергию наиболее КР-активного оптического фонона  $\hbar\Omega_0$ . Разумеется, изложенная схема пригодна для качественной интерпретации полученных результатов. Корректное рассмотрение распространения интенсивной поляритонной волны МПМ под дном экситонной зоны кристаллов, в котором наряду с экситон-фотонным взаимодействием точно учитывается также и экситон-фононное взаимодействие, проведено в работах [1-3]. Авторы вводят новое элементарное возбуждение — фоновитон, которое отвечает смешиванию и пере-

стройке спектров фотонного, экситонного и фоновонного возбуждений полупроводника в присутствии когерентной поляритонной волны. На рис. 2 показаны дисперсионные ветви фоновитонов в антистоксовой области МПМ. Поскольку фоновитонное расщепление  $\Delta_{p-k_0}$  (характерный размер деформированной области дисперсии) пропорционально концентрации экситонной компоненты МПМ и непосредственно определяет ширину антистоксова провала перепоглощения, то возрастание ширины провала при увеличении интенсивности возбуждения служило бы достаточно веским экспериментальным подтверждением возникновения фоновитонной перестройки.

Рассмотрим возможность привлечения данного механизма для интерпретации изложенных выше экспериментальных результатов. Как указывается в [3], фоновитонный подход актуален при условии малости коэффициента поглощения исходной поляритонной волны и ее экситоноподобного характера. Эти условия обеспечивают корректность связывания исходной поляритонной волны  $k_0$  конечной амплитуды с понятием макрозаполненности моды  $k_0$ . Их можно удовлетворить одновременно, когда частота поляритонной волны  $\omega_0$  принадлежит области [3]

$$\Omega_c \geq \omega_T - \omega_0 \geq [\omega_{LT}^2/4 + \gamma(k_0) \omega_{LT}]^{1/2} - \omega_{LT}/2, \quad (1)$$

где  $\hbar\omega_T$  — энергия поперечного экситона,  $\hbar\omega_{LT}$  — величина продольно-поперечного расщепления,  $\gamma(k_0)$  — характерное обратное время жизни экситона  $k_0$ ,  $\Omega_c = \sqrt{2\omega_{LT}\omega_T}$ . Для  $\text{HgI}_2$   $\hbar\omega_{LT} = 5.3$  мэВ,  $\hbar\Omega_c = 157$  мэВ. Величина  $\hbar\gamma(k_0) = 0.05$  мэВ получена нами из низкотемпературных спектров пропускания образца  $\text{HgI}_2$  в предположении, что затухание поляритона определяется затуханием его экситонной компоненты. Приведенные данные показывают, что условие (1) хорошо выполняется в исследованном диапазоне  $\hbar\omega_0$  от 2.300 до 2.310 эВ. При этом экситонная компонента поляритонной волны  $\varphi^{ex}(k_0) \approx [1 + 4(\omega_T - \omega_0)^2/\Omega_c^2]^{-1}$  изменяется от 0.83 до 0.91, а при  $I_0 = 100$  кВт/см<sup>2</sup> концентрация экситонной компоненты  $N_0$  изменяется от  $1.2 \cdot 10^{14}$  до  $2.2 \cdot 10^{14}$  см<sup>-3</sup>. Здесь использовано выражение  $N_0 = \varphi^{ex}(k_0) I_0 / \hbar\omega_0 V_g$ , где групповая скорость поляритона  $V_g = c\varepsilon_g^{-1/2} [1 + \Omega_c^2/4(\omega_T - \omega_0)^2]^{-1}$  (для  $\text{HgI}_2$   $\varepsilon_g = 6.8$ ). Законность введения фоновитонных элементарных возбуждений помимо условия (1) связана также с выполнением условий

$$\Omega_c \geq \Omega_0. \quad (2)$$

$$[2\Delta_{p-k_0} \Omega_0]^{1/2} \geq \gamma(p) + \gamma_{\text{phon}}(p - k_0), \quad (3)$$

где  $\Delta_{p-k_0} = 2(N_0 V |M_{p-k_0}|^2)$ ,  $V$  — объем кристалла,  $M_{p-k_0}$  — матричный элемент экситон-фононного взаимодействия,  $\gamma(p)$  и  $\gamma_{\text{phon}}(p - k_0)$  — обратные времена жизни рассеянного экситона и оптического фоновона.

