

ПОВЕРХНОСТНО-РАДИАЦИОННЫЕ МОДЫ И ПРОДОЛЬНЫЕ ЭКСИТОНЫ В СПЕКТРАХ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

Б.Ж. Ахмадалиев, Б.З. Полвонов, Н.Х. Юлдашев

Ферганский политехнический институт

Узбекистан

Поступила в редакцию 20.09.2010

Рассчитаны спектры экситон-поляритонной люминесценции (ЭПЛ) в окрестности частоты продольного экситона w_l с учетом затухания $\hbar\Gamma$. Проанализированы парциальные и интерференционные вклады объемных и поверхностно-радиационных спектральных мод в низкотемпературную поляритонную люминесценцию кристаллов типа CdS в геометрии излучения продольных экситонов.

Ключевые слова: экситон-поляритонная люминесценция, поверхностно-радиационные моды, продольный экситон, затухание экситона, интерференционная люминесценция, нарушение кинетического приближения, функция Грина, излучающие квантовые состояния, s - и p -поляризации, парциальные вклады мод.

Розраховано спектри екситон-поляритонної люмінесценції (ЕПЛ) в околиці частоти поздовжнього екситону w_l з урахуванням загасання $\hbar\Gamma$. Проаналізовані парціальні й інтерференційні внески об'ємних і поверхнево-радіаційних спектральних мод у низькотемпературну поляритонну люмінесценцію кристалів типу CdS у геометрії випромінювання поздовжніх екситонів.

Ключові слова: екситон-поляритонна люмінесценція, поверхнево-радіаційні моди, поздовжній екситон, загасання екситону, інтерференційна люмінесценція, порушення кінетичного наближення, функція Гріна, що випромінюють квантові стани, s - і p -поляризації, парціальні внески мод.

Exciton-polariton luminescence (EPL) spectra by taking into account damping $\hbar\Gamma$ are calculated in the about frequency w_l of the longitudinal exciton. The partially and interferential contributions of the volumetric and superficially-radiative spectral modes in the low-temperature polariton uminescence CdS crystals in a longitudinal exciton studying are analyzed.

Keywords: exciton-polariton luminescence, superficially-radiative modes, longitudinal exciton, damping of exciton, interferential luminescence, breach of the kinetic approach, function of Grin, radiating quantum conditions, s - and p -polarizations, partial contributions of modes.

Метод низкотемпературной экситонной люминесценции является одним из наиболее информативных оптических методов исследования полупроводниковых структур, сочетающий высокую чувствительность к содержанию дефектов и локальность измерений. Детальное изучение экситонной энергетической структуры полупроводниковых 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 \vec{k}) существенную роль могут играть эффекты, связанные с экс-

тонным затуханием. В частности, экситонное затухание обуславливает возгоранию 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 ω и (см., например, [1 – 5]). В работах [1 – 3], выполненной при участии одного из авторов настоящей статьи, была построена теория поляритонной люминесценции (ПЛ) в случае, когда диссипативное затухание экситона нарушает критерии применимости кинетического уравнения Больцмана

$$|\operatorname{Re} \vec{k}_p| \gg |\alpha\beta|, \quad (1)$$

и справедливая при произвольном соотношении между $\text{Re } \vec{k}_2$ и α_2 (где \vec{k}_2 и α_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 ω_l продольного экситона (ветвь 3) и удовлетворительно проанализированы экспериментальные спектры ПЛ кристаллов ZnP_2 черной модификации с ромбической точечной симметрией. Однако, при этом конкретный расчет и эксперимент ограничивались самым простым случаем – анализом нормально выходящегося из кристалла поляритонного излучения, когда отсутствует вклад продольных экситонов в ПЛ. Хотя уже давно известно, что при наличии пространственной дисперсии (ПД) возможен перенос энергии в кристаллах чисто продольными экситонами и они проявляются, например, в спектрах низкотемпературной люминесценции кристаллов CdS лишь при наклоне излучения [6 – 8], тем не менее количественный анализ этих спектров до сих пор не проводился. В настоящей работе обобщается микроскопическая теория ПЛ кристаллов с ПД с учетом излучения чисто продольных экситонов в окрестности частоты ω_l , $\omega_{l,T}$. Рассматривается экситон-поляритонная люминесценция (ЭПЛ) в случае, когда неравенство (1) одновременно нарушается для 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 [1 – 3]), т.е. выйти за пределы применимости кинетического уравнения для волн 2 и 3, определяемым наряду с (1) так же и более жестким условием¹⁾

¹⁾ Выполнение неравенства (2) дает основу пренебречь интерференцией поляритонных излучающих состояний разных дисперсионных ветвей.

