

## Однофононное затухание поляритонов в криокристаллах инертных элементов

Н. А. Гончарук, Е. И. Тарасова

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины  
Украина, 61164, г. Харьков, пр. Ленина, 47  
E-mail: tarasova@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 3 декабря 1999 г.

Однофононное затухание поляритонов определяет важнейшие характеристики релаксационных процессов возбуждений в области резонансной энергии  $E_T$ . В приближении деформационного потенциала проведен расчет однофононного затухания поляритонов на акустических фононах для нижайших экситонов  $\Gamma(3/2)$  в криокристаллах Ag, Kг, Хе. Представлены результаты численного расчета кривых энергетической зависимости затухания  $\Gamma(E, T = \text{const})$  при нескольких температурах во всей области существования свободных экситонов каждого кристалла. Получены аналитические выражения для  $\Gamma(E, T)$  при  $T = 0$  и при  $T > 2\hbar k_s$ . Сравнение с данными численного расчета приводит к выводу о справедливости линейной температурной зависимости  $\Gamma(E = \text{const}, T)$  в широком диапазоне температур, за исключением очень низких. Показано, что при температуре выше критической существует область энергий в окрестности  $E_T$ , в которой преобладают процессы с поглощением фононов, препятствующие релаксации поляритонов вниз по дисперсионной кривой. Ширина этого участка сравнима с максимальной энергией фононов и увеличивается с ростом температуры.

Однофононне згасання поляритонів визначає найважливіші характеристики релаксаційних процесів збуджень в області резонансної енергії  $E_T$ . В наближенні деформаційного потенціалу було проведено розрахунок однофононного загасання поляритонів на акустичних фононах для найнижчих екситонів  $\Gamma(3/2)$  в криокристалах Ag, Kг, Хе. Наведено результати чисельного розрахунку кривих енергетичної залежності згасання  $\Gamma(E, T = \text{const})$  для декількох температур в усій області існування вільних екситонів кожного кристалу. Одержано аналітичні вирази для  $\Gamma(E, T)$  при  $T = 0$  та при  $T > 2\hbar k_s$ . Порівняння з чисельними розрахунковими даними приводить до висновку про правильність лінійної температурної залежності  $\Gamma(E = \text{const}, T)$  в широкому діапазоні температур, за винятком дуже низьких. Показано, що при температурі вище критичної існує область енергій поблизу  $E_T$ , де мають перевагу процеси з поглинанням фононів, які заважають релаксації поляритонів униз по дисперсійній кривій. Ширина цієї області порівнюється з максимальною енергією фононів і зростає з температурою.

PACS: 71.35.Aa, 71.35.Cc

### Введение

Криокристаллы инертных элементов благодаря высокому квантовому выходу являются привлекательным объектом для преобразования в них энергии высокочастотных электронных возбуждений в ВУФ и видимое излучение. Нижайшие экситонные состояния в криокристаллах инертных элементов, являющиеся конечной стадией релаксации собственных электронных возбуждений кристалла, сочетают в себе уникальные свойства. Распределение интенсивностей в излучении зависит от особенностей экситон-фононного и экситон-фотонного взаимодействий. Существование

широких зон (ширина  $2B \leq 1$  эВ) коллективных состояний экситонов со слабым однофононным затуханием обеспечивает высокую подвижность свободных экситонов [1–5]. В кристаллах происходит эффективный перенос возбуждения к поверхности, а также к примесным центрам даже при малых концентрациях примеси [5–8]. В то же время сильная связь экситонов с локальной деформацией решетки приводит к интенсивным процессам автолокализации возбуждений во всех криокристаллах инертных элементов [1–3]. В чистых кристаллах Ne, Ag, Kг основная доля излучения приходится на ВУФ излучение автолокализованных экситонов [1–3], и только в Хе,

согласно последним результатам для особо совершенных кристаллов [9], излучения свободных и автолокализованных экситонов сравнимы по интенсивности. В процессе релаксации возбуждений в пределах широкой зоны изменяется их распределение по указанным конкурирующим каналам; оно зависит от кинетической энергии экситона (т.е. положения квазичастицы на дисперсионной кривой). Релаксация свободных экситонов внутри зоны определяется конкуренцией трех процессов: однофононного рассеяния (его вероятность преобладает и обеспечивает релаксацию по зоне), переходов в автолокализованное состояние и переноса к примесям (дефектам). В окрестности дна зоны процессы однофононной релаксации замедляются вследствие действия законов сохранения энергии и импульса [4] и два последних релаксационных канала приобретают большее значение. Кроме того, в непосредственной близости к резонансной энергии  $E_T$  экситонов с поперечной поляризацией резко возрастает вероятность излучательного распада экситона.

В кристаллах инертных элементов Ag, Kr и Xe излучательный распад экситонов  $\Gamma(3/2)$  характеризуется сравнительно большой силой осциллятора ( $F \sim 0,1$ ), которая обуславливает достаточно сильную экситон-фотонную связь. Она приводит к эффективному экситон-фотонному смешиванию в области пересечения дисперсионных кривых света и экситона и формированию поляритонного закона дисперсии [10,11]. Проявление поляритонных особенностей наблюдается в области энергий  $|E - E_T| \leq \Delta_{LT}$  ( $\Delta_{LT} \sim 0,1$  эВ — величина поперечно-продольного расщепления, пропорциональная  $F$  [10,11]) и оказывает существенное влияние на процессы релаксации и переноса энергии возбуждений в кристалле.

Первые исследования поляритонных эффектов (с учетом пространственной дисперсии) в кристаллах инертных элементов были предприняты прежде всего для объяснения аномальной ширины и формы спектров отражения в кристаллах Ag и Kr [12]. Затем был проведен последовательный анализ влияния поляритонных эффектов на спектры пропускания и отражения в Xe [13,14], который подтвердил важность учета свето-экситонного смешивания при исследовании оптических характеристик. В этих расчетах использовалось постоянное значение затухания экситонов  $\Gamma_{ex}$ , имеющее смысл некоторого среднего по довольно широкой области энергий от  $E_T$  до  $E \sim E_T + \Delta_{LT}$ . Этот выбор  $\Gamma_{ex}$  был основан на результатах расчета однофононного затухания «чистых» экситонов (без учета смешивания с фо-

тонами) [4], поскольку не были известны зависимости  $\Gamma(E, T)$  для поляритонов и их функция распределения по энергии (ФРП).