Условие (2) в нашем случае хорошо выполняется. Минимальная величина фоновитонного расщепления, при которой имеет смысл введение фоновитонных возбуждений, полученная из условия (3), составляет 0.004 мэВ (здесь  $\hbar\gamma(p) = 0.05$  мэВ, а  $\hbar\gamma_{\text{phon}}(p - k_0) \approx 0.3$  мэВ оценена по ширине линии спонтанного КР [6]). По всей видимости, в наших экспериментах имеет место начальный этап фоновитонной перестройки, характеризующийся возрастанием вероятности индуцированных переходов поляритонов в МПМ. Однако фоновитонное расщепление на этом этапе мало по сравнению с шириной лазерной линии  $\gamma_{\text{pulse}}(k_0)$ , и условие возможности экспериментального наблюдения перестройки  $\Delta_{p-k_0} > \gamma_{\text{pulse}}(k_0)$  (4) не выполняется.

Помимо предлагаемого в [1-3] метода экспериментального наблюдения фоновитонных состояний по связанному с ними поглощению, на наш взгляд, существует также возможность регистрации излучения фоновитонов. Она связана с тем, что фоновитон благодаря своей фотонной компоненте может превращаться в свет на границе кристалла. Возбужде-

ние фоновитонных состояний может осуществляться через их фоновитонную компоненту тепловыми фоновитами либо неравновесными фоновитами, возникающими, например, при вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР). В последнем случае антистоксова компонента ВКР в фоновитонном описании будет соответствовать излучению фоновитонных состояний. Мы провели соответствующие измерения для кристаллов  $\text{HgI}_2$  и действительно наблюдали антистоксову компоненту ВКР на  $A_{1g}$ -фоновитах при 4.2 К в геометрии рассеяния «вперед» (рис. 3, линия 1А). Здесь возбуждение осуществляется лазером на красителе с  $I_0=500 \text{ кВт/см}^2$  ниже дна экситонной зоны. Линия 1А наблюдается в диапазоне энергий кванта возбуждения  $\hbar\omega_0$  от 2.285 до 2.32 эВ. Тем не менее, поскольку спектральное положение линии 1А  $\hbar\omega_A$  связано с положением первой стоксовой компоненты  $\hbar\omega_C$  соотношением  $\hbar\omega_A=2\hbar\omega_0-\hbar\omega_C$ , то в этом случае фактически фоновитонные состояния резонансно возбуждаются и излучаются лишь

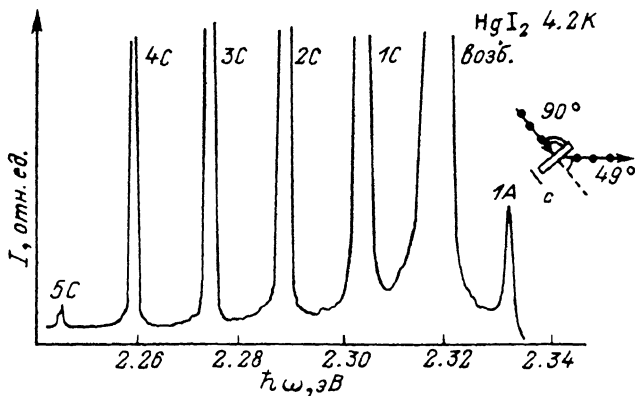


Рис. 3. Спектр ВКР на  $A_{1g}$ -фоновитах в  $\text{HgI}_2$ .  $\hbar\omega_0=2.318 \text{ эВ}$ .

На вставке показана геометрия рассеяния и обозначены поляризации возбуждающего и рассеянного излучений.

на узком участке фоновитонных дисперсионных ветвей. Более благоприятные условия для изучения фоновитонной перестройки возникают при возбуждении фоновитонов тепловыми фоновитами, т. е. при наблюдении антистоксовой компоненты спонтанного КР. По всей видимости, здесь можно наблюдать зависящее от  $I_0$  уширение и, возможно, расщепление антистоксовой линии КР на фоновитонный дублет, соответствующий излучению верхней и нижней фоновитонных ветвей. Преимуществом предлагаемого нами метода является использование лишь одного лазерного источника. Нам, однако, не удалось зарегистрировать линии спонтанного антистоксова КР при возбуждении кристаллов  $\text{HgI}_2$  излучением перестраиваемого лазера на красителе. Основная причина этого — высокий уровень фона в используемом нами дифракционном спектрометре с одной решеткой PGS-2.

Важным вопросом, рассмотренным в [1, 3], является неравновесная Бозе-конденсация поляритонов в МПМ. Авторы данных работ показали, что обсуждавшееся выше активное поглощение антистоксовых поляритонов макрозаполненной модой представляет собой один из возможных механизмов реализации неравновесной Бозе-конденсации. Рассматривается, в частности, проявление неравновесной Бозе-конденсации в условиях повышенных температур, когда антистоксово рассеяние поляритонов из МПМ на тепловых фоновитах становится существенным каналом диссипации энергии МПМ. Активное поглощение макрозаполненной модой антистоксовых поляритонов будет возвращать рассеянные поляритоны в МПМ и таким образом оказывать влияние на кинетическое равновесие между МПМ и рассеянными поляритонами. Экспериментально это должно проявиться в «просветлении» кристалла для МПМ. При низких температурах антистоксово рассеяние отсутствует и кинетическому равновесию

соответствует нулевой концентрации рассеянных внеконденсатных поляритонов. В этом случае Бозе-конденсация должна проявляться в активном поглощении макрозаполненной модой избыточных антистоксовых поляритонов, созданных, например, дополнительным внешним источником.

