

02

## Поверхностно-радиационные моды и продольные экситоны в спектрах экситон-поляритонной люминесценции

© Б.Ж. Ахмадалиев, Н.Х. Юлдашев, И.И. Юлчиев

Ферганский политехнический институт,  
150107 Фергана, Узбекистан  
e-mail: uzferfizika@mail.ru

Поступила в редакцию 20.02.2018 г.

Исследованы низкотемпературные ( $T = 2$  К) спектры экситон-поляритонной люминесценции в окрестности частоты экситонного резонанса  $A_{n=1}$  кристаллов CdS с учетом затухания  $\hbar\Gamma$  механических экситонов. Проанализированы результаты численных расчетов парциальных и интерференционных вкладов объемных и поверхностно-радиационных спектральных мод в геометрии излучения добавочных волн в вакуум с  $s$ - и  $p$ -поляризациями. Показано, что вклады чисто продольных экситонов и их интерференции с поляритонами верхней дисперсионной ветви в люминесценцию вблизи продольной частоты  $\omega_L$  небольшие ( $\sim 10$ – $30\%$ ). Тем не менее, учет их необходим для получения количественного согласия с экспериментом и именно они обуславливают формирование дополнительной линии  $A'_L$  при наклонном излучении.

DOI: 10.21883/OS.2018.09.46546.52-18

### Введение

Поляритонный механизм люминесценции играет важную роль в формировании низкотемпературных спектров излучения полупроводниковых кристаллов в окрестности экситонных резонансов. К настоящему времени достигнуто понимание многих качественных сторон явления поляритонной люминесценции (ПЛ), связанных с особенностями дисперсии поляритонов, условиями прохождения излучения через границу в области резонанса, характером пространственного и энергетического распределения поляритонов [1–9]. Детальное изучение экситонной энергетической структуры кристаллов показывает, что в формировании спектров низкотемпературной фотолюминесценции наряду с явлениями светоэкситонного взаимодействия (поляритонный эффект) и пространственной дисперсии (зависимость тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\alpha\beta}$  от волнового вектора  $\mathbf{k}$ ) существенную роль могут играть эффекты, связанные с экситонным затуханием  $\hbar\Gamma$ . В частности, экситонное затухание может обуславливать возгорание излучения поверхностно-радиационных мод (чисто пространственно затухающих волн вглубь кристалла при  $\Gamma = 0$ ) и интерференционной люминесценции когерентно излучающих состояний различных дисперсионных ветвей с близкими значениями  $\omega$  и  $\mathbf{k}$ . В работах [6–9] была построена теория ПЛ в случае, когда диссипативное затухание экситона нарушает критерии применимости кинетического уравнения Больцмана

$$|\text{Re}\mathbf{k}_\beta| \gg \alpha_\beta, \quad (1)$$

и справедливая при произвольном соотношении между  $|\text{Re}\mathbf{k}_2|$  и  $\alpha_2$  (где  $\mathbf{k}_2$  и  $\alpha_2$  — волновой вектор и коэффициент поглощения поляритонов верхней дисперсионной ветви 2). На основе этой теории были последовательно

рассчитаны вклады волн нижней поляритонной ветви 1 и сильно затухающей волны 2 в ПЛ в окрестности частоты  $\omega_L$  продольного экситона (ветвь 3) и удовлетворительно проанализированы экспериментальные спектры ПЛ кристаллов  $\text{ZnP}_2$ , CdS и CdTe. Однако при этом конкретный расчет и эксперимент ограничивались самым простым случаем — анализом нормально выходящего из кристалла в вакуум поляритонного излучения, когда отсутствует вклад продольных экситонов в ПЛ. Хотя уже давно известно [3–5], что при наличии пространственной дисперсии (ПД) возможен перенос энергии в кристаллах чисто продольными экситонами и они проявляются в спектрах низкотемпературной фотолюминесценции кристаллов CdS лишь при наклонном излучении [7,8]. Тем не менее, количественный анализ их вкладов в экситон-поляритонную люминесценцию (ЭПЛ) до сих пор не проводился.

В настоящей работе обобщается микроскопическая теория ПЛ кристаллов с ПД типа CdS с учетом вкладов излучения чисто продольных экситонов в окрестности частоты  $\omega_L$ . Рассматривается ЭПЛ в случае, когда неравенство (1) одновременно нарушается для добавочных волн  $\beta = 2$  и  $\beta = 3$ , но остается справедливым для поляритонов нижней дисперсионной ветви  $\beta = 1$ . Развитая теория ЭПЛ вопреки обычной теории ПЛ, основанной на использовании функции распределения поляритонов, позволяет учесть интерференцию когерентно излучающих состояний поперечных поляритонов и продольных экситонов при наличии затухания  $\Gamma \neq 0$  (что несомненно является новым эффектом, отсутствовавшим в работах [6,7,9–11]), т. е. выйти за пределы применимости кинетического уравнения для волн 2 и 3, определяемым наряду с (1) также и более жестким условием

$$|\text{Re}(\mathbf{k}_\beta - \mathbf{k}_{\beta'})| \gg \alpha_\beta, \alpha_{\beta'} \quad (\beta, \beta' = 2, 3). \quad (2)$$

При выполнении неравенства (2) можно пренебречь интерференционным вкладом когерентно излучающих поляритонных состояний разных дисперсионных ветвей. С помощью этой теории здесь проводится анализ угловой зависимости экспериментальных спектров ЭПЛ кристаллов CdS с гексагональной точечной симметрией для *s*- и *p*-поляризаций излучения.

### Теория

Рассмотрим дипольно-активный триплетный экситон, характеризуемый резонансной частотой  $\omega_0$ , эффективной массой  $M$  и продольно-поперечным расщеплением  $\omega_{LT} = \omega_L - \omega_0$  в кристалле с изотропным тензором диэлектрической проницаемости [5,6,9]:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\alpha\beta}(\omega\mathbf{k}) &= \varepsilon(\omega, \mathbf{k})\delta_{\alpha\beta} \\ &= \varepsilon_b \left[ 1 + \frac{\omega_{LT}}{\omega_0(\mathbf{k}) - \omega - i\Gamma(\omega, \mathbf{k})/2} \right] \delta_{\alpha\beta}, \end{aligned} \quad (3)$$

где  $\varepsilon_b$  — фоновая диэлектрическая проницаемость,  $\hbar\omega_0(\mathbf{k}) = \hbar\omega_0 + \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2M}$  — энергия механического экситона,  $\Gamma(\omega, \mathbf{k})$  — затухание экситона, определяемое процессами рассеяния или захвата. Известно, что в таких кристаллах могут возбуждаться нормальные волны двух типов — поперечные ( $\varepsilon(\omega, \mathbf{k}) = c^2k^2/\omega^2$ , где  $c$  — скорость света в вакууме) и продольные ( $\varepsilon(\omega, \mathbf{k}) = 0$ ). Для большинства полупроводников  $\omega_{LT} \ll \omega_0$  (например, для CdS  $\omega_{LT} = 2.0$  meV,  $\omega_0 = 2552.4$  meV при  $T = 2$  K) и в окрестности резонанса  $\omega_0$ , определяемой условием

$$|\omega - \omega_0| \ll \sqrt{\omega_0\omega_{LT}}, \quad (4)$$

дисперсионные уравнения поперечных поляритонов  $\beta = 1, 2$  и продольных экситонов  $\beta = 3$  можно представить в упрощенном виде:

$$\omega = \omega_{\mathbf{k}}^{(T)} = \omega_0 + \frac{\hbar\mathbf{k}^2}{2M} - \frac{\varepsilon_b\omega_{LT}}{(c\mathbf{k}/\omega_0)^2 - \varepsilon_b} - i \frac{\Gamma(\omega, \mathbf{k})}{2}, \quad (5)$$

$$\omega = \omega_{\mathbf{k}}^{(3)} = \omega_L + \frac{\hbar\mathbf{k}^2}{2M} - i \frac{\Gamma(\omega, \mathbf{k})}{2}, \quad \omega_L = \omega_0 + \omega_{LT}, \quad (6)$$

причем поляритоны 1 и 2 описываются формулой (5) соответственно в областях  $k > k_0\sqrt{\varepsilon_b}$  и  $k < k_0\sqrt{\varepsilon_b}$ , где  $k_0 = \omega_0/c$ .