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

С помощью этой теории здесь проводится анализ угловой зависимости экспериментальных спектров ЭПЛ кристаллов CdS с гексагональной точечной симметрией для s и p -поляризации излучения.

Мы рассмотрим дипольно-активный триплетный экситон, характеризуемый резонансной частотой ω_0 , эффективной массой M и продольно-поперечным расщеплением $\omega_{l,T}$ в кристалле с изотропным тензором диэлектрической проницаемости [9]:

$$\begin{aligned} \epsilon_{\alpha\beta}(\omega, \vec{k}) &= \epsilon(\omega, k) \delta_{\alpha\beta} = \\ \epsilon_b \left[1 + \frac{\omega_{l,T}}{\omega_o(k) - \omega - i\Gamma(\omega, k)/2} \right] \cdot \delta_{\alpha\beta}, \quad (3) \end{aligned}$$

где ϵ_b – фоновая диэлектрическая проница-

емость, $\hbar\omega_o(k) = \hbar\omega_o + \frac{\hbar^2 k^2}{2M}$ – энергия механического экситона, $\Gamma(\omega, k)$ – затухание экситона, определяемое процессами рассеяния или захвата. Известно, что в таких кристаллах могут возбуждаться нормальные волны двух типов – поперечные ($\epsilon(\omega, k) = c^2 k^2 / \omega^2$, где c – скорость света в вакууме) и продольные ($\epsilon(\omega, k) = 0$). Для большинства полупроводников $\omega_{l,T} \ll \omega_0$ и в окрестности резонанса ω_0 , определяемым условием

$$|\omega - \omega_o| \ll \sqrt{\omega_o \omega_{l,T}}, \quad (4)$$

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

$$\begin{aligned} \omega = \omega_k^{(T)} &= \omega_o + \frac{\hbar k^2}{2M} - \\ &- \frac{\epsilon_b \omega_{l,T}}{(ck/\omega_o)^2 - \epsilon_b} - i \frac{\Gamma(\omega, k)}{2}, \quad (5) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \omega = \omega_k^{(3)} &= \omega_l + \frac{\hbar k^2}{2M} - i \frac{\Gamma(\omega, k)}{2}, \\ \omega_l &= \omega_o + \omega_{l,T}, \quad (6) \end{aligned}$$

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

На рис. 1 представлены рассчитанные дисперсионные кривые экситон-поляритонов в случае изолированного экситонного резонанса с изотропной эффективной массой для значений $\hbar\Gamma$: 0,75 (а); 0,5 (б); 1,0 (в); 1,457 (г); 2,0 (д); 5,0 (е).