В настоящей работе выполнен последовательный расчет однофононного затухания поляритонов как функции энергии и температуры и показано, что энергетическая зависимость  $\Gamma$  в окрестности и ниже  $E_T$  формируется при сильном влиянии поляритонных явлений. Однофононное затухание определяет важнейшие характеристики релаксационных процессов, как протекающих внутри зоны (см. выше), так и связанных с радиационным распадом.

Характеристики полосы люминесценции в области экситонного резонанса кристалла непосредственно связаны с изменением закона дисперсии экситонов при смешивании с фотонами, в частности — с возможностью релаксации поляритонов в области энергий ниже  $E_T$ . Этот процесс тесно переплетается (в зависимости от энергии) с вышеперечисленными релаксационными процессами и отражает поведение ФРП по энергии; ФРП определяется путем решения кинетического уравнения с учетом фононного рассеяния  $\Gamma$  и времени жизни поляритонов, включающего все каналы распада зонных квазичастиц [15]. Знание ФРП необходимо также для нахождения кинетических параметров процессов переноса энергии как средних значений по распределению — скорости, различных составляющих времени жизни, длины свободного пробега поляритонов, их коэффициента диффузии.

Наиболее прямым методом определения времени жизни поляритонов является измерение времени затухания интенсивности излучения при импульсном возбуждении экситонов. В работе [16] была предпринята попытка описать «кривые распада» в Xe с помощью компьютерного моделирования процесса распространения возбуждений в решетке. В результате был оценен вклад процесса автолокализации в формирование времени жизни поляритонов. Однако в расчете были допущены следующие неточности. Не учитывалась пространственная диффузия высокоэнергетических экситонов во время релаксации по всей экситонной зоне. Для групповой скорости поляритонов было выбрано значение средней тепловой скорости «чистых» экситонов (как будет показано ниже, при температуре 4 К это совершенно неоправданно). Для затухания поляритонов  $\Gamma$  также использовалось значение, характерное для термализованных экситонов.

Знание энергетической и температурной зависимостей вероятности рассеяния поляритонов на

Параметры поляритонов для экситонов  $\Gamma(3/2)$ ; экспериментальные значения  $F$ ,  $E_T$ ,  $C$ ,  $\Delta_{LT}$  взяты из [3,6]

Кристалл	$\frac{m}{m_0}$	$F$	$f$	$E_T$	$C$	$A, 10^{-3}$	$\Delta_{LT}$	$\lambda$	$2\hbar k_{\text{res}}^s, \text{ К}$	$Q, 10^{35} \text{ эВ}^{-2} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
			эВ							
Хе	2,0	0,166	2,0	8,36	1,97	5,62	0,11	0,021	7,4	5,55
Кг	2,7	0,158	2,2	10,17	2,11	5,38	0,13	0,056	9	8,07
Аг	3,6	0,065	1,54	12,06	2,02	4,0	0,06	0,18	10,2	7,6

фононах, а также использование этих зависимостей для расчета ФРП и правильного усреднения кинетических параметров позволяет провести адекватный анализ упомянутых выше экспериментальных данных.

Первый расчет однофононного затухания поляритонов, включающий предварительные оценки для кристаллов инертных элементов, был сделан в работе [17] на основе того же определения затухания  $\Gamma$ , которое используется в настоящей работе (см. далее выражение (2)). Авторы [17] выполнили анализ в терминах зависимости  $\Gamma$  от волнового вектора поляритона  $\mathbf{k}$  и не получили данных для  $\Gamma(E)$ , что затрудняет сравнение с экспериментом и нахождение ФРП [15]. Аналитические зависимости  $\Gamma$  от квазиимпульса и температуры при произвольных температурах в [15] приведены в неявном виде, без проведения численных расчетов, явная аналитическая зависимость  $\Gamma(k, T)$  дана только при  $T \rightarrow 0$ , однако она не имеет предельного перехода по энергии к  $\Gamma_{\text{ex}}$  при  $E > E_T$  и может применяться только в узкой окрестности энергии резонанса и при очень низких температурах.

В настоящей работе для нижайших состояний поляритонов в кристаллах Аг, Кг и Хе проводится расчет однофононного затухания в зависимости от энергии квазичастиц и температуры кристалла. Используется известный закон дисперсии поляритонов, полученный в дипольном приближении для взаимодействия экситонов с электромагнитным полем (линейном по экситонным и фотонным операторам). Взаимодействие поляритонов с акустическими фононами учитывается в линейном приближении по фононным операторам в модели изотропного деформационного потенциала. Представлены результаты численного расчета энергетических зависимостей затухания для широкого набора значений температур, а также аналитические зависимости, описывающие затухание поляритонов в актуальных областях энергий и температур.

### Общие соотношения

Ширина области энергий, в которой экспериментально проявляются поляритонные эффекты, порядка  $\Delta_{LT}$  (см. таблицу). Как будет показано ниже, для рассматриваемых экситонных состояний выполняется неравенство  $\Delta_{LT} \gg \hbar\Gamma(E_T)$ , где  $\Gamma(E_T)$  — затухание поляритонов на фононах в области резонанса. Этот факт позволяет четко выделить состояния одной нижней ветви поперечных поляритонов в качестве окончательной стадии релаксации зонных состояний экситонов  $\Gamma(3/2)$ . Именно эти состояния будут рассматриваться нами в дальнейшем. Решение дисперсионного уравнения  $\epsilon(\omega, \mathbf{k})[\omega^2\epsilon(\omega, \mathbf{k}) - k^2c^2]^2 = 0$  для нижней ветви поперечных поляритонов имеет известный вид [1,2]:

$$\omega_{\perp}^{\pm}(k) = \left\{ \frac{1}{2} \left( \omega_k^2 + \frac{k^2c^2 + f^2}{\epsilon_{\infty}} - i\omega_k \gamma_k \right) - \left[ \frac{1}{4} \left( \omega_k^2 + \frac{k^2c^2 + f^2}{\epsilon_{\infty}} - i\omega_k \gamma_k \right)^2 - \frac{k^2c^2}{\epsilon_{\infty}} (\omega_k^2 - i\omega_k \gamma_k) \right]^{1/2} \right\}^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь  $f = 4\pi e^2 F / (m_0 V_0)$  — частота, характеризующая силу осциллятора  $F$ ;  $m_0$  — масса свободного электрона;  $V_0 = a^3/4$  — объем элементарной ячейки для ГЦК кристалла;  $a$  — постоянная решетки;  $\epsilon_{\infty}$  — диэлектрическая проницаемость при больших частотах ( $\omega \gg \omega_T$ );  $\omega_k = \omega_T + \hbar k^2/2m$  — закон дисперсии экситонов;  $m$  — масса экситона;  $\hbar\omega_T = E_T$ . Мнимое слагаемое  $i\gamma_k \omega_k$  вводится для учета затухания:  $\gamma_k \equiv 2\Gamma(E(k))$ . Как показали наши результаты, можно пренебречь величиной  $\gamma_k$  при расчете закона дисперсии, что далее используется при выводе аналитических зависимостей для  $\Gamma(E, T)$ . Поперечно-продольное расщепление выражается через параметры закона дисперсии в виде  $\Delta_{LT} = f^2 \hbar^2 / 2\epsilon_{\infty} E_T$ . Дисперсионная кривая (1) для поляритонов в Хе приведе-

