ДВИЖЕНИЕ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ЭКСИТОННЫХ ПАКЕТОВ

Е. Я. Глушко

Предложен пакетный базис волновых функций квазичастиц, удобный для анализа неоднородных кинетических явлений. Показано, что вероятность пространственного переброса пакета вдоль градиента концентрации (ГК) при рассеянии на фононах $\sim 1/r^2$, где r — расстояние. Получен вывод о неприменимости диффузионного приближения, если длина ГК меньше размеров кристалла. Проведен анализ характера неоднородной кинетики и люминесценции экситонов.

В литературе нередко при анализе кинетических коэффициентов когерентных экситонов (время релаксации, коэффициент диффузии и т. п.) [1-3] апеллируют к понятию экситонного пакета. Пакеты использовались для эффективного учета нарушения когерентности экситона в результате взаимодействия с фононами [1, 2] и для расчета пространственно-неоднородной задачи экситонного поглощения света в кристалле [3] в рамках полуфеноменологического уравнения для матрицы плотности (МП). Пакетные состояния в [1-3] фактически применялись как вспомогательные понятия в промежуточных выкладках и рассуждениях. Более детально атрибуты пакетов как системы квазичастиц обсуждаются в [4, 5], где проведен анализ базиса пакетных волновых функций (ВФ) и предложены примеры его использования в задачах неоднородной кинетики экситонов.

Имеется несколько ситуаций, когда применение пакетных состояний видится удобным. В первую очередь речь может идти о системах, где сравнительно легкие квазичастицы взаимодействуют с неоднородностями типа приповерхностного изгиба зон, дефектами, примесями и т. п. Кроме того, даже в физически однородной системе возможны неоднородные начальные условия для системы квазичастиц.

В настоящей работе рассмотрено ортогональное пакетное представление с заданным средним волновым вектором **K** (K — пакеты). Для случая экситон-фононного взаимодействия получена формула для вероятности рассеяния экситонного пакета с перебросом из одной точки кристалла в другую. Анализируется критерий диффузного приближения для пакетов в координатном пространстве. Эволюция в импульсном пространстве, как показывают расчеты, носит волновой характер при слабых возмущениях МП и приобретает черты диффузного расплывания при сильных возмущениях. Рассмотрена задача пространственно-неоднородной релаксации и люминесценции экситонов. С учетом коэффициента пропускания границы получено выражение для формы спектра поляритонной люминесценции неоднородной системы экситонов.

1. Рассеяние экситонных пакетов на фононах

Процедура получения **K**-пакетного представления аналогична предложенной в работе [5] с тем отличием, что непересекающиеся подмножества точек **K** зоны Бриллюэна (ЗБ) ΔV_l теперь выбираются в форме параллелепипеда со сторонами $2\pi/a_1$, $2\pi/a_2$, $2\pi/a_3$, где a_1, a_2, a_3 — постоянные решетки вдоль трех осей координат.[1] Пакетный δ-символ $\delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}}$, «вырезающий» объем ΔV_l вблизи $\mathbf{K}$, содержащий П точек для случая $\mathbf{K}$-пакетов, может быть представлен в виде произведения δ^{Π}-символов $\delta^{\Pi_i}_{k_iK_i}$, $i=1, 2, 3$, каждый из которых «вырезает» одно из ребер ΔV_l: $\Delta K_i = 2\pi\Pi_i/a_iN_i$, где N_i — число узлов решетки кристалла вдоль оси i, $N=N_1N_2N_3$; Π_i — число точек ЗБ, принадлежащих i-ребру ΔV_l, $\Pi = \Pi_1\Pi_2\Pi_3$. Оператор перехода $\hat{C}$ к пакетному базису от исходного базиса импульсных ВФ $|\,\mathbf{k}\rangle$ задается двусторонне-унитарной матрицей $C_{\mathbf{XK},\,\mathbf{k}} = \delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}}e^{i\mathbf{kX}}$. Тогда пакетная ВФ имеет вид

$$|\mathbf{X},\ \mathbf{K}\rangle = \sum_{\mathbf{k}} \delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}} e^{i\mathbf{kX}}\,|\,\mathbf{k}\rangle, \quad \sum_{\mathbf{K}} \delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}} = \sqrt{\Pi}, \tag{1}$$

где координаты центров пакетов $\mathbf{X}$ принимают П значений по узлам некоторой суперрешетки кристалла с симметрией исходной решетки. Доказательство полноты, ортонормированности и квазистационарности базиса ВФ $|\,\mathbf{X},\ \mathbf{K}\rangle$ аналогично проведенному в [5].