С ростом затухания  $\hbar\Gamma$  дисперсионные кривые, согласно (5) и (6), сильно изменяются. Это особенно заметно вблизи продольной частоты  $\omega_L$  для мод 2 и 3, которые при  $\hbar\Gamma = 0$  являются распространяющимися лишь в области частот  $\omega > \omega_\theta$  и чисто затухающими, т. е. поверхностно-радиационными, когда  $\omega < \omega_\theta$ . Характерная частота  $\omega_\theta \geq \omega_L$  определяется условием полного внутреннего отражения волн  $\beta = 2, 3$ :

$$\text{Re}n_\beta = c\text{Re}k_\beta(\omega)/\omega = \sin\theta. \quad (7)$$

Здесь  $\theta$  — угол выхода излучения из кристалла в вакуум,  $n_\beta$  — показатель преломления кристалла для

волны  $\beta$ , причем  $\text{Re}n_\beta < 1$  при  $\omega < \omega_\theta$ . Заметим, что, во-первых, появление при  $\hbar\Gamma \neq 0$  мнимой части волнового вектора  $\mathbf{k}_\beta$  при  $\omega > \omega_\beta$  означает определенное пространственное затухание распространяющихся мод, что приводит в некоторой области частот  $\omega - \omega_\theta \sim \Gamma$  к нарушению неравенств (1) и (2). Во-вторых, в области частот  $\omega < \omega_\theta$ , где всегда нарушается условие (1) для волн 2 и 3, при конечном  $\Gamma$  возникает вещественная добавка к волновому вектору  $\mathbf{k}_\beta$ , которая означает, что поверхностно-радиационные моды 2 и 3 перестают быть чисто затухающими и включаются в перенос энергии экситонного возбуждения в кристалле. Последние обстоятельства безусловно имеют существенное значение в формировании спектра ЭПЛ кристаллов в геометрии излучения чисто продольных экситонов, исследование которых и является основной целью настоящей работы.

Исследуем спектральную интенсивность излучения  $I_\lambda^{(0)}(\omega, \Omega)$  с поляризацией  $\lambda$ , распространяющегося в вакууме у поверхности кристалла ( $z = -0$ ) в направлении единичного вектора  $\Omega(\theta, \varphi)$  (который лежит в плоскости  $yz$ , а внутренняя нормаль к границе кристалла направлена вдоль оси  $z$ ;  $\lambda = s, p$ , где  $s \parallel x, p \parallel y$ ):

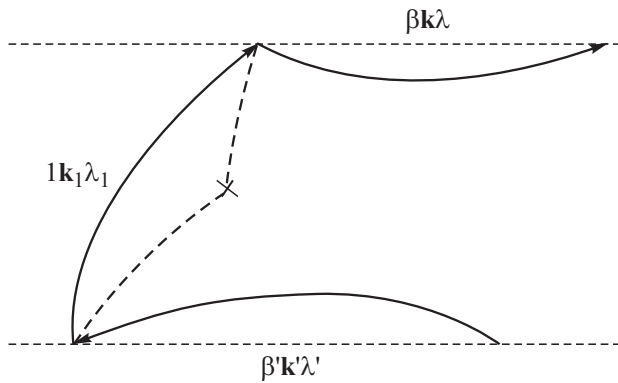
$$I_\lambda^{(0)}(\omega, \Omega) = \sum_\beta I_{\beta\lambda}^{(0)}(\omega, \Omega),$$

$\beta = 1, 2$  при  $\lambda = s$  и  $\beta = 1, 2, 3, 23$  при  $\lambda = p$ . Парциальная интенсивность  $I_{23p}^{(0)}$  описывает интерференционный вклад в ЭПЛ волн 2 и 3. Считаем, что в окрестности частоты  $\omega_L$  можно пренебречь рассеянием волн внутри ветвей  $\beta = 2, 3$  и не учитываем генерацию волн 2 и 3 с малыми значениями  $\mathbf{k}$ , происходящую за счет рассеяния на LO-фононах из вышележащих экситонных состояний, а также возможное их индуцирование многократным зеркальным отражением волн 1 от внутренней границы кристалла [5]. Таким образом, функция распределения  $f$  поляритонов в основном формируется за счет их релаксации по состояниям поперечной моды  $1 - f_{1k\lambda}(\omega, z)$ .

Последовательное определение функции  $f_{1k\lambda}(\omega, z)$  выходит за рамки настоящей работы, и она считается заданной. Естественно, что в кубическом кристалле в результате многократных рассеяний происходит изотропизация функции распределения по направлениям и состояниям поляризации. Далее при расчете в узкой области частот вблизи  $\omega_L$  достаточно ограничиться простейшей факторизованной формой

$$f_{1k\lambda}(\omega, z) = f_1(\omega) \exp(-z/L),$$

содержащей некоторую плавную частотную зависимость  $f_1(\omega)$ . Здесь  $L$  — эффективная глубина распределения поляритонов ветви 1, определяемая процессами многократного рассеяния экситон-поляритонов. Координатная зависимость  $f_{1k\lambda}(\omega, z)$  только от  $z$  соответствует однородности задачи вдоль поверхности.



**Рис. 1.** Диаграмма для функции Грина  $G_{\beta\lambda}^{-+}(\mathbf{k}, \mathbf{k}'; \omega)$ . При  $\lambda = s$  индекс  $\beta = \beta' = 2$ , при  $\lambda = p - \beta, \beta' = 2, 3$ .

Парциальный вклад  $I_{1\lambda}^{(0)}$  определяется по формуле [5]:

$$I_{1\lambda}^{(0)}(\omega, \Omega) = \frac{k_0^2}{(2\pi)^3} \hbar \omega T_{01}^{(\lambda)} f_{1k\lambda}(z = +0), \quad (8)$$

где

$$T_{0\beta}^{(\lambda)} = \frac{I_N^{(0)}}{I_N^{(\beta)}} = \frac{\cos \theta}{\cos \theta_\beta} \frac{1}{n_\beta} \frac{w_0}{w_\beta} |t_{0\beta}^{(\lambda)}|$$

— энергетический коэффициент пропускания волны  $\beta$  с поляризацией  $\lambda$  из кристалла в вакуум,  $t_{0\beta}^{(\lambda)}$  — соответствующий амплитудный коэффициент пропускания,  $I_N$  — нормальная составляющая плотности потока энергии к поверхности,  $n_\beta w_\beta$  — коэффициент связи между плотностью потока энергии и квадратом модуля амплитуды электрического поля нормальной волны  $\beta$ :

$$w_0 = \frac{c}{8\pi}, \quad w_\beta = \frac{c}{8\pi} \left[ 1 - \delta_{\beta 3} + \frac{\omega_M \varepsilon_b}{\omega_{LT}} \left( \frac{n_\beta^2}{\varepsilon_b} - 1 + \delta_{\beta 3} \right) \right]^2,$$

$$\beta = 1-3.$$

Интенсивность ЭПЛ с  $s$ -поляризацией

$$I_s^{(0)}(\omega, \Omega) = I_{1s}^{(0)}(\omega, \Omega) + I_{2s}^{(0)}(\omega, \Omega)$$