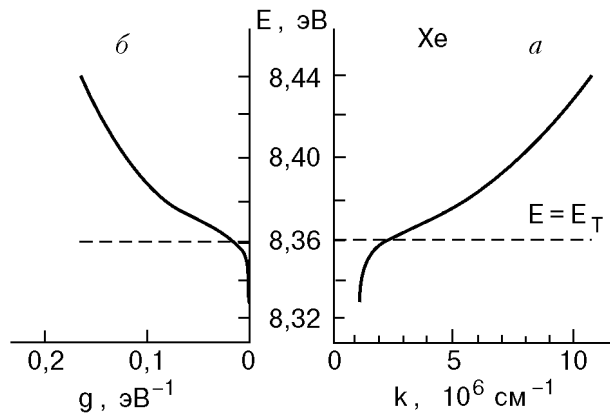


Рис. 1. Дисперсионная зависимость  $E(k)$  для Хе (а); зависимость плотности состояний поляритонов от энергии  $g(E)$  (б).

на на рис. 1, а. При  $\omega > \omega_T + \Delta_{LT}/\hbar$  поляритоны нижней ветви  $\omega_{\perp}(\mathbf{k})$  не отличаются от экситонов, не взаимодействующих с электромагнитным полем. При частотах  $\omega < \omega_T - \Delta_{LT}/\hbar$  закон дисперсии (1) переходит в линейную зависимость низкочастотных фотонов.

Процесс взаимодействия поляритонов с фононами имеет характер многократных последовательных актов неупругого рассеяния, что и обуславливает перемещение квазичастиц по энергии вдоль дисперсионной кривой. Это рассеяние определяется вероятностью перехода из состояния  $\omega(\mathbf{k})$  в состояние  $\omega(\mathbf{k}')$ . В случае Хе, Кг и Лг реализуется ситуация слабого экситон-фононного взаимодействия [3,4], поэтому главную роль играют однофононные процессы, которые и рассматриваются в настоящей работе. В первом приближении теории возмущений по экситон-фононному взаимодействию затухание поляритона с энергией  $\hbar\omega(\mathbf{k})$  при температуре  $T$  записывается в виде [10,11]

$$\Gamma(\omega, T) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}'} |G_{|\mathbf{k}-\mathbf{k}'|}|^2 P(\omega) P(\omega') \times \{ (n_{|\mathbf{k}-\mathbf{k}'|} + 1) \delta[\omega(\mathbf{k}) - \omega(\mathbf{k}') - s|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|] + n_{|\mathbf{k}-\mathbf{k}'|} \delta[\omega(\mathbf{k}) - \omega(\mathbf{k}') + s|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|] \}, \quad (2)$$

где  $\mathbf{k} - \mathbf{k}' = \mathbf{q}$ ,  $\mathbf{q}$  — волновой вектор фонона;  $\delta$ -функции выражают закон сохранения энергии при рассеянии; единица в круглых скобках перед первой  $\delta$ -функцией в формуле (2) учитывает вклад в рассеяние процессов спонтанного излучения фононов;  $n_{\mathbf{q}} = [\exp(\hbar\omega_{\mathbf{q}}/T) - 1]^{-1}$  — число заполнения фононов с волновым вектором  $\mathbf{q}$  (полностью определяет температурную зависимость  $\Gamma$ );  $\hbar\omega_{\mathbf{q}} = s|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|$  — энергия фонона в модели

Дебая;  $s$  — скорость звука;  $P(E)$ ,  $P(E')$  — силовые функции поляритонов, описывающие вклад экситонной компоненты в состояние поляритона [11, стр. 385],

$$P(E) = \frac{f^2 E^2}{\epsilon_{\infty}(E_T^2 - E^2)^2 + f^2 E_T^2}.$$

При расчете вероятности однофононного рассеяния поляритонов в кристаллах инертных элементов ввиду их высокой симметрии применима модель деформационного потенциала для экситон-фононного взаимодействия в виде  $H_{\text{int}} = -C \text{div } \mathbf{u}$ , где  $C$  — деформационный потенциал экситона,  $\mathbf{u}$  — относительная деформация. В это взаимодействие вносят вклад только продольные акустические фононы, поэтому в работе в качестве  $s$  используются значения  $s_l$ . В указанной модели  $G_{\mathbf{q}}$  выражается в виде  $|G_{\mathbf{q}}| = C(\hbar\omega_{\mathbf{q}}/2Ms^2)^{1/2}$ , где  $M$  — масса атома. Критерием слабой силы экситон-фононного рассеяния является малая величина параметра неадиабатичности [1–5],

$$\lambda = \frac{4m^2 C^2}{3\pi \rho s \hbar^3} \sim \frac{\hbar\omega_D}{B} \ll 1. \quad (3)$$

Здесь  $\rho = M/V_0$  — плотность кристалла;  $\omega_D$  — дебаевская частота фононов;  $B$  — полуширина экситонной зоны. Значения  $\lambda$  приведены в таблице.