Рассмотрим теперь уравнение для диагональной части МП, которое, согласно [6, 7], в приближении слабого экситон-фононного взаимодействия имеет вид

$$\dot{\rho}_{\mathbf{XK}}(t) = \sum_{\mathbf{YK}'} [W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'}\rho_{\mathbf{YK}'}(t) - W_{\mathbf{YK}',\,\mathbf{XK}}\rho_{\mathbf{XK}}(t)], \tag{2}$$

где диагональная МП $\rho_{\mathbf{XK}} = \langle \mathbf{XK}\,|\,\hat{\rho}\,|\,\mathbf{XK}\rangle$, в роли нелокального ядра интегрального уравнения выступает вероятность перехода между пакетными состояниями $W_{\mathbf{XK}\ \mathbf{YK}'}$. Отметим, что уравнение (2) является частным случаем общего немарковского ККУ (уравнение Паули [7]). Для случая экситон-фононного взаимодействия [3]

$$\hat{H}_{\rm int} = \sum_{\mathbf{kq}s} F_{\mathbf{kq}s} a^{+}_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k+q}} (b^{+}_{\mathbf{q}s} + b_{-\mathbf{q}s}) \tag{3}$$

вероятность рассеяния пакета $|\,\mathbf{X},\ \mathbf{K}\rangle$ на фононе с волновым вектором $\mathbf{q}$ ветви s в квазистационарном приближении [5] выразится как

$$W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{q}s} \Phi_{\mathbf{XY}} \left[N_{\mathbf{q}s}\delta(\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{k+q}} - \omega_{\mathbf{q}s}) + (N_{\mathbf{q}s} + 1)\,\delta(\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{k+q}} + \omega_{\mathbf{q}s})\right], \tag{4}$$

$$\Phi_{\mathbf{XY}} = \left|\sum_{\mathbf{k}} F_{\mathbf{kq}s} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{X}-\mathbf{Y})} \delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}} \delta^{\Pi}_{\mathbf{k+q},\,\mathbf{K}'}\right|^2,$$

$$W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'} = W_{\mathbf{YK}'\mathbf{XK}} e^{\frac{\varepsilon_{k'} - \varepsilon_k}{T}}. \tag{5}$$

Здесь $\omega_{\mathbf{q}s}$ — энергия фонона s-ветви с волновым вектором $\mathbf{q}$; $N_{\mathbf{q}s}$ — фононные числа заполнения; T — температура; $\varepsilon_{\mathbf{k}} = \hbar^2K^2/2m$ — экситонная энергия. Закон сохранения энергии в (4) выражается δ-функцией Дирака. Справедливо следующее свойство пакетных δ^{Π}-функций:

$$\sum_{k_l} e^{ik_lX_l} \delta^{\Pi l}_{k_lK_l} \delta^{\Pi l}_{k_l+q_l,\,K'_l} = \frac{1}{\Delta k_l} \begin{cases} (\Delta K_l - q'_l)\,\delta_{K'_l-K_l,\,Q_l} + q'_l\delta_{K'_l-K_l,\,Q_l+\Delta K_l}, & X_l = 0, \\ \dfrac{i}{X_l}\left(\delta_{K'_l-K_l,\,Q_l+\Delta K_l} - \delta_{K'_l-K_l,\,Q_l}\right)\left(1 - e^{iq'_lX_l}\right), & X_l \neq 0, \end{cases} \tag{6}$$

$$l = 1,\ 2,\ 3$$

где $\mathbf{K}$, $\mathbf{K}'$, $\mathbf{Q}$ пробегают значения в узлах суперрешетки волновых векторов в ЗБ, q' принадлежит области ΔV_l вблизи волнового вектора $\mathbf{Q}$,

[1] В [5] в роли ΔV_l выступали шаровые слои вблизи экситонных изоэнергетических поверхностей.