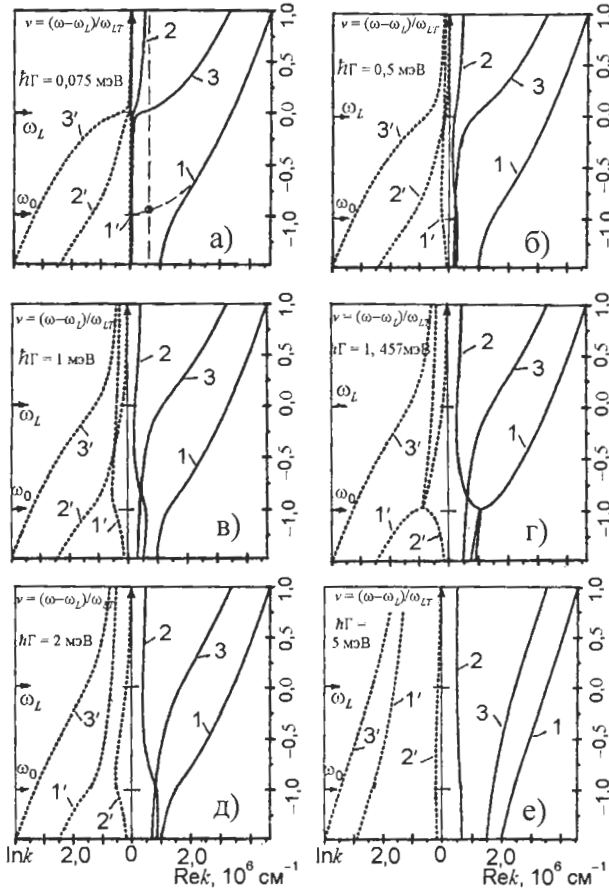


Рис. 1. Расчетный энергетический спектр нормальных волн в зависимости от затухания экситона Γ в кубическом кристалле с ПД для значений параметров нижайшего экситонного резонанса A ($n = 1$) CdS: $\hbar\omega_0 = 2552,4$ мэВ, $\hbar\omega_{L,T} = 2,0$ мэВ, $M = 0,9m_0$ (m_0 - масса свободного электрона), $\epsilon_b = 9,4$ [3]. Штриховые линии - для невзаимодействующих механических экситонов и фотонов: 1,1', 2,2' - поперечные поляритоны; 3,3' - продольные экситоны.

Как видно из рис. 1, дисперсионные кривые экситон-поляритонных мод с ростом затухания $\hbar\Gamma$ сильно трансформируются. Это особенно заметно вблизи продольной частоты ω_L для мод 2, 2' и 3, 3', которые при $\hbar\Gamma = 0$ являются распространяющимися лишь в области частот $\omega > \omega_0$ и чисто затухающими, т.е. поверхностно-радиационными, когда $\omega < \omega_0$. Характерная частота $\omega_b \geq \omega_L$ 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 θ - угол выхода излучения из кристалла в вакуум, n_β - показатель преломления кристалла для волны β , причем $\text{Re}n_\beta < 1$ при $\omega < \omega_0$. Заметим, что, во-первых, появление при $\hbar\Gamma \neq 0$ мнимой части волнового вектора k_β (кривые 2' и 3' на рис. 1) при $\omega > \omega_0$ означает определенное пространственное затухание распространяющихся мод, что приводит, в некоторой области частот $\omega - \omega_0 \sim \Gamma$, к нарушению неравенств (1) и (2). Во-вторых, в области частот $\omega < \omega_0$, где всегда нарушается условие (1) для волн 2 и 3, при конечном Γ возникает вещественная добавка к волновому вектору k_β (кривые 2 и 3), 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 одной из основных целью настоящей работы.

Мы исследуем спектральную интенсивность излучения с поляризацией λ , распространяющегося в вакууме у поверхности кристалла в направлении единичного вектора (который лежит в плоскости yz , а внутренняя нормаль к границе кристалла направлена вдоль оси z : $\lambda = s, p$, где $s||x$, $p||y$):

$$I_\lambda^{(0)}(\omega, \vec{\Omega}) = \sum_\beta I_{\beta\lambda}^{(0)}(\omega, \vec{\Omega}), \quad (8)$$

где $\beta = 1, 2$ при $\lambda = s$ и $\beta = 1, 2, 3, 23$ при $\lambda = p$. Парциальная интенсивность описывает интерференционный вклад в ЭПЛ волн 2 и 3. Будем считать, что возбуждение низкотемпературной люминесценции осуществляется путем стационарного освещения кристалла естественным светом из спектральной области собственного поглощения, где рождаются свободные электроны и дырки. По мере термализации они в результате кулоновского взаимодействия связываются в экситоны, которые, в свою очередь, испытывая многократные рассеяния на фононах, примесях и других дефектах кристалла, релаксируют по энергии и импульсу в область резонанса

ω_0 , где на языке обычной теории ПЛ ($\Gamma = 0$) устанавливается некоторая неравновесная стационарная функция распределения поляритонов. Поскольку вблизи частоты ω_L плотности состояний

$$\rho_\beta(\omega) = \frac{1}{V_0} \sum_k \delta(\omega - \omega_k^{(\beta)}) = \frac{k_\beta^2(\omega)}{(2\pi)^3 v_\beta(\omega)},$$

(где V_0 – объем кристалла, $v(\omega) = d\omega/dk_\beta$ – групповая скорость поляритона) для поляритонов ветви 1 и ветвей $\beta = 2, 3$ сильно различаются (например, при $\omega > \omega_L$ для CdS $\rho_1(\omega)/\rho_2(\omega) \approx (\omega_{LT}/\epsilon_b \omega_M)^{3/2} \approx 3 \cdot 10^3$, где $\omega_M = \hbar k_0^2/2M$, то в окрестности частоты ω_L можно пренебречь рассеянием волн внутри ветвей $\beta = 2, 3$. По этой же причине можно не учитывать генерации волн 2 и 3 с малыми значениями (см. рис. 1а), происходящей за счет рассеяния на ЛО-фононах из вышележащих экситонных состояний, а также возможного их индуцирования многократным зеркальным отражением волн 1 от внутренней границы кристалла [9]. 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 ω_L достаточно ограничиться простейшей факторизованной формой