Поскольку нас интересует процесс релаксации по энергии, перейдем в выражении (2) от суммирования по волновым векторам к интегрированию по энергии и представим затухание в виде

$$\Gamma(E, T) = \int_0^{\infty} dE' W(E \rightarrow E', T) g(E'), \quad (4)$$

где  $g(E)$  — плотность состояний поляритонов по энергии. Здесь введена вероятность перехода поляритона с энергией  $E$  в состояние с энергией  $E'$ :

$$W(E \rightarrow E', T) = \frac{\pi C^2}{2\hbar^3 M s^4} \frac{(E - E')^2 P(E) P(E')}{k(E) k(E') |\exp[(E' - E)/T] - 1|} \times \theta(|E - E'| - \hbar s|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|) \theta[\hbar s(\mathbf{k} + \mathbf{k}') - |E - E'|]. \quad (5)$$

Функция  $\theta(x) = 1$ , если  $x \geq 0$ , и  $\theta(x) = 0$ , если  $x < 0$ ;  $\theta$ -функции отражают закон сохранения энергии при рассеянии. Последний множитель

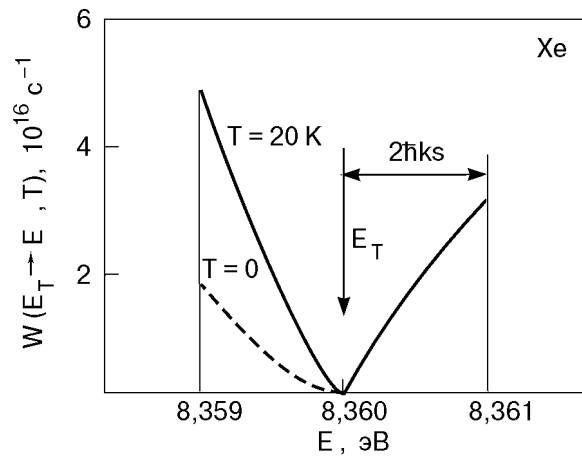


Рис. 2. Вероятность однофононного рассеяния  $W(E_T \rightarrow E, T)$  для поляритонов в Хе при  $E_T = 8,36$  эВ и  $T = 20$  К.

в (5) означает, что передаваемая фонону энергия не может превышать величину  $\hbar s(k + k')$ ,  $k \equiv k(E)$  и  $k' \equiv k(E')$  — модули волновых векторов поляритона до и после рассеяния. Зависимость  $W(E_T \rightarrow E', T = 20 \text{ К})$  для Хе представлена на рис. 2. Превышение левого крыла функции над правым обусловлено вкладом процесса спонтанного излучения фононов, определяющего затухание поляритонов при  $T = 0$ .

Учитывая  $\theta$ -функции в (5), общее выражение для затухания (4) можно представить в виде

$$\Gamma(E, T) = \frac{Q}{k(E)} \int_{E-2\hbar s k(E)}^{E+2\hbar s k(E)} \frac{(E - E')^2 g(E') dE'}{k(E') |\exp[(E' - E)/T] - 1|}, \quad (6)$$

где введено обозначение  $Q = \pi C^2 / (2\hbar^3 M s^4)$ . Расчет показывает, что функция  $P(E)$  в актуальном интервале энергий ниже  $E_T$  уменьшается всего на 2%, поэтому мы положили  $P(E) = 1$ .

### Результаты численного расчета зависимостей $\Gamma(E, T = \text{const})$

Кинетические параметры поляритонов и форма линии люминесценции определяются функцией распределения частиц по энергии,  $F(E)$ . В свою очередь,  $F(E)$  является результатом конкуренции между процессами релаксации поляритонов по энергии за счет вероятности  $W(E \rightarrow E', T)$  и их распада. Время жизни поляритонов  $\tau$  (радиационное, или по отношению к захвату на дефектах, примесях, или за счет автолокализации) может меняться в кристалле на порядки, например, при

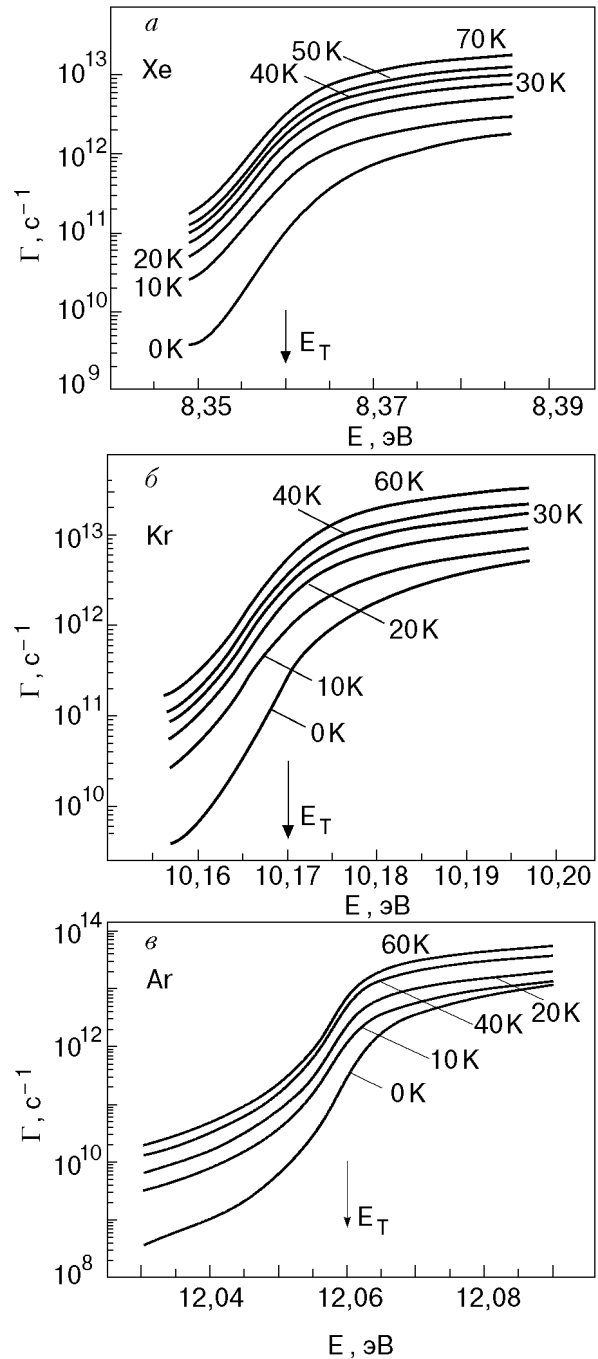


Рис. 3. Численный расчет затухания поляритонов  $\Gamma(E, T = \text{const})$  по формуле (6) для экситонов  $\Gamma(3/2)$  в Хе (а), Кр (б), Ар (в) при различных температурах.