не содержит интерференционный член, так как условие (2) считаем выполненным. Парциальный вклад  $I_{1s}^{(0)}$  определяется в кинетическом приближении формулой (8) с  $\lambda = s$ . Для расчета  $I_{2s}^{(0)}$  при конечных значениях экситонного затухания, т.е. с учетом произвольного соотношения между  $\text{Re}k_2$  и  $\alpha_2$ , воспользуемся диаграммной техникой Келдыша и рассчитаем функцию Грина  $G_{2s}^{-+}(\mathbf{k}, \mathbf{k}'; \omega)$  для поляритонов ветви 2 с поляризацией  $\lambda$  при заданной функции распределения поляритонов ветви 1 в пренебрежении рассеянием внутри ветви 2. На рис. 1 представлена диаграмма для функции  $G_{\beta\lambda}^{-+}(\mathbf{k}, \mathbf{k}'; \omega)$ . Сплошным линиям отвечают функции

Грина экситонов, перенормированные с учетом экситон-фотонного и экситон-решеточного взаимодействия:

$$G_{\mathbf{k}\omega}^{-+} = [\omega - \omega_{\mathbf{k}}^{(T)} + i\Gamma(\omega, \mathbf{k})/2]^{-1}, \quad G_{\mathbf{k}\omega}^{++} = -(G_{\mathbf{k}\omega}^{--})^*,$$

$$G_{1k\lambda\omega}^{-+}(z) = 2\pi f_{1k\lambda}(z) \delta(\omega - \omega_{1k}^{(T)}),$$

где  $\Gamma(\omega, \mathbf{k})$  — затухание поляритона, определяемое процессами рассеяния или захвата. Функция  $G_{\mathbf{k}\omega}^{-+}$  ( $G_{\mathbf{k}\omega}^{++}$ ) разлагается на сумму двух полюсных слагаемых:

$$G_{\mathbf{k}\omega}^{--} = \sum_{\beta=1,2} G_{\beta\mathbf{k}\omega}^{--}, \quad G_{\beta\mathbf{k}\omega}^{--} = (-1)^\beta \frac{2M}{\hbar} \frac{k_\beta^2 - \varepsilon_b k_0^2}{k_1^2 - k_2^2} \frac{1}{k^2 - k_\beta^2}.$$

При расчете  $I_{2s}^{(0)}$  верхней и нижней экситонным линиям на рис. 1 сопоставляются функции  $G_{2k\omega}^{--}$  и  $G_{2k'\omega}^{++}$ . Учитывать диаграмму с внешними линиями  $G_{1k\omega}^{--}$  и  $G_{1k\omega}^{++}$ , т.е. учитывать рассеяние  $1 \rightarrow 1$  не требуется, так как функция  $f_{1k\lambda}(z)$  считается заданной. Используя правила диаграммной техники, получим

$$I_{2s}^{(0)}(\omega, \Omega) = \frac{1}{8\pi} \frac{k_0^2}{(2\pi)^3} |t_{02}^{(s)}|^2 \langle |E_s^{(2)}(\mathbf{k}_\perp, \omega; z = +0)|^2 \rangle, \quad (9a)$$

$$\langle |E_s^{(2)}(\mathbf{k}_\perp, \omega; z)|^2 \rangle = C \sum_{\mathbf{k}_1 \lambda_1} \sum_j \left| \sum_{k_z} \frac{G_{2k\omega}^{--}}{n_2^2(\omega) - \varepsilon_b} \times \exp[ik_z(z - z_j)] e_s^{(\mathbf{k}_1 \lambda_1)} V(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \right|^2 G_{1k_1 \lambda_1 \omega}^{-+}(z). \quad (9b)$$

Здесь  $E_s^{(2)}(\mathbf{k}_\perp, \omega; z)$  — амплитуда световой волны с частотой  $\omega$  и поперечной составляющей  $\mathbf{k}_\perp$  (отметим, что  $\mathbf{k}_\perp$  является хорошим квантовым числом), равной поперечной составляющей  $k_0 \Omega_\perp$  волнового вектора этой волны в вакууме,  $t_{02}^{(s)}$  — амплитудный коэффициент пропускания,  $n_2 = k_2/k_0$  — показатель преломления волны 2,  $e^{(\mathbf{k}_1 \lambda_1)}$  — вектор поляризации,  $e_s^{(\mathbf{k}_1 \lambda_1)}$  — его проекция на ось  $X$ ,  $z_j$  — координата  $j$ -го рассеивающего центра,  $C$  — константа.

Подставляя (9b) в (9a), заменяя суммирование по  $j$  интегрированием по  $\mathbf{r}_j$  согласно правилу  $\sum_j \rightarrow N_i \int d\mathbf{r}_j$  и интегрируя по  $k_z$  и  $\mathbf{k}_1$ , окончательно получим

$$I_{2s}^{(0)}(\omega, \Omega) = \frac{|t_{02}^{(s)}|^2}{(2\pi)^3} \frac{f_1(\omega)}{2k_0 \text{Im}n_{2z} + L^{-1}} \frac{2M^2 c \varepsilon_b \omega_{LT} \cos \theta}{\hbar \tau_{21} |n_{2z} (n_1^2 - n_2^2)|^2}, \quad (9)$$

где  $n_{2z} = (n_2^2 - \sin^2 \theta)^{1/2}$  величины  $t_{02}^{(s)}$  и  $n_2$  рассчитываются с учетом затухания  $\Gamma = 1/2\tau_{21}$ .

При упругом рассеянии на статических дефектах

$$\frac{1}{\tau_{21}(\omega)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \frac{2}{3} N_i \sum_{\mathbf{k}_1} |V(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)|^2 \delta(\omega - \omega_{1\mathbf{k}_1}^{(T)}), \quad (9c)$$

где  $N_i$  — концентрация дефектов,  $V(\mathbf{q})$  — фурье-образ возмущающего потенциала. Для изотропного потенциала  $V(\mathbf{q}) \equiv V(q)$ . Заметим, что при  $\omega_M \ll \omega_{LT}/\varepsilon_b$  величина  $k_2(\omega)$  мала по сравнению с  $k_1(\omega)$  и в (9c)  $V(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)$  можно заменить на  $V(\mathbf{k}_1)$ .