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

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

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

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

где

$$T_{\alpha\beta}^{(\lambda)} = \frac{I_N^{(0)}}{I_N^{(\beta)}} = \frac{\cos \theta}{\cos \theta_\beta} \frac{1}{n_\beta} \frac{w_0}{w_\beta} \left| I_{\alpha\beta}^{(\lambda)} \right| \quad (9)$$

– энергетический коэффициент пропускания волны β с поляризацией λ из кристалла в вакуум, $I_{\alpha\beta}^{(\lambda)}$ – соответствующий амплитудный коэффициент пропускания. В (9) 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 β :

$$w_0 = \frac{c}{8\pi}, \quad \beta = 1 - 3,$$

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

Интенсивность ЭПЛ с s -поляризацией $I_S^{(0)}(\omega, \theta) = I_{1s}^{(0)}(\omega, \theta) + I_{2s}^{(0)}(\omega, \theta)$ не содержит интерференционного члена и она рассчитана с помощью диаграммной техники Л.В. Келдыша для матрицы плотности механического экситона в работе [1].

В случае излучения с p -поляризацией для расчета парциальных вкладов $I_{2p}^{(0)}, I_{3p}^{(0)}$, и интерференционной составляющей $I_{p23}^{(0)}$ в суммарную интенсивность $I_p^{(0)}$ по (8)

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

рассмотрим функции Грина $G_{2p}^{-+}(\vec{k}, \vec{k}'; \omega)$ для поперечных поляритонов ветви 2 (точно совпадающей для кубического кристалла $G_{2s}^{-+}(\vec{k}, \vec{k}'; \omega)$ с [1]) и $G_{3p}^{-+}(\vec{k}, \vec{k}'; \omega)$ для продольных экситонов. Диаграмма для этих функций изображена на рис. 2, где $\lambda, \lambda' = p$ и $\beta, \beta' = 2, 3$. Сплошной линией в случае продольного экситона отвечает функция Грина

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

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

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

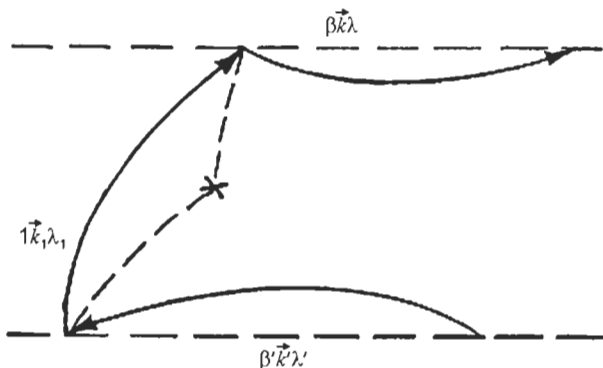


Рис. 2. Диаграмма для функции Грина $G_{\beta\lambda}^{+-}(\vec{k}, \vec{k}'; \omega)$. При $\lambda = s$ индекс $\beta = ' = 2$, при $\lambda = p - \beta, \beta' = 2, 3$.

Используя рассуждения и технику выкладки работы [1], получим:

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

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

где $F_\beta = \frac{1}{(2\pi)^3} \frac{2M^2 c \epsilon_b \omega_{LT} \cos \theta f_i(\omega)}{\hbar \tau_{\beta 1}}$,

$$F_{2p} = \frac{t_{02}^{(p)}}{n_{2z}(n_1^2 - n_2^2)}, \quad F_{3p} = \frac{t_{03}^{(p)}}{n_{3z} \epsilon_b}, \quad (15)$$

а F_{23} получается из F_β заменой величины $\tau_{\beta 1}$ на $(\tau_{21} \cdot \tau_{31})^{1/2}$. При этом учитывалось, что для продольных экситонов напряженность электрического поля и экситонная часть поляризации кристалла связаны соотношением $4\pi \vec{P}_3 = -\epsilon_b \vec{E}_3$. 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 амплитудных коэффициентов пропускания $t_{0\beta}^{(p)}$ волны β в вакуум. При этом мы использовали наряду с граничными условиями Максвелла еще и ДГУ Пекара с “мертвым слоем”. В случае падения изнутри кристалла на его поверхность волны 2 с p -поляризацией находим