изменении толщины кристалла, его дефектности или концентрации примесей. Поэтому важно знать точное поведение  $\Gamma(E, T)$  в низкоэнергетичной части в масштабах возможного изменения вероятности гибели поляритона  $\tau^{-1}$ . Поскольку интеграл (6) не является тривиальным (обратная дисперсионная зависимость  $k(E)$  находится в пределах интегрирования), приведем полный набор результатов численного расчета затухания (6), где зависимости  $g(E)$  и  $k(E)$  найдены численными

методами непосредственно из (1). На рис. 3 в логарифмическом масштабе представлен набор функций  $\Gamma(E, T = \text{const})$  для всей температурной области существования свободных экситонов в кристаллах Хе, Кг и Аг. Экситон-фоонное взаимодействие возрастает в ряду от тяжелых инертных газов к легким, что соответствует росту параметра неадиабатичности  $\lambda$  (см. таблицу). В соответствии с этим наблюдается увеличение  $\Gamma(E, T)$  при переходе от Хе к Аг (при равных температурах). Данный эффект аналогичен полученному ранее для затухания экситонов [4] и объясняется слабым изменением экситонной компоненты поляритона ( $P(E) \sim 1$ ) в рассматриваемой области энергий для указанных кристаллов.

### Аналитические зависимости $\Gamma(E, T)$

Далее проведем аналитическое исследование  $\Gamma(E, T)$ . Прежде всего для расчета интеграла (6) необходимо найти аналитические выражения для  $k(E)$  и  $g(E)$ . Как видно из (1), функция  $\omega_{\perp}(\mathbf{k})$  имеет сложный вид, поэтому получение точного обратного дисперсионного соотношения представляет собой громоздкую процедуру. Для упрощения расчетов в работе были использованы неравенства, обычно выполняющиеся для оптически наблюдаемых экситонных переходов:

$$\frac{E_T \varepsilon_{\infty}}{mc^2} \ll \frac{f^2}{\varepsilon_{\infty} E_T^2} \ll 1. \quad (7)$$

С учетом данных приближений дисперсионную зависимость можно привести к следующему виду:

$$k(E) = \left(\frac{m}{\hbar^2}\right)^{1/2} \left\{ [(E - E_T)^2 + A^2]^{1/2} + (E - E_T) \right\}^{1/2}, \quad (8)$$

где  $A^2 = E_T f^2 / (mc^2)$  определяет интервал энергии вблизи  $E_T$ , где наблюдается характерное для поляритонов изменение закона дисперсии. Выражение (8) для энергий  $E - E_T \gg A$ , а также в пределе  $f \rightarrow 0$  ( $A \rightarrow 0$ ) переходит в обычную для «механических» экситонов (с квадратичным законом дисперсии) корневую зависимость. На рис. 4 сравниваются зависимости  $k(E)$  для Хе, одна из которых получена по формуле (8), другая определена численно по точной формуле (1). Наблюдается расхождение кривых в низкочастотной области, соответствующее  $\sim 2-5\%$ . Этот факт объясняется отсутствием диэлектрической константы в выражении (8) после проведенных пре-

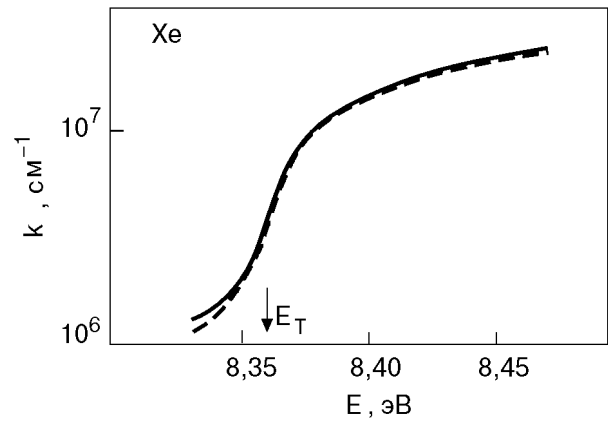


Рис. 4. Сравнение зависимостей  $k(E)$  для Хе, полученных по точной формуле теории (1) (сплошная кривая) и по формуле (8) (пунктирная кривая).

образований согласно (7). Тем не менее в реальной области проявления поляритонных эффектов вблизи  $E_T$  достигается хорошая точность.

Далее вычислим плотность состояний поляритонов, учитывая двукратное вырождение поперечных состояний по поляризации и сферическую симметрию закона дисперсии:

$$g(E) = \frac{V_0}{\pi^2} k(E)^2 \left| \frac{dk}{dE} \right|. \quad (9)$$

Используя (8), получаем следующее выражение:

$$g(E) = \frac{V_0}{2\pi^2} \left(\frac{m}{\hbar^2}\right)^{3/2} \frac{\{[(E - E_T)^2 + A^2]^{1/2} + (E - E_T)\}^{3/2}}{[(E - E_T)^2 + A^2]^{1/2}}. \quad (10)$$

Зависимость (10) для поляритонов в Хе представлена на рис. 1,б (повернуто на  $90^\circ$ ). В пределе  $f \rightarrow 0$  также находим соответствующую корневую зависимость для экситонов.

Теперь перейдем непосредственно к анализу  $\Gamma(E, T)$  в виде (6).

Вначале рассмотрим случай, когда  $T = 0$  и модуль с экспонентой в знаменателе (6) равен единице. Кроме того, реализуются только процессы с испусканием фононов, т.е. в интеграле (6) остается только половина с нижним пределом интегрирования. Обозначим  $2\hbar sk(E) = \delta$  (помним, что  $\delta \equiv \delta(E)$ ), а также  $g(E)/k(E) = f(E)$ . Перейдем к новой переменной интегрирования  $E - E' = x$ :

$$\Gamma(E, 0) = \frac{Q}{k(E)} \int_0^{\delta} x^2 f(E - x) dx. \quad (11)$$

Интервал характерного изменения функций  $g(E)$  и  $k(E)$  — величина  $A \sim 5 \cdot 10^{-3}$  эВ, а интервал

интегрирования  $\delta \leq 10 \text{ К} \sim 5 \cdot 10^{-4} \text{ эВ}$  (см. таблицу). Поскольку  $\delta \ll A$ , можно считать функцию  $f(E)$  в (11) слабо меняющейся и разложить ее в ряд в окрестности точки  $E$ :

$$f(E-x) \cong f(E) - \frac{df}{dE} x + \frac{d^2f}{dE^2} x^2 + \dots \quad (12)$$