т. е. $\mathbf{q}=\mathbf{Q}+\mathbf{q}'$. С учетом (6) получаем для вероятности $W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'}$ после перехода от суммирования по $\mathbf{k}$ к интегрированию

$$W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'}=\frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\mathbf{q},\,s}|F_{\mathbf{K},\,\mathbf{Q}s}|^2\,\Phi_{\mathbf{XY}}\left[N_{\mathbf{q}s}\delta\left(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{Q}}-\omega_{\mathbf{q}s}\right)+\right.$$
$$\left.+\left(N_{\mathbf{q}s}+1\right)\delta\left(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{Q}}+\omega_{\mathbf{q}s}\right)\right]. \tag{7}$$

Пространственную зависимость вероятности рассеяния содержит множитель

$$\Phi_{\mathbf{XY}}=\prod_{l=1}^{3}\left[\frac{4\sin^2 q_l'\,(X_l-Y_l)/2}{\Delta K_l^2\,(X_l-Y_l)^2}\left(\delta_{K_l'-K_l,\,Q_l}+\delta_{K_l'-K_l,\,Q_l+\Delta K_l}\right)\right]. \tag{8}$$

Если же, например, $X_1=Y_1$, то вместо квадратной скобки $l=1$ в (8) следует подставить выражение

$$\delta_{K_1'-K_1,\,Q_1}(\Delta K_1-q_1')^2+q_1'^2\delta_{K_1'-K_1,\,Q_1+\Delta K_1}. \tag{9}$$

Формула (7) получена в предположении, что матричный элемент $F_{\mathbf{kq}s}$ слабо изменяется в интервале $k_l-K_l,\ q_l-Q_l\in[0,\ \Delta K_l]$, т. е. объем ΔV_l должен быть достаточно малым. Аналогичное замечание относится к энергиям пакетов. Пренебрежение шириной пакетов в (7), (4), (5) ограничивает пространственное разрешение базиса условием $\Pi\ll N\,(\hbar/\tau E_0)^3$, где E_0 — ширина экситонной зоны, τ — характерное время релаксации. С учетом этого ниже рассматриваются пространственно-квазиравновесные распределения. Обратное характерное время рассеяния на фононе определяется формулой

$$\tau_{\mathbf{K}}^{-1}=\sum_{\mathbf{YK}'}W_{\mathbf{YK}',\,\mathbf{XK}}. \tag{10}$$

Подставляя в (10) соотношение (4) или (7), получаем с учетом (6)

$$\tau_{\mathbf{K}}^{-1}=\frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\mathbf{q}s}|F_{\mathbf{K},\,\mathbf{q}s}|^2\left[N_{\mathbf{q}s}\delta\left(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}}+\omega_{\mathbf{q}s}\right)+\right.$$
$$\left.+\left(N_{\mathbf{q}s}+1\right)\delta\left(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}}-\omega_{\mathbf{q}s}\right)\right]. \tag{11}$$

Выражение (11) совпадает с обратным временем рассеяния экситона на фононах в импульсном представлении $\tau_{\mathbf{k}}^{-1}$ при $\mathbf{k}=\mathbf{K}$.

2. Характер движения экситонных пакетов

МП системы экситонных пакетов можно представить в виде

$$\rho_{\mathbf{XK}}(t)=\xi(\mathbf{X},\ \mathbf{K})\,e^{-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T}, \tag{12}$$

где ξ (X, K) в меру отличия от постоянной определяет неравновесность экситонного распределения. Учитывая принцип детального равновесия (5), получаем уравнение для зависящей от времени функции ξ (X, K)

$$\dot{\xi}_{\mathbf{X},\,\mathbf{K}}=\sum_{\mathbf{YK}'}W_{\mathbf{YK}',\,\mathbf{XK}}\left[\xi(\mathbf{YK}')-\xi(\mathbf{X},\ \mathbf{K})\right]. \tag{13}$$