В случае излучения с  $p$ -поляризацией для расчета парциальных вкладов  $I_{1p}^{(0)}$ ,  $I_{3p}^{(0)}$  и интерференционной составляющей  $I_{p23}^{(0)}$  в суммарную интенсивность  $I_p^{(0)}$  по (8):

$$I_p^{(0)}(\omega, \Omega) = \sum_{\beta=1,2,3} I_{\beta p}^{(0)}(\omega, \Omega) + I_{p23}^{(0)}(\omega, \Omega) \quad (10)$$

рассмотрим функции Грина  $G_{2p}^{-+}(\mathbf{k}, \mathbf{k}'; \omega)$  для поперечных поляритонов ветви 2 и  $G_{3p}^{-+}(\mathbf{k}, \mathbf{k}'; \omega)$  для продольных экситонов. Диаграмма для этих функций изображена на рис. 1, где  $\lambda, \lambda' = p$  и  $\beta, \beta' = 2, 3$ . Сплошной линии в случае продольного экситона отвечает функция Грина

$$G_{3k\omega}^{--} = [\omega - \omega_k^{(3)} + i\Gamma(\omega, \mathbf{k})/2]^{-1} = -\frac{2M}{\hbar} \frac{1}{k^2 - k_3^2}, \quad (11)$$

где  $\omega_k^{(3)}$  — определяется формулой (6), а  $k_3$  является решением дисперсионного уравнения продольных экситонов:

$$k_3 = n_3 k_0, \quad n_3 = \left( (\omega + i \frac{\Gamma}{2} - \omega_L) / \omega_M \right)^{1/2}. \quad (12)$$

Используя рассуждения и технику выкладки для  $s$ -поляризации, получим

$$I_{\beta p}^{(0)}(\omega, \theta) = F_\beta \frac{|F_{\beta p}|^2}{2k_0 \text{Im} n_{\beta z} + L^{-1}}, \quad \beta = 2, 3, \quad (13)$$

$$I_{p23}^{(0)}(\omega, \theta) = 2\text{Re} \left[ F_{23} \frac{F_{2p} F_{3p}^*}{-ik_0(n_{2z} - n_{3z}^*) + L^{-1}} \right], \quad (14)$$

где

$$F_\beta = \frac{1}{(2\pi)^3} \frac{2M^2 c \varepsilon_b \omega_{LT} \cos \theta f_1(\omega)}{\hbar \tau_{\beta 1}}, \quad (15)$$

$$F_{2p} = \frac{t_{02}^{(p)}}{n_{2z}(n_1^2 - n_2^2)}, \quad F_{3p} = \frac{t_{03}^{(p)}}{n_{3z} \varepsilon_b},$$

а  $F_{23}$  получается из  $F_\beta$  заменой величины  $\tau_{\beta 1}$  на  $(\tau_{21} \tau_{31})^{1/2}$ . При этом учитывалось, что для продольных экситонов напряженность электрического поля и экситонная часть поляризации кристалла связаны соотношением  $4\pi \mathbf{P}_3 = -\varepsilon_b \mathbf{E}_3$ . Выражение (14) описывает интерференционный вклад волн ветвей 2 и 3 в интенсивность внешнего излучения  $p$ -поляризации, обусловленный рассеянием на одном и том же центре поляритонов ветви 1 в когерентно излучающие состояния 2 и 3 в условиях, когда наряду с (1) нарушается и неравенство (2).

Теперь остается рассчитать амплитудные коэффициенты пропускания  $t_{0\beta}^{(p)}$  волны  $\beta$  в вакуум. При этом использовали наряду с граничными условиями Максвелла еще и дополнительное граничное условие Пекара с „мертвым слоем“ [7]. В случае падения изнутри кристалла на его

поверхность волны 2 с  $p$ -поляризацией находим

$$t_{02}^{(p)}(\theta) = \frac{n_1^2 - n_2^2}{n_1^2 - \varepsilon_b} \times \frac{2n_{2z}/n_2}{(n_{0z} + \bar{n}_p) \cos \delta - i \sin \delta \left[ \frac{\bar{n}_z}{\varepsilon_b} (1 + \bar{n}_{p1}) + \frac{n_{0z} \varepsilon_b}{\bar{n}_z} \bar{n}_{p2} \right]}, \quad (16)$$

где

$$\bar{n}_p = n_{0z} \bar{n}_{p1} + \bar{n}_{p2}, \quad \bar{n}_{p2} = (n_{2z} + n_{1z} \bar{n}_{p1}) \varepsilon_b,$$

$$\bar{n}_{p1} = \frac{n_1^2 n_{2z} n_{3z} + n_{0x}^2}{n_2^2 n_{1z} n_{3z} + n_{0x}^2} \frac{\varepsilon_b - n_2^2}{n_1^2 - \varepsilon_b}, \quad n_{\beta x} = n_{0x} = \sin \theta.$$

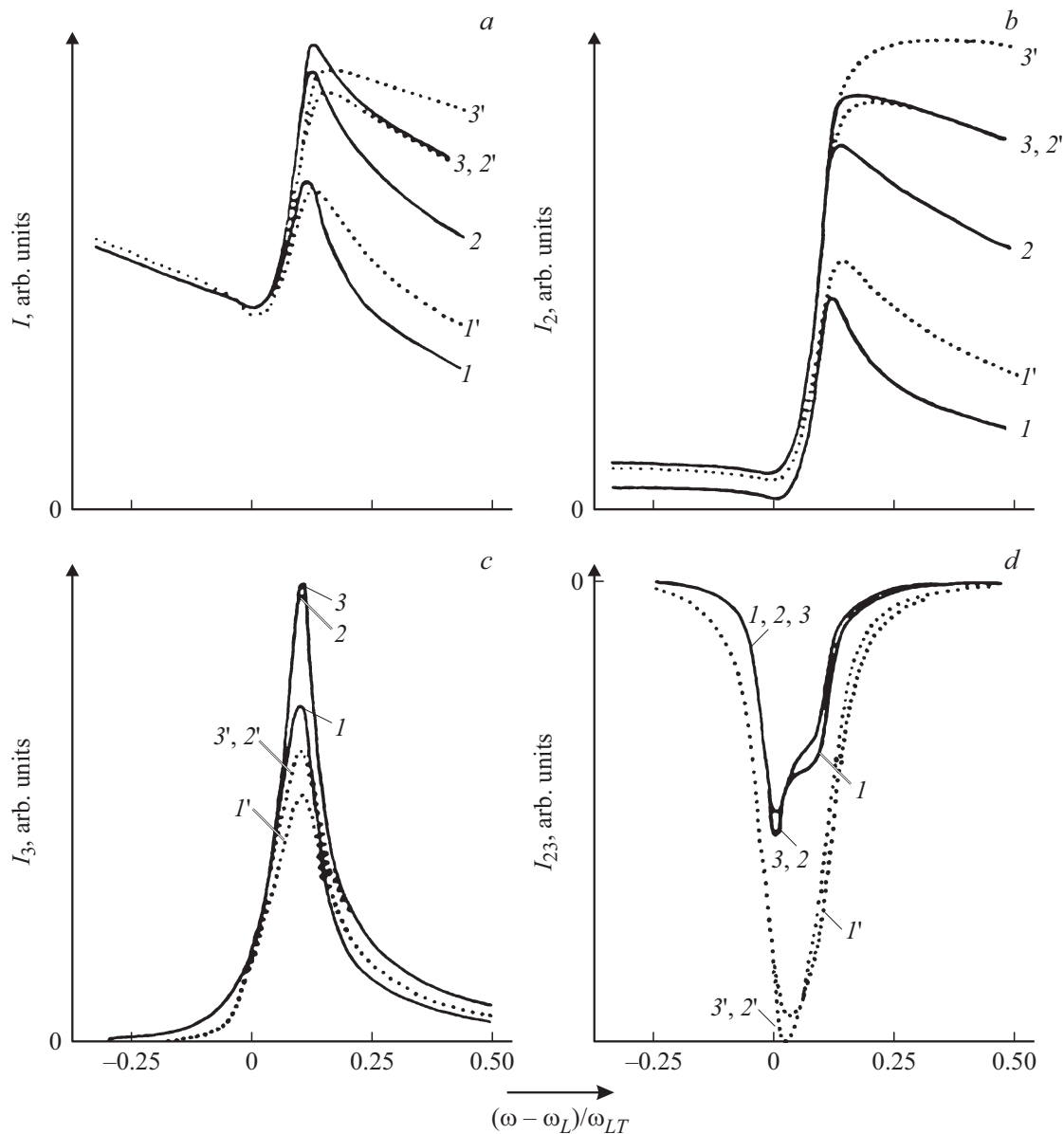
Коэффициент пропускания  $t_{01}^{(p)}$  получается из  $t_{02}^{(p)}$  симметричной заменой  $n_1 \leftrightarrow n_2$ . А в случае падения изнутри кристалла на его поверхность продольной волны определяем амплитудный коэффициент превращения нормальной волны продольных экситонов во внешнее световое излучение в следующем виде:

$$t_{03}^{(p)}(\theta) = \frac{2n_{0x}(n_{1z} - n_{2z})n_{3z}/n_3}{\sum_{\beta=1,2} (-1)^\beta \frac{n_\beta^2 - \varepsilon_b}{n_\beta^2} (n_{0x}^2 + n_{\beta z} n_{3z}) \left[ (n_{0z} + \frac{n_3 - \beta z}{\varepsilon_b}) \cos \delta - i \sin \delta \left( \frac{\bar{n}_z}{\varepsilon_b} + \frac{n_{0z} n_{3 - \beta z}}{n_z} \right) \right]}. \quad (17)$$

## Результаты численного расчета и сравнение с экспериментом

Для численного расчета парциальных  $I_{\beta p}^{(0)}(\omega)$ ,  $I_{\beta s}^{(0)}$  и интегральных  $I_s^{(0)}(\omega)$ ,  $I_p^{(0)}$  спектральных интенсивностей люминесценции воспользовались формулами (8)–(10) и (13)–(15) как основными, а также вспомогательными формулами типа (16), (17) для амплитудных коэффициентов пропускания  $t_{0\beta}^{(\lambda)}$  и показателей преломления  $n_\beta$ . Единственным варьируемым параметром теории является эффективная глубина распределения поляритонов  $L$  нижней ветви 1. Значение  $\hbar\Gamma$  считаем известным из эксперимента. Численные расчеты проводились при следующих значениях основных параметров экситонного резонанса  $A_{n=1}$  кристалла CdS:  $\hbar\omega_0 = 2.5524$  eV,  $\hbar\omega_{LT} = 2.0$  meV,  $M_{ex} = 0.9m_0$  ( $m_0$  — масса свободного электрона), фоновая диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon_b = 9.4$ , толщина „мертвого слоя“  $\lambda = 70^\circ$ . Эти значения параметров хорошо согласуются с экспериментальными результатами по экситонному отражению света и экситонной люминесценции при  $T = 2$  K [4,7].

На рис. 2 приведены теоретические спектральные зависимости  $I_p^{(0)}(a)$ ,  $I_{2p}^{(0)}(b)$ ,  $I_{3p}^{(0)}(c)$  и  $I_{p23}^{(0)}(d)$ , рассчитанные при  $\theta = 80^\circ$  и разных значениях параметров  $\Gamma$  и  $L$ . Оказалось, что интенсивность и полуширина кривых  $I_{2p}^{(0)}(\omega)$ , и следовательно,  $I_p^{(0)}(\omega)$  существенно зависят от  $\Gamma L$ . Аналогичные параметры кривых  $I_{3p}^{(0)}(\omega)$  и  $I_{p23}^{(0)}(\omega)$  при  $L > 1 \mu\text{m}$  практически не чувствуют изменение значения  $L$ , что обусловлено относительно

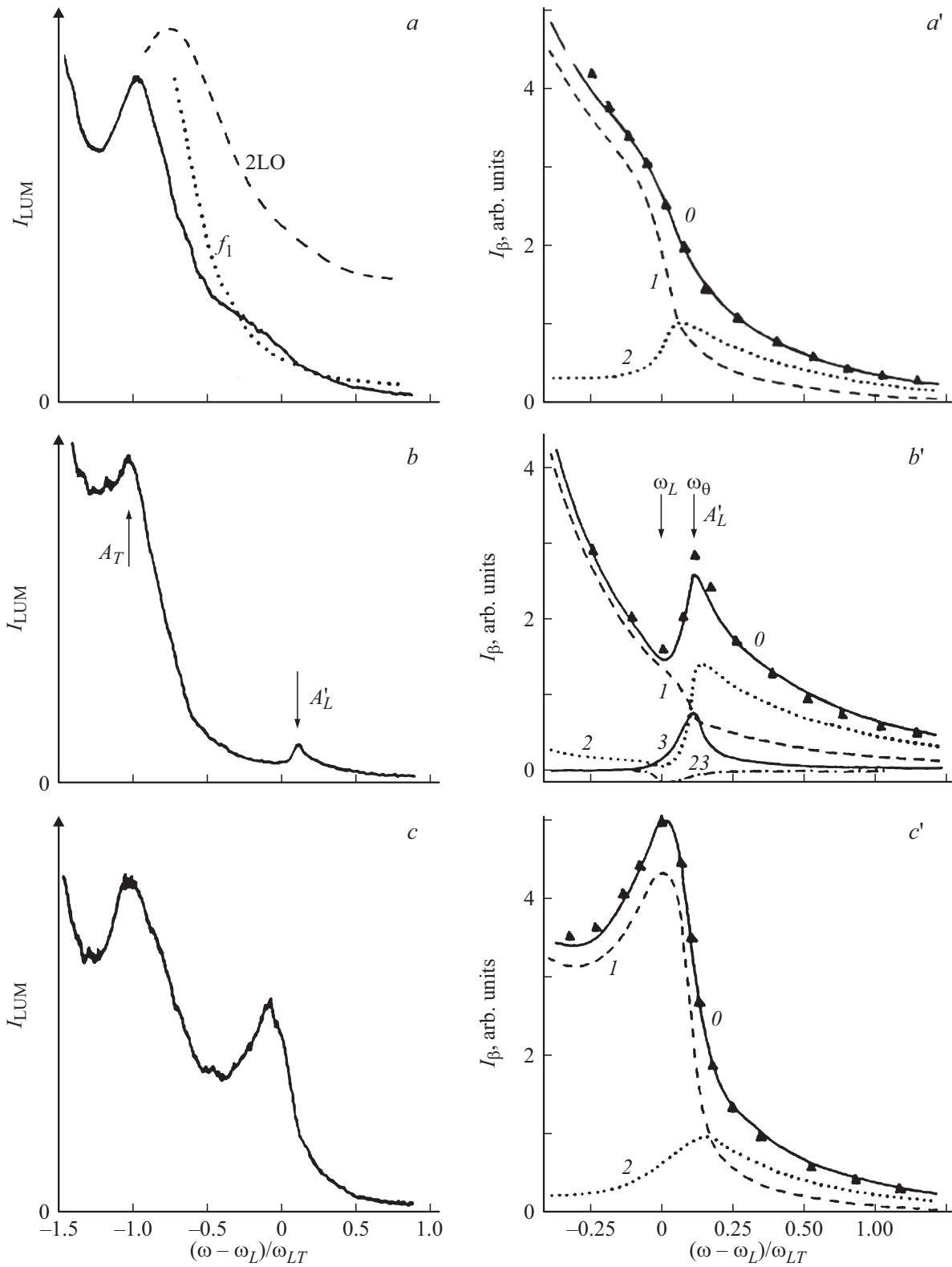


**Рис. 2.** Спектральные зависимости полной  $I_p^{(0)}$ , парциальных  $I_{2p}^{(0)}$ ,  $I_{3p}^{(0)}$  интенсивностей и интерференционного вклада  $I_{23p}^{(0)}$ , рассчитанные для параметров экситонного резонанса  $A_{(n=1)}$  в CdS при угле выхода в вакуум  $\theta = 80^\circ$  и для разных значений экситонного затухания  $\hbar\Gamma = 0.075$  ( $I-3$ ),  $0.15$  meV ( $I'-3'$ ) и глубины распределения поляритонов ветви 1:  $L = 0.2$  ( $I, I'$ ),  $1.0$  ( $2, 2'$ ),  $2.0$   $\mu\text{m}$  ( $3, 3'$ ).