Удерживая первые два члена, получаем

$$\Gamma(E, 0) = \frac{Q}{k(E)} \frac{\delta^3(E)}{3} \left[ f(E) - \frac{3}{4} \delta(E) \frac{df(E)}{dE} \right]. \quad (13)$$

Учитывая вид функций  $k(E)$ ,  $g(E)$  в формулах (8) и (10), приходим к окончательному выражению

$$\Gamma(E, 0) = \frac{Q(2\hbar s)^3}{3} g(E)k(E) \times \left\{ 1 - \frac{3}{2} \frac{ms}{\hbar} \frac{A^2}{k(E)[(E-E_T)^2 + A^2]} \right\}. \quad (14)$$

Функция (14) в пределе  $f \rightarrow 0$  превращается в известную линейную по энергии зависимость для экситонов [4,5]. Рассчитанные численно кривые затухания рассматриваемых кристаллов при  $T = 0 \text{ К}$  (рис. 4) аппроксимируются зависимостью (14) с точностью до процента. Второе слагаемое является заметной поправкой ( $< 10\%$ ) в узкой области энергий вблизи резонанса.

Теперь рассмотрим зависимость затухания от температуры. Произведем в (8) аналогичные предыдущему случаю переобозначения:

$$\Gamma(E, T) = \frac{Q}{k(E)} \times \int_0^{\delta} \frac{x^2 e^{x/T} dx}{e^{x/T} - 1} \left[ f(E-x) + f(E+x) e^{-x/T} \right]. \quad (15)$$

Разложим функции  $f(E-x)$  и  $f(E+x)$  аналогично (12). Первый член этого разложения дает

$$\Gamma_0(E, T) = \frac{Qf(E)}{k(E)} \int_0^{\delta} \frac{\text{ch}(x/2T)}{\text{sh}(x/2T)} x^2 dx. \quad (16)$$

Интеграл в формуле (16) берется точно и выражается в виде ряда

$$I = \int y^2 \text{cth} y dy = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2^{2n} B_{2n} y^{2(n+1)}}{2(n+1)(2n)!}, \quad |y| < \pi, \quad (17)$$

где  $B_{2n}$  — числа Бернулли:  $B_0 = 1$ ,  $B_2 = 1/6$ ,  $B_4 = -1/30, \dots$ . Первые члены в (17) можно представить как

$$I = \frac{y^2}{2} + \frac{y^4}{12} - \frac{y^6}{270} + \dots$$

Очевидно, благодаря резкому уменьшению коэффициентов ряд очень хорошо сходится при простом условии  $y < 1/2$ . В нашем случае  $y = \delta/2T$ . Рассмотрим ситуацию  $T > \delta$ , тогда можно ограничиться первыми двумя членами в (17) с точностью не менее 4%. В результате имеем

$$\Gamma_0(E, T) = Q(2\hbar s)^2 T g(E) \left[ 1 + \frac{[\hbar s k(E)]^2}{6T^2} \right]. \quad (18)$$

Далее, линейный член в разложении  $f(E)$  в виде (12) дает не зависящий от температуры вклад

$$\Gamma_1(E, T) = - \frac{Q}{k(E)} \frac{df}{dE} \int_0^{\delta} x^3 dx = - \frac{B}{k(E)} \frac{df}{dE} \frac{[2\hbar s k(E)]^4}{4}. \quad (19)$$

Вычисляя производную  $f(E)$  и учитывая соотношение функций  $k(E)$  и  $g(E)$  по (8) и (10), преобразуем (19) к следующему виду:

$$\Gamma_1(E, T) = - Q \frac{(2\hbar s)^4 \pi^2}{2V_0} g(E) \frac{A^2}{(E-E_T)^2 + A^2}. \quad (20)$$

В работе были выполнены также вычисления с учетом квадратичных членов в разложении функции  $f(E)$  в виде (12). Поправки для указанных кристаллов составили менее процента, а соответствующие выражения для них громоздки и поэтому в работе не приводятся.

В результате суммирования (18) и (20) для случая  $T > 2\hbar s k$  получаем окончательное выражение для температурной зависимости затухания:

$$\Gamma(E, T) = Q(2\hbar s)^2 T g(E) \times \left\{ 1 - \frac{(2\hbar s)^2 \pi^2}{2V_0 T} \frac{A^2}{(E-E_T)^2 + A^2} + \frac{[\hbar s k(E)]^2}{6T^2} \right\}. \quad (21)$$

На рис. 5 показана температурная зависимость затухания поляритонов  $\Gamma(E, T)$  в Хе, Кг и Аг при фиксированных значениях энергии ( $E = E_T$ ). В широком интервале температур численно полученная по начальной формуле (6) зависимость

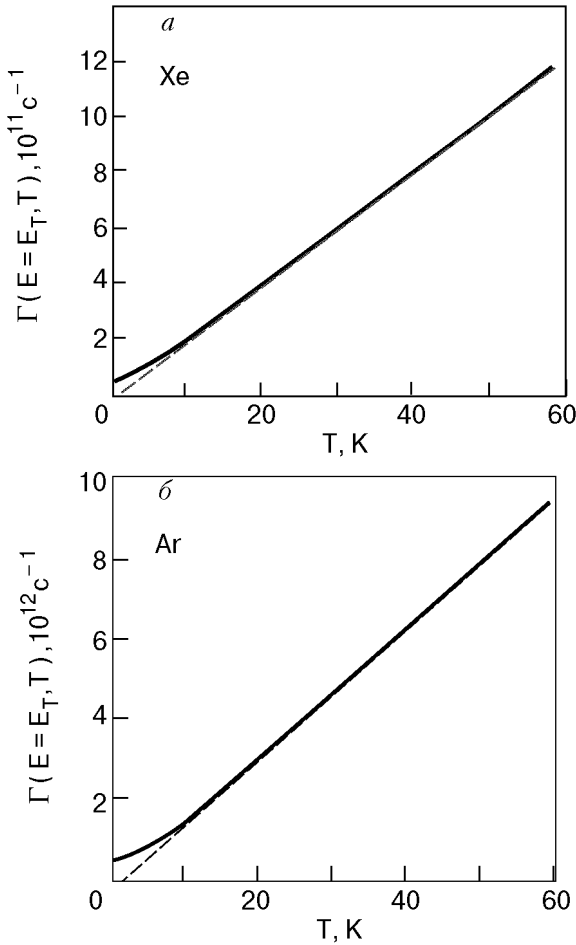


Рис. 5. Зависимости затухания поляритонов  $\Gamma(E_T, T)$  в Хе (а) и Аг (б).