Далее проводим разложение функции ξ (Y, K′) в правой части (13) в ряд по степеням отклонения Y—X и K′—K

$$\dot{\xi}=\sum_{\mathbf{YK}'}W_{\mathbf{YK}',\mathbf{XK}}\left[(\mathbf{Y}-\mathbf{X})\frac{\partial\xi}{\partial\mathbf{X}}+(K'-K)\frac{\partial\xi}{\partial\mathbf{K}}+\sum_{ij}\frac{\partial^2\xi}{\partial X_i\partial K_j}\times\right.$$
$$\times(X_i-Y_i)(K_j'-K_j)+\frac{1}{2}\sum_{ij}\frac{\partial^2\xi}{\partial X_i\partial X_j}(X_i-Y_i)(X_j-Y_j)+$$

$$+\frac{1}{2}\sum_{ij}\frac{\partial^2\xi}{\partial K_i \partial K_j}(K'_i-K_i)(K'_j-K_j)+\ldots . \tag{14}$$

Здесь и ниже принято обозначение $\xi=\xi(\mathbf{X},\ \mathbf{K})$, индексы $i,\ j=1,\ 2,\ 3$ нумеруют координатные оси. Рассмотрим вначале эволюцию системы пакетов в координатном пространстве. Для простоты рассуждений будем полагать функцию ξ не зависящей от ВВ $\mathbf{K}$, т. е. $\partial\xi/\partial\mathbf{K}=0$. Такое состояние МП может быть задано, например, в начальный момент времени, отбрасываем в правой части (14), кроме того, слагаемые с нечетными степенями Y_i-X_i как малые при всех конечных значениях X. Тогда уравнение для ξ будет содержать только четные порядки производных по координате

$$\dot{\xi}=\sum_{l_1 l_2 l_3=1}^{\infty} M_{2l_1,\,2l_2,\,2l_3}\frac{\partial^{r_0}\xi}{\partial X_1^{2l_1}\partial X_2^{2l_2}\partial X_1^{2l_3}}, \tag{15}$$

$$r_0=2(l_1+l_2+l_3),$$

где моменты пространственного переноса имеют вид

$$M_{\alpha,\beta,\gamma}=\frac{1}{\alpha!\,\beta!\,\gamma!}\sum_{\mathbf{YK}'}W_{\mathbf{YK}',\mathbf{XK}}(Y_1-X_1)^{\alpha}(Y_2-X_2)^{\beta}(Y_3-X_3)^{\gamma}. \tag{16}$$

Явный вид моментов (16) для случая рассеяния на фононах рассчитан в Приложении.

Движение пакетов приобретает диффузионный характер, если в (15) можно ограничиться тремя первыми слагаемыми в правой части. Сравнивая слагаемые $l_i=1$ и $l_i=2$ в (15), получаем с учетом (П. 5) условие диффузионного приближения $6l \gg L$, где $l \sim |\,\xi/(\partial\xi/\partial X)\,|$ — длина градиента МП пакетов. Отсюда можно заключить, что пока градиенты МП велики $l \ll L$, основной вклад в правую часть (15) вносят члены $l_i>1$ и эволюция имеет недиффузионный характер. Диффузионная стадия эволюции наступает, когда длина градиента концентрации экситонных пакетов становится порядка размеров кристалла. Заметим, что величина l инвариантна относительно унитарного преобразования пакетной МП к узельному представлению

$$\rho_{\mathbf{nn}}=\sum_{\mathbf{XK}}C_{\mathbf{n},\,\mathbf{XK}}\rho_{\mathbf{XK}}C_{\mathbf{XK},\,\mathbf{n}}, \tag{17}$$

где матрица преобразования от пакетного базиса к узельному

$$C_{\mathbf{n},\,\mathbf{XK}}=\frac{1}{(\Pi N)^{1/2}}\prod_{i=1}^{3}\frac{1-\cos\Delta K_i(X_i-n_i)}{1-\cos\Delta K_i(X_i-n_i)/\Pi_i}.$$