большим значением коэффициента поглощения волны 3 ( $\alpha_3 L \gg 1$ ). Более того, полуширина  $\Delta_3$  кривой  $I_{3p}^{(0)}(\omega)$  почти полностью определяется величиной  $\Gamma$ . Согласно численному расчету  $\Delta_3 \approx 2\Gamma$ . Заметим, что вклад  $I_{3p}^{(0)}$  в  $I_p^{(0)}$  с ростом  $\hbar\Gamma$  резко уменьшается, при этом  $I_{2p}^{(0)}$  — растет и сильно уширяется, в результате чего при одном и том же значении  $L$  увеличение  $\Gamma$  приводит к слабому уменьшению максимума  $I_p^{(0)}(\omega)$  на частоте  $\omega_\theta$  и его уширению. Это объясняется результатом подавления ПД для продольных волн затуханием механических экситонов.

Квантовую теорию, развитую выше, используем для описания экспериментальных спектров ЭПЛ кристаллов

CdS в „изотропных“ геометриях излучения ( $s$  — поляризация, когда  $\Omega(\theta, \varphi)$  лежит в плоскости  $YZ$  и оптическая ось  $C \parallel Y$ ;  $p$  — поляризация, когда  $\Omega \perp C \parallel X$ ). Спектры регистрировались на установке профессора Селькина А.В., собранной на базе спектрометра ДФС-24, в режиме счета фотонов при минимальной спектральной ширине щели  $0.04$  meV в условиях максимально возможного спектрального разрешения. Возбуждение ЭПЛ осуществлялось на длине волны  $\lambda = 476.5$  nm светом  $\text{Ag}^+$ -лазера, сфокусированным на поверхность кристалла в пятно размером  $\sim 0.4 \times 4$  mm при мощности светового потока  $\sim 7$  mW.



**Рис. 3.** Экспериментальные (*a, b, c*) и теоретические (*a', b', c'*) спектры ЭПЛ кристаллов CdS ( $T = 2$  K) при *s*- (*a, a'; c, c'*) и *p*-поляризации (*b, b'*) для углов выхода  $\theta = 0$  (*a, a'*) и  $80^\circ$  (*b, b', c, c'*). *0* — суммарная интенсивность излучения, треугольники — эксперимент; *1, 2* и *3* — вклады поперечных поляритонов (ветви 1, 2) и продольных экситонов (ветвь 3), *23* — интерференционный вклад  $I_{p23}^{(0)}$ .

На рис. 3, *a, c* представлены общий вид контуров люминесценции кристалла CdS ( $A_{n=1}$ ,  $T = 2\text{ K}$ ) в *s*-геометрии излучения при  $\theta = 0$  (*a*) и  $\theta = 80^\circ$  (*c*). Штриховая линия на рис. 3, *a* изображает экспериментально измеренную по спектру 2ЛО-повторения функцию заселенности  $g_1(\omega) = \rho_1(\omega)f_1(\omega)$  поляритонных состояний ветви 1, откуда определялась функция распределения  $f_1(\omega)$ , показанная там же пунктирной линией. Теоретические спектры ЭПЛ на рис. 3, *a', c'* (кривые 0), рассчитанные при значениях параметров  $\hbar\Gamma = 0.075\text{ meV}$ ,  $L = 0.8\text{ }\mu\text{m}$  и  $\delta = 70^\circ$ , хорошо совпадают с экспериментом (треугольники). Парциальный вклад  $I_{2s}^{(0)}$  (пунктирные кривые 2) играет существенную роль в формировании суммарной интенсивности  $I_s^{(0)}$  в области частот  $\omega \geq \omega_L$  и даже превосходит вклад  $I_{1s}^{(0)}$  (штриховые кривые 1).

На рис. 3, *b* изображен экспериментальный контур ЭПЛ CdS при *p*-поляризации и  $\theta \approx 80^\circ$ , в которой наблюдается наряду с основным максимумом излучения  $A_T$  еще и дополнительный небольшой максимум  $A'_L$ , расположенный с коротковолновой стороны от  $\omega_L$  на частоте  $\omega_{\theta=80^\circ} = 2.5547\text{ eV}/\hbar$ . Появление максимума  $A'_L$  ранее объяснялось только „высвечиванием“ чисто продольных экситонов. Однако, как показывает результаты численного расчета, представленные на рис. 3, *b'*, линия  $A'_L$  формируется сложным образом. Спектральные зависимости суммарной интенсивности  $I_p^{(0)}$  (сплошная кривая 0), парциальных вкладов  $I_{1p}^{(0)}$  (кривая 1),  $I_{2p}^{(0)}$  (кривая 2),  $I_{3p}^{(0)}$  (кривая 3) и интерференционной составляющей  $I_{p23}^{(0)}$  (кривая 23) рассчитывались для известных параметров CdS [2] и при тех же значениях  $\Gamma$ ,  $L$ ,  $l$ , что и кривые на рис. 3, *a', c'*.

Обращает на себя внимание область частот  $\omega < \omega_\theta$ , где с точки зрения кинетического приближения продольные экситоны так же, как и поперечные поляритоны 2, не могут превращаться во внешние фотоны, т. е. высвечиваться в вакуум. Согласно квантовой теории, совпадающей с экспериментом (ср. кривую 0 и треугольники на рис. 3, *b'*), экситонное затухание индуцирует излучение поверхностно-радиационных мод 2 и 3, а также их интерференцию. Это, несомненно, является новым механизмом формирования ЭПЛ в кристаллах с пространственной дисперсией. Строго говоря, частоты  $\omega_\theta$  для волны 2 и 3 несколько отличаются. Поскольку при  $\Gamma = 0$  в окрестности  $\omega_L$  дисперсионные зависимости волн 2 и 3 можно выразить с точностью до малого параметра  $\omega_M \varepsilon_b / \omega_{LT} \ll 1$  формулами

$$\omega_{2k}^{(T)} \approx \omega_L + n_2^2(\omega)\omega_{LT}/\varepsilon_b, \quad (18)$$

$$\omega_{3k}^{(L)} \approx \omega_L + n_3^2(\omega)\omega_M, \quad (19)$$

то находим из (18) и (19) следующие соотношения для характерных частот  $\omega_\theta^{(2)}$  и  $\omega_\theta^{(3)}$ :

$$\omega_\theta^{(2)} \approx \omega_L + \sin^2 \theta \omega_{LT}/\varepsilon_b, \quad (20)$$

$$\omega_\theta^{(3)} \approx \omega_L + \sin \theta \omega_M. \quad (21)$$

В случае предельно больших углов выхода ( $\theta \approx 85^\circ$ ) отсюда получим для параметров CdS ( $T = 2\text{ K}$ )

$$\omega_{\theta,\text{max}}^{(2)} \approx \omega_L + \omega_{LT}/\varepsilon_b, \quad \omega_{LT}/\varepsilon_b \approx 0.22\text{ meV},$$

$$\omega_{\theta,\text{max}}^{(3)} \approx \omega_L + \omega_M, \quad \hbar\omega_M \approx 7 \cdot 10^{-3}\text{ meV},$$