Если теперь снова обратиться к рис. 1, то становится очевидным, что включение лазера 2 приводит к перекачке определенной части поляритонов из области провала зондирующей люминесцентной полосы в МПМ, т. е. к их неравновесной Бозе-конденсации. Этот процесс отражает тенденцию к установлению кинетического равновесия между МПМ и рассеянными внеконденсатными поляритонами, которое при 4.2 К реализуется при нулевой концентрации внеконденсата.

Помимо формирования провалов в зондирующем поляритонном спектре, неравновесная Бозе-конденсация может существенно изменить и сам

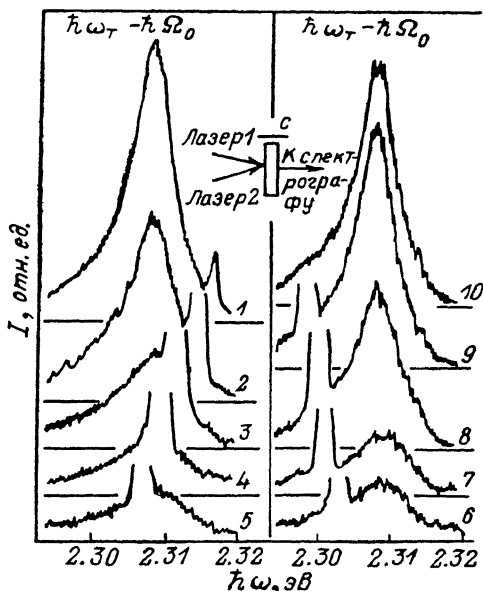


Рис. 4. Спектры люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$  при 55 К для различных  $\hbar\omega_0$ , эВ: 1 — 2.3167, 2 — 2.3146, 3 — 2.3188, 4 — 2.3096, 5 — 2.3071, 6 — 2.3025, 7 — 2.3009, 8 — 2.2997, 9 — 2.2982, 10 — без МПМ.  $\hbar\omega_T - \hbar\Omega_0 = 2.309$  эВ.

характер спектра поляритонной люминесценции. Такая возможность была нами исследована с несколько измененными условиями по сравнению с предыдущим экспериментом. Экспериментальная геометрия показана на вставке к рис. 4. Возбуждение осуществлялось лазером 1 в область экситонного поглощения с  $\hbar\omega = 2.338$  эВ,  $I = 100$  кВт/см<sup>2</sup>. Согласно нашим оценкам, концентрация поляритонов  $N$  достигает в этом случае  $10^{17}$  см<sup>-3</sup>, тогда как переходу Мотта соответствует концентрация  $N_M = (4a_{ex})^{-3} \approx 10^{18}$  см<sup>-3</sup> ( $a_{ex} = 25$  А). Чтобы обеспечить термализованный характер поляритонной люминесценции, а также избежать образования биэкситонов, температура кристалла была повышена до 55 К. Действительно, возникающая в таких условиях единственная люминесцентная полоса с полушириной  $\sim 7$  мэВ расположена на 14.6 мэВ ниже уровня поперечного экситона и является фононным повторением термализованных поляритонов НПВ (рис. 4, 10).  $I_0$  составляла 100 кВт/см<sup>2</sup>, а  $\hbar\omega_0$  в данном случае сканировалась вблизи указанного фононного повторения. Следовательно, область индуцированных переходов антистоксовых поляритонов в МПМ была близка к «бутылочному горлу» НПВ, где концентрация поляритонов максимальна. Трансформация люминесцентных спектров при перестройке  $\hbar\omega_0$  до 2.298 до 2.316 эВ показана на рис. 4. Если положение МПМ удовлетворяет условию  $\hbar\omega_0 \approx \hbar\omega_T - \hbar\Omega_0$ , то наблюдается резкое уменьшение интенсивности люминесцентной полосы. По нашему мнению,

оно отражает уменьшение концентрации поляритонов «бутылочного горла» за счет их индуцированных переходов в МПМ, т. е. неравновесной Бозе-конденсации. Фактически МПМ здесь действует подобно «зародышу» конденсации в  $k$ -пространстве, вызывая переход большей части некогерентных поляритонов НПВ в единственное квантовое состояние  $k_0$ . Прекращение излучения лазера 2, т. е. изъятие МПМ, приводит к восстановлению интенсивности фоновой повторения поляритонов НПВ до исходного уровня (рис. 4, 10).