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

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

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

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 амплитудного коэффициента превращения нормальной волны продольных экситонов во внешнее световое излучение в следующем виде:

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

На рис. 3 приведены теоретические спектральные зависимости $I_p^{(0)}$ (а), $I_{2p}^{(0)}$ (б), $I_{3p}^{(0)}$ (в) и $I_{p23}^{(0)}$ (г), рассчитанные при разных значениях параметров Γ и L . Оказалось, что все кривые определяются произведением $\Gamma \cdot L$. Интенсивность и полуширина кривых $I_{2p}^{(0)}(\omega)$, и следовательно, $I_p^{(0)}(\omega)$, существенно зависят от $\Gamma \cdot L$. Аналогичные параметры кривых $I_{3p}^{(0)}(\omega)$ и $I_{p23}^{(0)}(\omega)$ при $L > 1$ мкм прак-

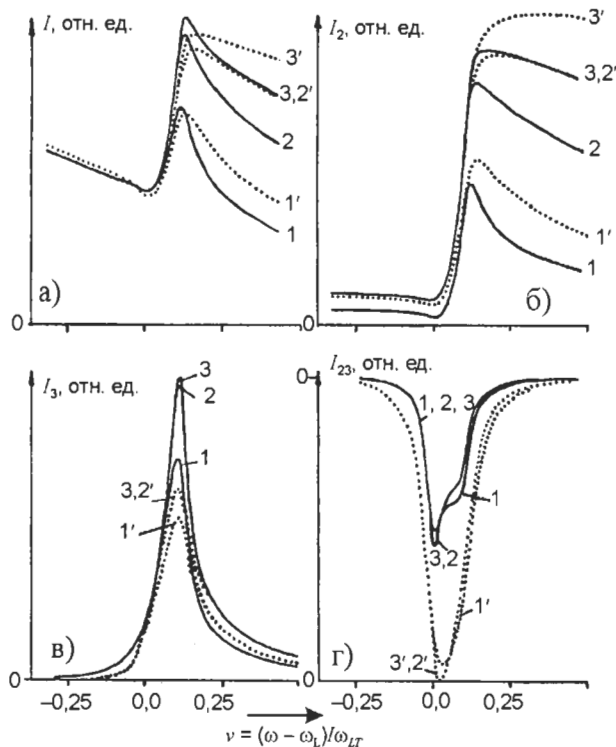


Рис 3. Спектральные зависимости полной (I), частичных (I_{2p} , I_{3p}) интенсивностей и интерференционного вклада I_{23} , рассчитанные для параметров экситонного резонанса $A_{(n=1)}$ в CdS при угле выхода в вакуум $\theta = 80^\circ$ и для разных значений экситонного затухания $\hbar\Gamma = 0,075$ (кривые 1 – 3), 0,15 мэВ (1' – 3') и глубины распределения поляритонов ветви 1: $L = 0.2$ (1, 1'), 1,0 (2, 2'), 2,0 мкм (3, 3').

тически не чувствуют значения L , что обусловлено относительно большим значением коэффициента поглощения волны 3 ($\alpha_3 \cdot L \gg 1$). Более того, полуширина Δ_3 кривой почти полностью определяется величиной Γ . Согласно численному расчету $\Delta_3 \approx 2\Gamma$. Заметим, что вклад в s 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 Γ приводит к слабому уменьшению максимума $I_p^{(0)}(\omega)$ на частоте ω_0 и его уширению.

На рис. 4а–с представлены общий вид контуров люминесценции кристалла CdS ($A_{n=1}$, $T = 2$ К) в s -геометрии излучения при $\theta = 0$ (а) и $\theta = 80^\circ$ (с). Штриховая линия на рис. 4а изображает экспериментально измеренную по спектру 2LO-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. 4а'–с' (кривые 0), рассчитанные при значениях параметров $\hbar\Gamma = 0,075$ мэВ, $L = 0,8$ мкм и $\delta = 70 \text{ \AA}$, хорошо совпадают с экспериментом (треугольники).