Рассмотрим теперь характер эволюции экситонной МП в импульсном пространстве. Для этого проведем суммирование по координате $\mathbf{X}$ в обеих частях (13). Тогда для экситонной плотности в импульсном пространстве

$$\sigma(\mathbf{K})=\sum_{\mathbf{X}}\xi/\Pi$$

получаем уравнение

$$\dot{\sigma}(\mathbf{K})=\sum_{\mathbf{K}'}\tau^{-1}(\mathbf{K}',\mathbf{K})[\sigma(\mathbf{K}')-\sigma(\mathbf{K})],$$

$$\tau^{-1}(\mathbf{K}',\ \mathbf{K})=\sum_{\mathbf{X}}W_{\mathbf{YK},\,\mathbf{XK}}. \tag{18}$$

Будем полагать МП близкой к равновесной, поэтому в (18) можно ограничиться первым членом разложения $\sigma(\mathbf{K}')$ в ряд по степеням $\mathbf{K}'-\mathbf{K}$.

Условие справедливости этого приближения $(\partial\sigma/\partial\mathbf{K})^2 \gg |\ \partial^2\sigma/\partial K^2\ |$ будет учитываться при выборе решения получившегося уравнения

$$\dot{\sigma}(\mathbf{K}) = \mathbf{R}(\mathbf{K})\frac{\partial\sigma(\mathbf{K})}{\partial\mathbf{K}},$$

$$\mathbf{R}(\mathbf{K}) = \sum_{\mathbf{K}'}\tau^{-1}(\mathbf{K}',\ \mathbf{K})(\mathbf{K}' - \mathbf{K}). \tag{19}$$

Расчет вектора $\mathbf{R}$ $(\mathbf{K})$ с учетом выражения для τ^{-1} $(\mathbf{K}',\ \mathbf{K})$ (в (11) следует для этого опустить суммирование по $\mathbf{q}$ и положить $\mathbf{q} = \mathbf{K}' - \mathbf{K}$) проводился по формуле

$$\mathbf{R}(\mathbf{K}) = \sum_{\mathbf{q}s}\mathbf{q}\,|F_{\mathbf{K},\,\mathbf{q}s}|^2\,[N_{\mathbf{q}s}\delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}s}) + (N_{\mathbf{q}s}+1)\,\delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{q}s})]. \tag{20}$$

Обозначая выражение под знаком суммы по s в (20) через $\mathbf{R}_s$ $(\mathbf{K})$ в приближении высоких температур $N_{\mathbf{q}s} \approx T/\omega_{\mathbf{q}s} \gg 1$, получаем для акустических фононов $\omega_{\mathbf{q}s} = \hbar v_s q$

$$\mathbf{R}_s^{\text{ак}}(\mathbf{K}) = -\mathbf{R}_s^{\text{ак}}K\mathbf{K},$$

$$R_s^{\text{ак}} = \frac{2F_{\text{ак}}^2 T}{\pi\hbar^4 v_s}. \tag{21}$$

В (21) принято обычное приближение для матричного элемента экситонно-фононного взаимодействия: $V\ |\ F_{\mathbf{K}\mathbf{q}s}\ |^2 \approx qF_{\text{ак}}^2$ [1, 2]. Для оптических фононов, полагая $V\ |\ F_{\mathbf{K}\mathbf{q}s}\ |^2 \approx F_{\text{оп}}^2$ [1, 3], без ограничений на температуру имеем

$$\mathbf{R}_s^{\text{оп}}(\mathbf{K}) = -R_s^{\text{оп}}\mathbf{K},$$

$$R_s^{\text{оп}} = \frac{F_{\text{оп}}^2\,(2m^3\omega_s)^{1/2}}{2\pi^2\hbar^3}N_s,\ \ \omega_s < \Delta. \tag{22}$$

Здесь Δ — ширина экситонной зоны. Уравнение (19) для случая акустических фононов имеет общее решение вида

$$\sigma^{\text{ак}}(\mathbf{K}) = A_0 + \sum_s A_s\Phi_s\left(\frac{1}{K} - R_s^{\text{ак}}\right), \tag{23}$$

где функция Φ из физических соображений должна быть убывающей при $t \to \infty$ и удовлетворять условию нормировки

$$\sum_{\mathbf{K}}\Phi_s\exp(-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T) = 0.$$