$\Gamma(T, E = \text{const})$  следует линейному закону. Ему соответствуют два первых слагаемых в выражении (21). Отклонение от линейной зависимости в области низких температур связано с переходом к соответствующему значению постоянного вклада  $\Gamma(E, 0)$ .

### Обсуждение результатов

Найденные закономерности затухания поляритонов имеют определенную аналогию с ранее проведенными расчетами для затухания «чистых» экситонов с квадратичным законом дисперсии [4]. В том и другом случае затухание зависит от температуры через числа заполнения фононных состояний  $n_q(T)$ . Минимальные значения групповой скорости поляритонов  $v_g$  в кристаллах инертных элементов довольно велики ( $v_{\min} \sim 10^6$  см/с) и удовлетворяют критерию  $v_g \gg s \sim 10^5$  см/с. Поэтому мы имеем для поляритонов линейную зависимость от температуры так же, как и для экситонов с большими (согласно указанному критерию) скоростями. Положе-

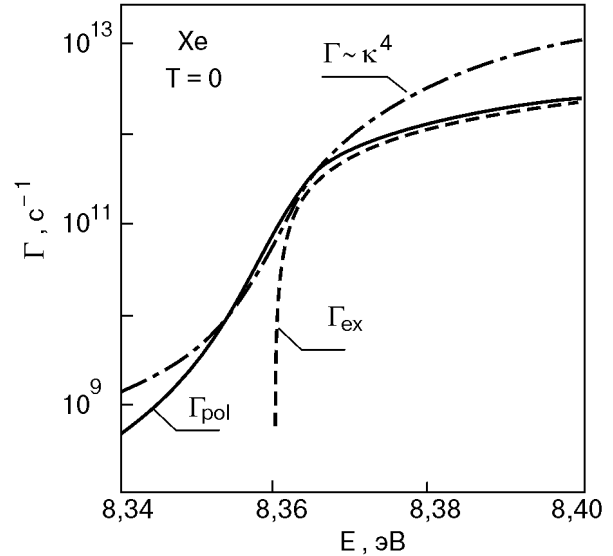


Рис. 6. Однофононное затухание поляритонов  $\Gamma_{\text{pol}}(E)$  (сплошная линия) и экситонов  $\Gamma_{\text{ex}}(E)$  (пунктирная линия) для Хе при  $T = 0$ . Штрих-пунктирная кривая соответствует зависимости  $\Gamma \propto \kappa^4$  из работы [17].

ние минимума  $v_g$  почти совпадает с  $E_T$ , поэтому, как уже не раз отмечалось, в области выше резонанса при увеличении энергии происходит плавный переход всех поляритонных зависимостей, в том числе и  $\Gamma(E, T)$ , к экситонным.

Существенные отличия проявляются непосредственно в области резонанса и ниже. На рис. 6 сравниваются энергетические зависимости затухания для экситонов и поляритонов в Хе при  $T = 0$  (логарифмический масштаб по оси ординат). Зависимость для экситонов при  $T = 0$  имеет простой вид линейной функции  $\Gamma_{\text{ex}}(E, T = 0) = \lambda(E - E_T)$  [4,18] и практически обращается в нуль при  $E = E_T$ . Принципиальное отличие для затухания поляритонов  $\Gamma_{\text{pol}}$  — наличие «хвоста» в области  $E < E_T$ . В совершенных кристаллах большого размера  $\Gamma_{\text{pol}}$  уменьшается на порядок в интервале энергий равном ширине полосы люминесценции  $\Delta E$  [9].

Наблюдаемое положение максимума полосы люминесценции при низких температурах связано с полной вероятностью распада поляритонов. При достаточно низких температурах возможны только процессы с испусканием фононов. Таким образом, представленная на рис. 6 функция  $\Gamma_{\text{pol}}$  описывает вероятность перехода поляритонов вниз по дисперсионной кривой. Процесс энергетической релаксации может быть остановлен лишь гибелью поляритона: либо он достигнет поверхности кристалла и преобразуется в излучение, либо будет захвачен примесью (или дефектным центром), либо автолокализуется. Максимум ФРП (близ-



кий к максимуму полосы люминесценции) при низких температурах примерно соответствует энергии, при которой обратное время жизни поляритона (полная вероятность его распада) совпадает с величиной однофононного затухания. Принятая для обычных экситонов концепция «теплового равновесия с решеткой» оказывается совершенно неприменимой при определении кинетических параметров поляритонов при низких температурах. Следует сначала решить задачу о формировании ФРП с учетом зависимости времени жизни поляритонов от энергии и температуры, а затем находить средние значения скорости поляритонов, длину их свободного пробега, коэффициент диффузии и т.д.

На рис. 6 для сравнения приведена также кривая затухания (штрих-пунктирная), соответствующая полученной в работе [17] зависимости  $\Gamma(E, T=0) \propto k^4(E)$ . Эти результаты неплохо совпадают в некоторой области энергий  $E < E_T$ .

Теперь обсудим влияние температуры на процесс энергетической релаксации поляритонов. Выражение для полного затухания (6) может быть представлено в виде суммы двух интегралов (для  $E' < E$  и для  $E' > E$ ), т.е.

$$\Gamma(E, T) = \Gamma^+(E, T) + \Gamma^-(E, T), \quad (22)$$

где  $\Gamma^+(E, T)$  соответствует вкладу процессов испускания фононов, а  $\Gamma^-(E, T)$  — процессов поглощения. Чем ниже температура, тем больше отно-

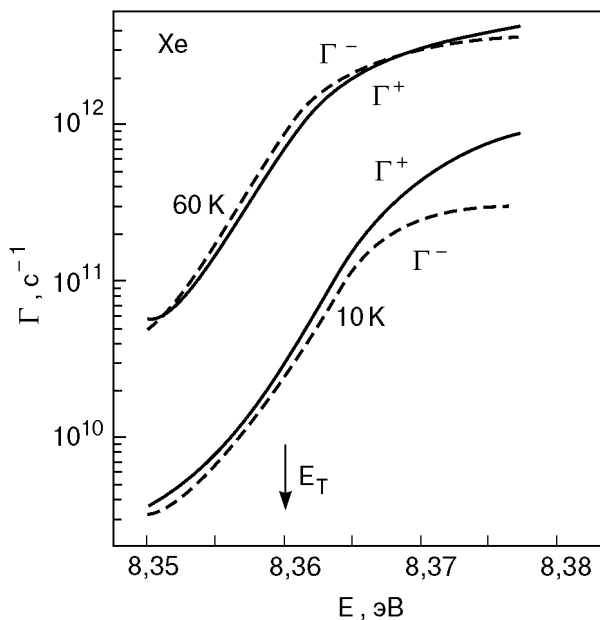


Рис. 7. Интегральные характеристики рассеяния поляритонов в Хе при излучении фононов ( $\Gamma^+$ , сплошные линии) и поглощении ( $\Gamma^-$ , пунктирные линии) в однофононных процессах при  $T = 10$  и  $60$  К.