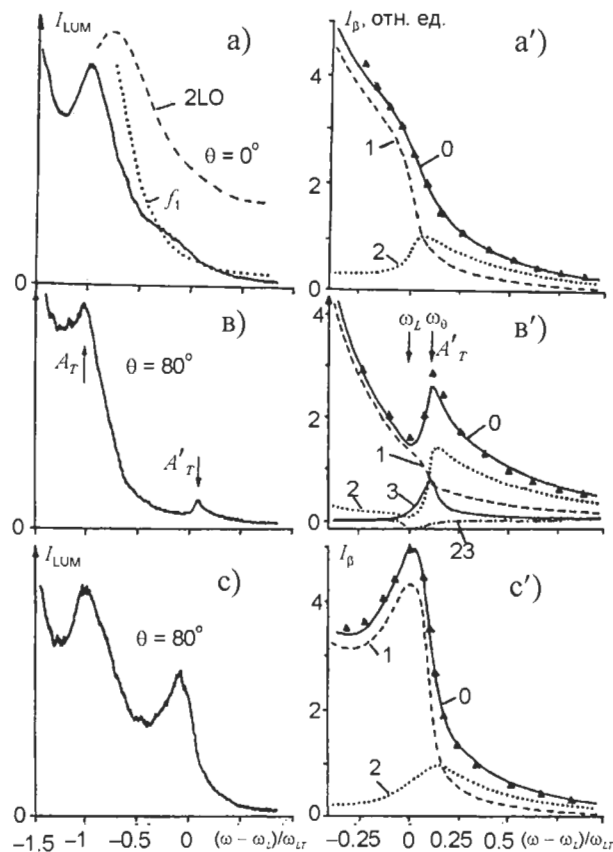


Рис. 4. Экспериментальные (а, в, с) и теоретические (а', в', с') спектры ЭПЛ кристаллов CdS ($T = 2$ К) при геометрии регистрации излучения в s (а, а'; с, с') – и p (в, в') – поляризации. Штриховая линия на рис. а изображает спектр 2LO-повторения функции заселенности поляритонных состояний ветви 1, с помощью которого рассчитывалась функция распределения $f_1(\omega)$, показанная пунктирной линией. 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} .

Парциальный вклад (пунктирные линии 2) играет существенную роль в формировании суммарной интенсивности в области частот $\omega \geq \omega_L$. Здесь следует особо отметить, что, как видно из рис. 4а', с', путем перенормировки штриховой линии 1 (описывающей вклад $I_{1s}^{(0)}$ поляритонов нижней ветви) можно достичь согласия между кривой 1 и экспериментом с определенной погрешностью, в пределах которой, однако, не корректно ставить

вопрос о точном вкладе $I_{2s}^{(0)}$. Поэтому достигнутое хорошее описание эксперимента на основе кинетической теории в работах по исследованию ПЛ в области частоты продольного экситона вызывает сомнения.

На рис. 4в изображен контур ЭПЛ CdS в геометрии излучения p -поляризации при $\theta = 80^\circ$, в которой наблюдается наряду с основным максимум излучения A_T еще и дополнительный небольшой максимум A'_L , расположенный с коротковолновой стороны от ω_L на частоте $\omega_{\theta=80^\circ} = 2,5547$ эВ/н. Появление максимума A'_L ранее объяснялось только "высвечиванием" чисто продольных экситонов. Однако, как показывает результаты численного расчета, представленные на рис. 4в', что линия A'_L формируется сложным образом. Спектральные зависимости суммарной интенсивности $I_p^{(0)}$ (сплошная кривая 0), парциальных вкладов $I_{1p}^{(0)}$ (кривая 1), $I_{2p}^{(0)}$ (2), $I_{3p}^{(0)}$ (3) и интерференционной составляющей $I_{p23}^{(0)}$ (23) рассчитывались для известных параметров CdS [2] и при тех же значения Γ, L, ℓ что и кривые на рис. 4а', с'. 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 волновой теории, совпадающей с экспериментом (ср. кривую 0 и треугольники на рис. 4в'), экситонное затухание индуцирует излучение поверхностно-радиационных мод, а также их интерференцию. Это, несомненно, является новым механизмом формирования ЭПЛ в кристаллах с пространственной дисперсией.