При этом A_0 — нормировочный коэффициент равновесной МП. Решение (19) для случая оптических фононов приводит к выражению

$$\sigma^{\text{оп}}(\mathbf{K}) = A_0 + \sum_{s,\,i}\Phi_s\left(\ln\frac{K_i}{\varkappa_{si}} - R_s^{\text{оп}}t\right)A_{si}, \tag{24}$$

где A_{si} и $\varkappa_{si}$ — произвольные постоянные. Общее решение для импульсной МП ρ $(\mathbf{K}) = \sigma$ $(\mathbf{K})$ $\rho^{-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T}$ имеет вид с учетом (23), (24)

$$\rho(\mathbf{K}) = e^{-\frac{\varepsilon(\mathbf{k})}{T}}\left(A_0 + \sum_s A_s\Phi_s^{\text{ак}}\left(\frac{1}{K} + tR_s^{\text{ак}}\right) + \sum_{s,\,i}A_{si}\Phi_s^{\text{оп}}\left(\ln\frac{K_i}{\varkappa_{si}} - tR_s^{\text{оп}}\right)\right). \tag{25}$$

Структура аргумента $\Phi^{\text{ак}}$ указывает на волновой характер изменения $\Phi^{\text{ак}}$ $(1/\mathrm{K} + R_s^{\text{ак}}t)$ в зависимости от t и K. Так, если при $t = 0$ функция $\Phi^{\text{ак}}$ имеет вид системы концентрических минимумов и максимумов, то в следующие моменты времени, убывая по амплитуде, они будут расходиться от центра с возрастающей фазовой скоростью

$$\dot{\mathbf{K}} = R_s^{\text{гк}} K \mathbf{K}. \qquad (26)$$

Таким образом, процесс установления равновесия в однородной системе экситонов, взаимодействующих с акустическими фононами, можно представить в виде наложения концентрических волн плотности в импульсном пространстве, расходящихся от центра с возрастающей скоростью и убывающей амплитудой, на больцмановский фактор $\exp(-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T)$. Вклад оптических фононов в эволюцию, как это следует из последнего слагаемого в (19), имеет вид суперпозиции плоских волн плотности в импульсном пространстве, движущихся вдоль осей с фазовыми скоростями

$$\dot{K}_i = K_i R_s^{\text{оп}}, \qquad (27)$$

и больцмановского фактора. Учет множителя $e^{-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T}$, вообще говоря, существенно усложняет картину движения волн плотности в зависимости от конкретного вида Ф. Так, например, если

$$\Phi_s^{\text{оп}} = e^{-R_s^{\text{оп}} t + \ln \frac{K_i}{\varkappa_{si}}},$$

то после дифференцирования по времени фазы $-R_s^{\text{оп}} t + \ln K_i/\varkappa_{si} - \varepsilon_{K_i}/T$ получаем скорость волны плотности МП $\rho(K_i)$ в виде

$$\dot{K}_i = \frac{K_i R_s^{\text{оп}}}{1 - 2\varepsilon_{K_i}/T}. \qquad (28)$$

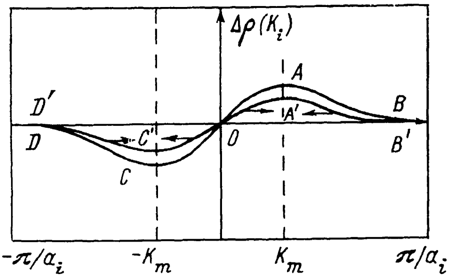

Рис. 1. Движение волн плотности экситонов, обусловленное взаимодействием с оптическими фононами.

Здесь $\Delta\rho(K_i)$ — отклонение МП от равновесной, $K_m = (mT/\hbar^2)^{1/2}$. Стрелками показано направление движения фронтов волн.

Отметим, что выбранная функция Ф удовлетворяет как условию нормировки МП, так и условию малости второй производной $\sigma(\mathbf{K})$. Несложный анализ зависимости $\Phi^{\text{оп}} e^{-\varepsilon_{\mathbf{K}}/T}$ от волнового вектора $\mathbf{K}$ приводит к картине четырех волн, движущихся попарно навстречу друг другу, так что экстремумы плотности МП в импульсном пространстве покоятся.