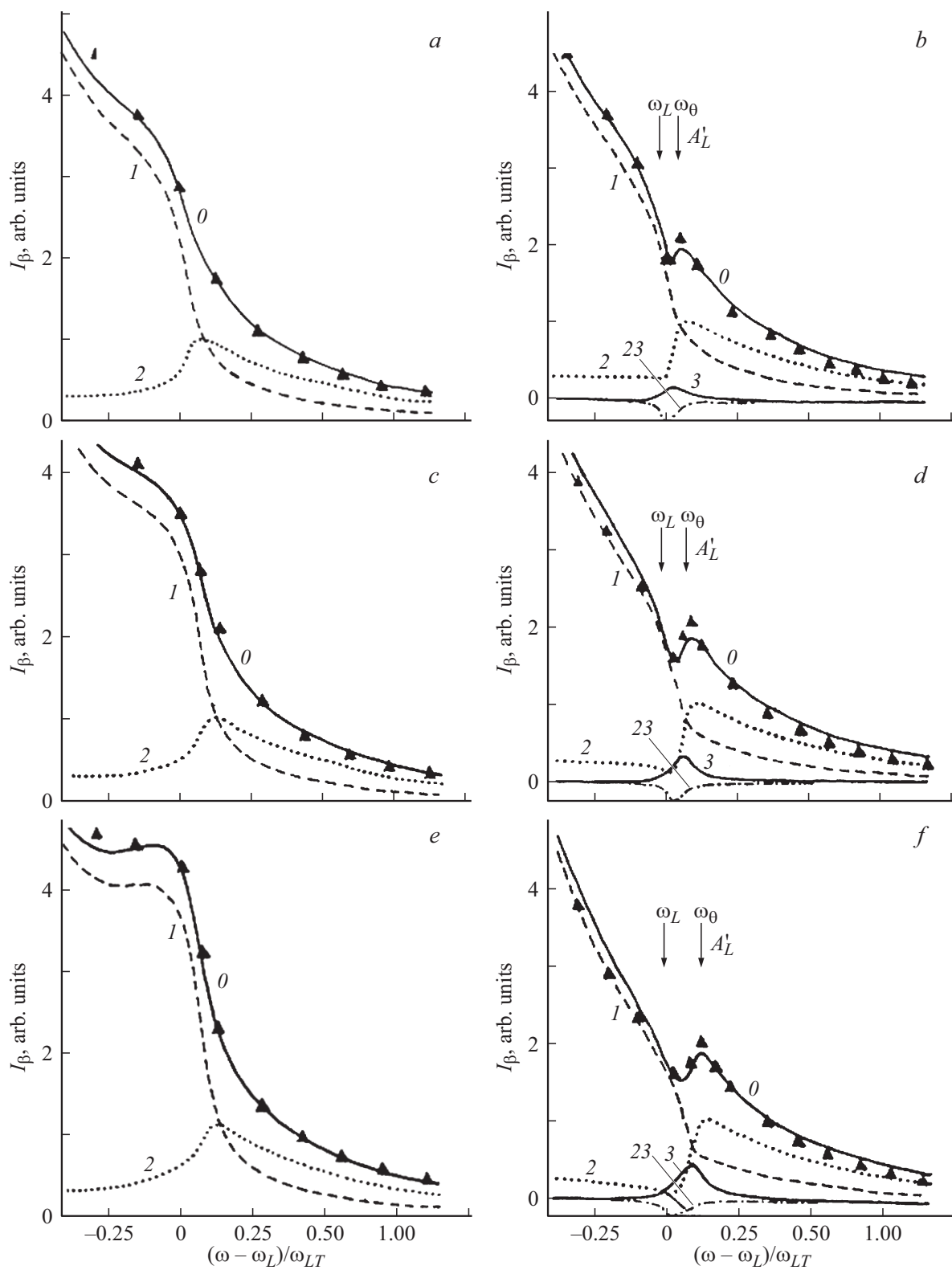
$$\hbar\omega_L = 2.5544\text{ eV}.$$

Согласно эксперименту и численному расчету (рис. 3, *b'*), максимум линии излучения  $A'_L$  находится вблизи характерной частоты поперечного поляритона 2:  $\hbar\omega_{\theta,\text{max}}^{(2)} \approx 2.5546\text{ eV}$ . Из-за влияния экситонного затухания  $\Gamma$  реальный максимум частотной зависимости  $I_{3p}^{(0)}$  смещается в коротковолновую сторону от частоты  $\omega_L$  и приближается к частоте  $\omega_\theta \approx \omega_\theta^{(2)}$ . Рис. 3, *b'* также показывает, что контур линии  $A'_L$  нельзя получить, ограничиваясь лишь вкладом  $I_{3p}^{(0)}$ . На частоте  $\omega_\theta$  отношения  $I_{1p}^{(0)}$ ,  $I_{2p}^{(0)}$ ,  $I_{3p}^{(0)}$  и  $I_{p23}^{(0)}$  к суммарной  $I_p^{(0)}$  составляют 0.30, 0.52, 0.30,  $-0.12$  соответственно. Особо следует отметить, что даже для практически минимального значения  $\hbar\Gamma = 0.075\text{ meV}$  в кристаллах CdS неприменимо кинетическое приближение для описания парциальных вкладов  $I_{2p}^{(0)}$  и  $I_{3p}^{(0)}$  в окрестности линии излучения  $A'_L$ , так как  $(\omega_{\theta,\text{max}} - \omega_L)/\Gamma \approx 2.0$  и неравенство (1) на частоте  $\omega = \omega_\theta$  не выполняется для продольной волны, а для поперечной моды  $\omega_\theta$  является критической частотой, ниже которой для данного направления  $\Omega(\theta, \varphi)$  в вакууме величина  $k_2$  является чисто мнимой при  $\Gamma = 0$ .

На рис. 4 сравниваются теоретические (кривые 0) и экспериментальные (треугольники) спектры ЭПЛ кристаллов CdS, а также расчетные частотные зависимости парциальных вкладов (кривые 1, 2, 3, 23), соответствующие *s*- (*a, c, e*) и *p*-поляризациям (*b, d, f*) при разных значениях угла выхода в вакуум  $\theta$ :  $30^\circ$  (*a, b*),  $45^\circ$  (*c, d*) и  $60^\circ$  (*e, f*). Видно, что относительные вклады  $I_{1\lambda}^{(0)}$  и  $I_{2\lambda}^{(0)}$  в люминесценцию слабо зависят от  $\theta$ , однако вклад  $I_{3p}^{(0)}$  (кривые 3) нормальной волны 3 существенно увеличивается с ростом  $\theta$  и играет основную роль в формировании линии  $A'_L$ .

Рост вклада  $I_{3p}^{(0)}$  с увеличением  $\theta$  непосредственно связан с проявлением ПД в спектрах люминесценции. Без ПД волны 3 так же, как и волны 1, не могут существовать в области частот  $\omega > \omega_L$ . При  $\theta = 0$  продольные волны 3 испытывают полное внутреннее отражение и поэтому вклад  $I_{3p}^{(0)}$  в  $I_p^{(0)}$  отсутствует. Последнее имеет место также при  $n_{3L} > \sin \theta$ , чем и объясняется резкое уменьшение  $I_{3p}^{(0)}$  с ростом частоты в области  $\omega > \omega_\theta$ .