Строго говоря, частоты ω_θ для волны 2 и 3 несколько отличаются. Поскольку при $\Gamma = 0$ в окрестности ω_L дисперсионные зависимости волн 2 и 3 можно выразить с точностью до малого параметра $\omega_M \varepsilon_b / \omega_{LT} \ll 1$ формулами

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

$$\omega_\theta^{(3)} \approx \omega_L + \sin \theta \cdot \omega_M, \quad (19)$$

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

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

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

В случае предельно больших углов выхода ($\theta = 85^\circ$) отсюда получим для параметров CdS ($T = 2$ К)

$$\omega_{\theta, \max}^{(3)} \approx \omega_L + \omega_{LT} / \varepsilon_b, \quad \omega_{LT} / \varepsilon_b \approx 0,22 \text{ мЭВ},$$

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

$$\hbar \omega_L \approx 2,5544 \text{ мЭВ}.$$

Как показывает эксперимент и численный расчет (рис. 4в'), максимум линии излучения A'_L находится как раз вблизи характерной частоты поперечного поляритона 2: $\hbar \omega_{\theta, \max}^{(2)} \approx 2,5546$ эВ. Из-за влияния экситонного затухания Γ реальный максимум частотной зависимости смещается в коротковолновую сторону от частоты ω_L и приближается к частоте $\omega_\theta \approx \omega_\theta^{(2)}$. Рис. 4в' также показывает, что контур линии A'_L нельзя получить, ограничиваясь лишь вкладом. Особо отметим, что даже для практически минимального значения $\hbar \Gamma = 0,075$ мЭВ в кристаллах CdS неприменимо кинетическое приближение для описания парциальных вкладов и в окрестности линии излучения A'_L , т.к. $(\omega_{\theta, \max} - \omega_L) / \Gamma \approx 2,0$ и неравенство (1) на частоте $\omega = \omega_\theta$ не выполняется для продольной волны, а для поперечной моды ω_θ является критической частотой, ниже которой для данного направления в вакууме величина является чисто мнимой при $\Gamma = 0$.

На рис. 5 продемонстрировано сравнение теоретических (кривые 0) и экспериментальных (треугольники) спектров ЭПЛ кристаллов CdS, а также расчетные частотные зависимости парциальных вкладов (кривые 1, 2, 3, 23) в геометриях излучения, соответствующих s (а, с, е) и p (b, d, f)-поляризациям при разных значениях угла выхода в вакуум θ : 30° (а, b), 45° (с, d) и 60° (е, f). Видно, что относительные вклады и в люминесценцию слабо зависят от θ , однако вклад (кривые 3) нормальной волны 3 существенно увеличивается с ростом θ и играет основную роль в формировании линии A'_L .

Рост вклада $I_{3p}^{(0)}$ с увеличением θ непосредственно связан с проявлением ПД в

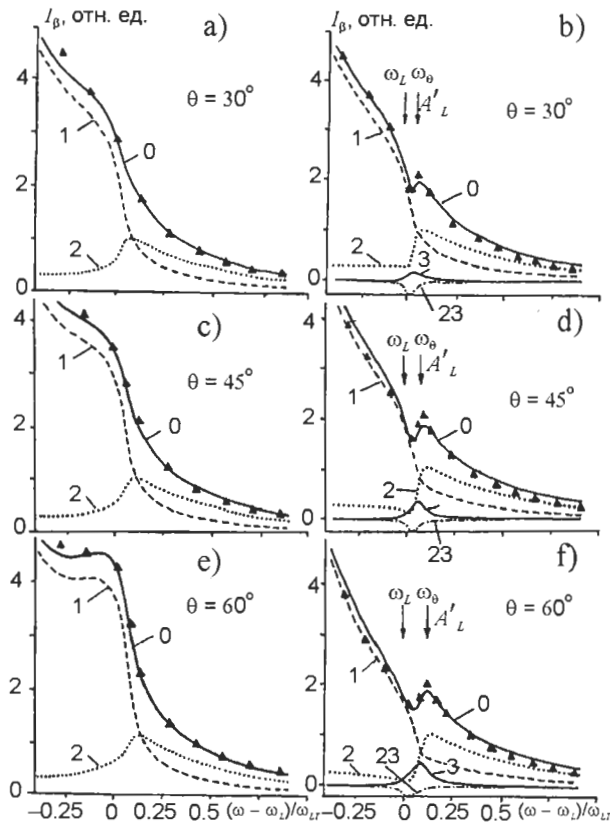


Рис. 5. Сравнение теоретических (кривые 0) и экспериментальных (треугольники) спектров ЭПЛ в *s* (а, с, е) – и *p* (b, d, f) – поляризации излучения кристаллов CdS для углов выхода $\theta = 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$. Обозначения такие же, как и на рис. 4.

спектрах люминесценции. Без ПД волны 3 также, 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 $\omega > \omega_0$. Интересно заметить, что интерференционная составляющая $I_{p23}^{(0)}$ дает незначительный отрицательный вклад в суммарную интенсивность $I_p^{(0)}$, абсолютное значение которого уменьшается с увеличением θ когда происходит “расталкивание” мод 2 – 2' и 3 – 3' на рис. 1. Однако без вклада $I_{p23}^{(0)}$ количественно трудно получить небольшой минимум в спектре ЭПЛ на частоте вблизи ω_L , практически не зависящий от θ .