Выполним в заключение некоторые оценки. Для того чтобы перекачка поляритонов из узкой антистоксовой области существенно трансформировала все энергетическое распределение надконденсатных поляритонов, необходимо, чтобы время энергетической релаксации в системе поляритонов было меньше их времени жизни  $\tau_{\text{рел}} < \tau_{\text{ж}}$ . В предположении столкновительного механизма время релаксации составляет [7]

$$\tau_{\text{рел}} \approx \tau_{\text{ст}} = \frac{\sqrt{M}}{4\sqrt{6}\pi a_{\text{вкс}}^2 N \sqrt{k_B T}} \approx 2 \text{ пс.}$$

Здесь  $N=10^{17} \text{ см}^{-3}$  — концентрация поляритонов,  $M=1.2 m_0$  [8] — трансляционная масса экситона,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T=55 \text{ К}$ . Время жизни поляритонов в области перегиба НПВ составляет, как известно, значительно большую величину, порядка 1 нс. Процессы неравновесной Бозе-конденсации будут существенно уменьшать концентрацию внеконденсатных поляритонов, если выполняется условие  $\tau_{\text{инд}} < \tau_{\text{ж}}$ , т. е. время жизни поляритонов на НПВ относительно их перехода в МПМ существенно меньше, чем без МПМ. Можно считать, что  $1/\tau_{\text{инд}}$  равна произведению вероятности поглощения в максимуме индуцированной полосы  $1/\tau_{\text{инд}}^{\text{max}}$  на вероятность нахождения поляритона НПВ в пределах этой полосы, т. е.  $f(E) \delta_{\text{п}}$ . Здесь  $f(E)$  — энергетическое распределение поляритонов НПВ,  $\delta_{\text{п}}$  — полуширина индуцированной полосы перепоглощения (полагаем  $\delta_{\text{п}}=0.6 \text{ мэВ}$ ). Если предположить максвелловское распределение поляритонов НПВ с  $T=55 \text{ К}$  и если полоса перепоглощения совпадает с максимумом этого распределения, то  $f(E) \delta_{\text{п}}=0.06$ . Для оценки  $\tau_{\text{инд}}^{\text{max}}$  воспользуемся рис. 1. Перепоглощение  $\sim 50\%$  при толщине кристалла 100 мкм означает, что в максимуме полосы время жизни поляритона относительно индуцированного перехода в МПМ составляет  $\sim 30$  пс. Если учесть, что вызванное этими переходами затухание пропорционально концентрации экситонной компоненты МПМ  $N_0$ , то для поляритонов из области «бутылочного горла»  $\tau_{\text{инд}}^{\text{max}}$  составит  $\sim 15$  пс, поскольку МПМ здесь ближе к экситонному уровню. Зависимость матричного элемента экситон-фононного взаимодействия  $M_{p-k_0}$  от волнового вектора фонона здесь не учитываем, хотя она должна привести к дальнейшему уменьшению  $\tau_{\text{инд}}^{\text{max}}$ . Из сказанного следует, что  $\tau_{\text{инд}} \approx \tau_{\text{инд}}^{\text{max}} f(E) \delta_{\text{п}} \leq 250$  пс, т. е., действительно, присутствие МПМ существенно сокращает время жизни, а следовательно, и концентрацию поляритонов в области перегиба НПВ.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Иванов А. Л., Келдыш Л. В. ЖЭТФ, 1983, т. 84, № 1, с. 404—421.
- [2] Иванов А. Л. ДАН СССР, 1985, т. 283, № 1, с. 99—102.
- [3] Иванов А. Л. ЖЭТФ, 1986, т. 90, № 1, с. 158—168.
- [4] Выговский Г. С., Голубев Г. П., Жуков Е. А., Фомичев А. А., Якшин М. А. Письма в ЖЭТФ, 1985, т. 42, № 4, с. 134—136.
- [5] Плачек Г. Рэлеевское рассеяние и Раман-эффект. Киев: ОНТИУ, 1935. 174 с.
- [6] Гайслер В. А., Залетин В. М., Лях Н. В. и др. Дишодид ртуты: получение, свойства, применение. Новосибирск: Наука, 1984. 104 с.
- [7] Ojima M., Kushida T., Tanaka Y., Shionoya S. J. Phys. Soc. Japan, 1978, vol. 44, N 4, p. 1294—1304.
- [8] Goto T., Nishina Y. Sol. St. Comm., 1979, vol. 31, N 10, p. 751—754.