Интересно заметить, что интерференционная составляющая  $I_{p23}^{(0)}$  дает незначительный отрицательный вклад ( $\sim 10\%$ ) в суммарную интенсивность  $I_p^{(0)}$ , абсолютное значение которого уменьшается с увеличением  $\theta$ , когда происходит „расталкивание“ мод 2 и 3. Однако без



**Рис. 4.** Сравнение теоретических (0) и экспериментальных (треугольники) спектров ЭПЛ при *s*- (*a, c, e*) и *p*-поляризации (*b, d, f*) излучения кристаллов CdS для углов выхода  $\theta = 30^\circ$  (*a, b*),  $45^\circ$  (*c, d*),  $60^\circ$  (*e, f*). Обозначения такие же, как и на рис. 3.



вклада  $I_{p23}^{(0)}$  количественно трудно получить небольшой минимум в спектре ЭПЛ на частоте вблизи  $\omega_L$ , практически не зависящий от  $\theta$ . Смещение линии  $A'_L$  с ростом угла  $\theta$  в коротковолновую сторону от  $\omega_L$  при  $\omega_M \varepsilon_b \ll \omega_{LT}$  и  $\Gamma \ll (\omega_\theta - \omega_L)$  проанализируем более подробно. В таком случае, учитывая, что  $n_{\beta}^2 = n_{\beta z}^2 + \sin^2 \theta$ , дисперсионное соотношение для излучающих в вакуум состояний ветви 2 (вблизи  $\omega_L$ ) можем записать как

$$n_{2z}^2 \cong \varepsilon_b - \frac{\varepsilon_b \omega'_{LT}}{\omega - \omega_0}, \quad (22)$$

где

$$\omega'_{LT} = \omega_{LT} + \frac{\omega - \omega_0}{\varepsilon_b} \sin^2 \theta \approx \omega_{LT} \left( 1 + \frac{\sin^2 \theta}{\varepsilon_b} \right). \quad (23)$$

Естественно, что для значений  $\theta$ , при которых  $n_{2z}^2 < 0$ , волна 2 испытывает пространственное затухание даже при  $\Gamma = 0$ . При  $\theta = 0$  это происходит, как видно из (22), в области частот  $\omega < \omega_L$ , а при  $\theta \neq 0$  — в области частот ниже  $\omega_\theta$ , для которой из (22) получим формулу

$$\omega_\theta = \omega_L + \left( \frac{\sin^2 \theta}{\varepsilon_b - \sin^2 \theta} \omega_{LT} \right), \quad (24)$$

отличающуюся от (20) лишь заменой  $\varepsilon_b$  на  $\varepsilon_b - \sin^2 \theta$ . Таким образом, с ростом  $\theta$  дно энергетической зоны излучающих в вакуум „легких“ поперечных поляритонов смещается вверх, т.е. происходит некоторое увеличение продольно-поперечного расщепления  $\omega_{LT}$  (23). Этот эффект, в основном, и проявляется в смещении линии излучения  $A'_L$  с ростом  $\theta$ . Для двух значений  $\theta_1$  и  $\theta_2$  угла выхода из (24) находим отношение

$$\frac{\omega_{\theta_1} - \omega_L}{\omega_{\theta_2} - \omega_L} = \frac{(\varepsilon_b / \sin^2 \theta_2) - 1}{(\varepsilon_b / \sin^2 \theta_1) - 1},$$

из которого при  $\theta_1 = 60^\circ$ ,  $\theta_2 = 30^\circ$ , для CdS ( $\varepsilon_b = 9.4$ ) получим значение 3.2, тогда как рис. 4,  $f$  дает несколько другое значение, равное 2.8. Такое небольшое несоответствие объясняется тем, что условие  $\Gamma \ll (\omega_\theta - \omega_L)$  в данном случае не совсем выполняется.

## Заключение

Развита теория экситон-поляритонной люминесценции кубических кристаллов с пространственной дисперсией для продольных экситонов в условиях нарушения критериев применимости кинетического уравнения Больцмана.

Процесс формирования спектра ЭПЛ имеет ряд специфических особенностей: перестройка энергетического спектра нормальных волн с учетом реального экситонного затухания приводит к включению в перенос энергии через границу кристалла поверхностно-радиационных мод, а наличие ПД — к их интерференционному взаимодействию; вклады  $I_{3p}^{(0)}$ ,  $I_{23p}^{(0)}$  с ростом  $\hbar\Gamma$

резко уменьшаются, что объясняется результатом подавления ПД затуханием механических экситонов для продольных волн, тогда как вклад  $I_{2p}^{(0)}$  — растет и сильно уширяется, в результате чего увеличение  $\Gamma$  приводит к слабому уменьшению максимума  $I_p^{(0)}(\omega)$  на частоте  $\omega_\theta$  и его уширению.

Вклад в ЭПЛ чисто продольных экситонов и их интерференции с поляритонами верхней дисперсионной ветви небольшие ( $\sim 10-30\%$ ), тем не менее, учет их необходим для правильного количественного описания эксперимента.

Изложенный метод анализа спектров ЭПЛ дает возможность определить оптические параметры кристалла (например, значение  $\omega_{LT}$  по частоте  $A'_L$ -линии) и может быть использован с небольшими изменениями при изучении спектров неупругих рассеяний поляритонов в окрестности частоты продольного экситона с учетом конечного затухания и ПД.

В заключение авторы выражают искреннюю признательность А.В. Селькину за представленные экспериментальные спектры ЭПЛ.

## Список литературы

- [1] Benoit a la Guillaume C., Bonnot A., Delever J.M. // Phys. Rev. Lett. 1970. V. 24. P. 1235.
- [2] Cross E.F., Permogorov S.A., Travnikov V.V., Sel'kin A.V. // Sol. State Commun. 1972. V. 10. P. 1071.
- [3] Пермогоров С.А., Травников В.В., Селькин А.В. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 2. С. 3642.
- [4] Sel'kin A.V. // Phys. Stat. Sol. B. 1977. V. 83. P. 47.
- [5] Ивченко Е.Л., Пикус Г.Е., Юлдашев Н.Х. // ЖЭТФ. 1981. Т. 80. № 3. С. 1228.
- [6] Абдукадыров А.Г., Сажин М.И., Селькин А.В., Юлдашев Н.Х. // Опт. и спектр. 1989. Т. 67. № 10. С. 845.
- [7] Абдукадыров А.Г., Ивченко Е.Л., Сажин М.И., Селькин А.В., Юлдашев Н.Х. // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. С. 644.
- [8] Юлдашев Н.Х. Экситон-поляритонная люминесценция и перенос резонансного излучения в кристаллах. Фергана: Фаргона, 2001. 214 с.
- [9] Ахмадалиев Б.Ж., Полвонов Б.З., Юлдашев Н.Х. // Опт. и спектр. 2014. Т. 116. С. 106; Akhmadaliev B.J., Polvonov B.Z., Yuldashev N. Kh. // Opt. Spectrosc. 2014. V. 116. P. 244.
- [10] Пермогоров С.А., Суркова Т.П., Тенищев А.Н. // ФТТ. 1998. Т. 40. С. 897.
- [11] Багаев В.С., Клевков Ю.В., Колосов С.А., Кривобок В.С., Шепель А.А. // ФТТ. 2010. Т. 52. С. 37.