сительный вклад в затухание  $\Gamma^+(E, T)$  процессов спонтанного (не зависящего от температуры) излучения фононов, которые описываются величиной  $\Gamma(E, 0)$ . При этом вероятность  $W(E \rightarrow E', T)$  имеет явно преобладающее левое крыло (см. рис. 3). Особенность поляритонной дисперсионной зависимости — резкое изменение производной (т.е. групповой скорости квазичастиц) в области  $E_T$  — обуславливает нетривиальную температурную зависимость соотношения между  $\Gamma^+$  и  $\Gamma^-$  в этой области энергий. На рис. 7 показаны интегральные вероятности  $\Gamma^\mp(E)$ , соответствующие рассеянию поляритонов в Хе при  $T = 10$  и  $60$  К. Резкое возрастание плотности состояний  $g(E)$  в области резонанса компенсирует асимметрию правого и левого крыла функции  $W(E \rightarrow E', T)$  в интеграле (6), что при температурах выше некоторой критической (в случае Хе  $T_c \approx 35$  К) приводит к преобладанию процессов с поглощением фононов. С этим связан так называемый эффект теплового барьера для релаксации квазичастиц вниз по дисперсионной кривой [17,19]. При высоких температурах область, где  $\Gamma^- > \Gamma^+$ , составляет  $\sim 2\hbar\omega_D \gg \delta$ . Преодоление такой широкой области в однофононных актах рассеяния с неупругостью  $\delta$  оказывается маловероятным, процесс релаксации замедляется, и формируется экситоноподобная функция распределения с максимумом выше  $E_T$ .

Выполненное исследование однофононного затухания поляритонов позволяет в последующих работах провести детальное изучение ФРП, формы полосы люминесценции и определить кинетические параметры поляритонов в Хе, Кг и Аг.

1. И. Я. Фуголь, Е. И. Тарасова, *ФНТ* **3**, 366 (1977).
2. I. Ya. Fugol', *Adv. Phys.* **27**, 1 (1978).
3. А. Ф. Прихотько, В. Г. Манжелей, И. Я. Фуголь, Ю. Б. Гайдидей, И. Н. Крупский, В. М. Локтев, Е. В. Савченко, В. А. Слюсарев, М. А. Стржеменчый, Ю. А. Фрейман, Л. И. Шанский, *Криокристаллы*, Б. И. Веркин, А. Ф. Прихотько (ред.), Наукова думка, Киев (1983). Часть 4.
4. И. Я. Фуголь, Е. И. Тарасова, *ФНТ* **7**, 1325 (1981).
5. I. Ya. Fugol', *Adv. Phys.* **37**, 1 (1988).
6. N. Schwentner, E. E. Koch, and J. Jortner, *Electronic Excitations in Condensed Rare Gases, Springer Tracts in Modern Physics* **107**, Springer-Verlag, Berlin (1985).
7. M. Runne and G. Zimmerer, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.* **B101**, 156 (1995).
8. A. G. Belov, I. Ya. Fugol', and E. M. Yurtaeva, *Phys. Status Solidi* **B175**, 123 (1993).
9. D. Varding, J. Becker, L. Frankenstein, B. Peters, M. Runne, A. Schroder, and G. Zimmerer, *Low Temp. Phys.* **19**, 427 (1993).
10. А. С. Давыдов, *Теория твердого тела*, Наука, Москва (1976).
11. В. М. Агранович, В. Л. Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов*, Наука, Москва (1979). [V. M. Agranovich and V. L.

- Ginzburg, *Spatial Dispersion in Crystal Optics and The Theory of Excitons*, Springer-Verlag, Berlin (1984)].
12. W. Andreoni, M. DeCrescenzi, and E. Tosatti, *Solid State Communs.* **26**, 425 (1978).
  13. I. Ya. Fugol', O. N. Grigoraschenko, A. M. Ratner, and E. V. Savchenko, *Solid State Communs.* **38**, 1031 (1981).
  14. I. Ya. Fugol', O. N. Grigoraschenko, and E. V. Savchenko, *Phys. Status Solidi* **B111**, 397 (1981).
  15. H. Sumi, *Solid State Communs.* **17**, 701 (1975).
  16. D. Varding, I. Reimand, and G. Zimmerer, *Phys. Status Solidi* **B185**, 301 (1994).
  17. Э. Н. Мясников, Г. В. Фомин, *ФНТ* **7**, 1053 (1981).
  18. Э. И. Рашба, *Изв. АН СССР. Сер. Физ.* **40**, 1793 (1976).
  19. Э. И. Адирович, *Некоторые вопросы теории люминесценции кристаллов*, Гостехтеориздат, Москва (1956).

### Single-phonon decay of polaritons in rare gas cryocrystals

N. A. Goncharuk and E. I. Tarasova

Single-phonon damping of polaritons is responsible for the most important characteristics of relaxa-

tion processes of excitations in the region of resonance energy  $E_T$ . In the deformation potential approximation, the single-phonon damping of polaritons by acoustic phonons is calculated for the lowest excitons,  $\Gamma(3/2)$ , in Ar, Kr and Xe cryocrystals. The numerical data on the energy dependence of damping,  $\Gamma(E, T = \text{const})$  are given for a set of temperatures everywhere over the region of existence of free excitons for each of the crystal. Analytical expressions for  $\Gamma(E, T)$  are derived for  $T = 0$  and  $T > 2\hbar k_B$ . Comparison with the numeric data suggests that the linear temperature dependence of  $\Gamma(E = \text{const}, T)$  is valid in a wide temperature region, except the very low temperatures range. It has been shown that above the critical temperature there exists an energy region near  $E_T$  where dominant are the phonon absorption processes that prevent the polariton relaxation down the dispersion curve. The width of this zone is comparable to the maximum phonon energy and increases with temperature increasing.