Смещение линии A'_L с ростом угла θ в коротковолновую сторону от ω_L при $\omega_M \epsilon_b \ll \omega_{LT}$ и $\Gamma \ll (\omega_0 - \omega_L)$ проанализируем более подробно. В таком случае, учитывая $n_z^2 = n_{\beta z}^2 + \sin^2 \theta$, что, дисперсионное соотношение для излучающих в вакуум состояний ветви 2 (вблизи ω_L) можем записать как

$$n_z^2 \cong \epsilon_b - \frac{\epsilon_b \omega'_{LT}}{\omega - \omega_0}, \quad (22)$$

где

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

Естественно, что для значений θ , при которых $n_z^2 < 0$, 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 ω_0 , для которой из (22) мы получим формулу

$$\omega_0 = \omega_L + \left(\frac{\sin^2 \theta}{\epsilon_b - \sin^2 \theta} \omega_{LT} \right), \quad (24)$$

отличающуюся от (20) лишь заменой ϵ_b на $\epsilon_b - \sin^2 \theta$. Таким образом, с ростом θ дно энергетической зоны излучающих в вакуум “легких” поперечных поляритонов смещается вверх, т.е. происходит некоторое увеличение продольно-поперечного расщепления ω_{LT} (см. (23)). Этот эффект, в основном, и проявляется в смещении линии излучения A'_L с ростом θ . Для двух значений θ_1 и θ_2 угла выхода из (24) находим отношение

$$\frac{\omega_{01} - \omega_L}{\omega_{02} - \omega_L} = \frac{(\epsilon_b / \sin^2 \theta_2) - 1}{(\epsilon_b / \sin^2 \theta_1) - 1},$$

из которого при $\theta_1 = 60^\circ, \theta_2 = 30^\circ$ для CdS ($\epsilon_b = 9,4$) получим значение 3.2, тогда как рис. 5в, f дает несколько другое значение, равное 2,8. Такое небольшое несоответствие объясняется тем, что условие $\Gamma \ll (\omega_0 - \omega_L)$ в данном случае не совсем выполняется.

В заключение отметим, что изложенный метод анализа спектров ЭПЛ дает возможность определить оптические параметры кристалла (например, значение ω_{LT} по частоте

A'_{L_1} -линии) и может быть использован с небольшими изменениями при изучении спектров неупругих рассеяний поляритонов в окрестности частоты продольного экситона с учетом конечного затухания.

Авторы благодарят А.В. Селькина за представленные экспериментальные результаты.

ЛИТЕРАТУРА

1. Абдукадыров А., Ивченко Е., Селькин А., Юлдашев Н.Х. // *Опт. и спектр.* – 1989. – Т. 67, № 10. – С. 845.
2. Абдукадыров А., Селькин А., Сажин М., Юлдашев Н. // *ЖЭТФ.* – 1990. – Т. 97, № 2. – С. 644.
3. Selkin A.V., Yuldashev N. // *Kh. In: Semiconductors and insulators: Optical and Spectroscopic Research.* Nova Science Publishers. London. Ine. – 1992. – P. 55-84.
4. Пермогоров С., Суркова Т., Тенишев А. // *ФТТ.* – 1998. – Т. 40, № 5. – С. 897.
5. Багаев В.С., Клевков Ю.В., Колосов С.А., Кривобок В.С., Шепель А.А. // *ФТТ.* – 2010. – Т. 52, № 1. – С. 37.
6. Cross E., Permogorov S., Travnikov V., Selkin A. // *Sol. State Communs.* – 1972. – Vol. 10, No. 1. – P. 1071.
7. Benoit a la Guillame C., Bonnot A., Delever J.M. // *Phys. Rev. Lett.* – 1970. – Vol. 24, No. 22. – P. 1235.
8. Пермогоров С., Травников В., Селькин А. // *ФТТ.* – 1970. – Т. 14, № 12. – С. 3642.
9. Ивченко Е.Л., Пикус Г.Е., Юлдашев Н.Х. // *ЖЭТФ.* – 1981. – Т. 80, № 3. – С. 1228.
10. Selkin A. *Phys. Stat. Sol (B).* – 1977. – Vol. 83, No. 1.