Учет следующего порядка разложения $\sigma(\mathbf{K}')$ в (18) по степеням $\mathbf{K}'-\mathbf{K}$ привносит характер диффузионного расплывания неоднородностей МП в импульсном пространстве в картину движения волн экситонной плотности. Таким образом, по мере приближения к равновесию, поскольку при этом старшие производные $\sigma(\mathbf{K})$ стремятся к нулю сильнее, чем $\partial\sigma/\partial K_i$, диффузионное расплывание неоднородностей сменяется волновой картиной эволюции.

Объединяя рассмотренные выше предельные случаи, приходим к уравнению квазиравновесной кинетики для $\xi(\mathbf{X}, \mathbf{K})$

$$\dot{\xi} = \sum_i D_{ii}(\mathbf{K}) \frac{\partial^2 \xi}{\partial X_i^2} + \mathbf{R}(\mathbf{K}) \frac{d\xi}{d\mathbf{K}}, \qquad (29)$$

где $D_{ii}(\mathbf{K})$ — тензор диффузии экситонных пакетов, $D_{11}(\mathbf{K}) = M_{2,0,0}$. В случае слабой дисперсии тензора диффузии, когда $D_{ii} = \bar{D}_{ii} + \tilde{D}_{ii}(\mathbf{K})$, где $\tilde{D}_{ii}(\mathbf{K}) \ll \bar{D}$,[2] уравнение (29) может быть решено по теории возмущений

$$\dot{\xi}^{(0)} = \sum_i D_{ii} \frac{\partial^2 \xi}{\partial X_i^2},$$

$$\dot{\xi}^{(1)} = \mathbf{R}(\mathbf{K}) \frac{d\xi^{(1)}}{d\mathbf{K}} + \sum_i \tilde{D}_{ii}(\mathbf{K}) \frac{d^2 \xi^{(0)}}{dX_i^2}.$$

[2] Основания для такого приближения $\tau_{\mathbf{K}} \approx \text{const}$ имеются даже для молекулярных кристаллов типа антрацена с неаналитическими зонами, где процессы неупругого экситон-фононного рассеяния приводят к «изотропизации» $\tau_{\mathbf{K}}$ [8].

Здесь уравнение 0-порядка малости описывает диффузионную эволюцию к равновесию, а уравнение 1-порядка — волновую «рябь» на диффузионном профиле МП, затухающую по мере приближения к равновесию.

Уравнение (2) допускает решение и на малых временах, когда градиенты МП велики ($l \ll L$), однако распределение уже квазиравновесное ($t \gg \tau_{\mathbf{K}}$). Для иллюстрации этого рассмотрим случай, когда в объеме ΔV_0 вблизи поверхности кристалла внешними факторами поддерживается постоянная плотность экситонов $\rho(\mathbf{K})$, тогда как в остальном объеме кристалла плотность экситонов в течение некоторого времени наблюдения $\Delta\tau$ остается много меньше $\rho(\mathbf{K})$

$$\rho_{\mathbf{XK}}(t) = \begin{cases} \rho(\mathbf{K}), & \mathbf{X} \in \Delta V_0, \\ \delta\rho_{\mathbf{K}_z}(t), & \mathbf{X} \overline{\in} \Delta V_0, \end{cases}$$

$$\delta\rho_{\mathbf{K}_z}(t) \ll \rho(\mathbf{K}). \tag{30}$$

Ось z $(i=3)$ будем считать ориентированной перпендикулярно поверхности. Условие на время $\Delta\tau$ было найдено в [5]

$$\Delta\tau \ll \frac{\tau_{\mathbf{K}} V}{\Delta V_0}.$$

Отметим здесь принципиальную особенность релаксации неоднородности экситонной МП в координатном пространстве. В отличие от релаксации в импульсном пространстве, время которой не зависит от характера неоднородности, здесь время релаксации зависит от вида начальной МП. В частности, для распределения (30) $\tau_{\mathbf{K}} \ll \Delta\tau$. Указанная особенность связана, очевидно, с отсутствием постоянной длины пробега пакета, не зависящей от вида МП.

Следуя [5], запишем решение для МП вне области накачки на временах[3] $t \ll \Delta\tau$ для $r \gg Z_0 = \Delta V_0^{1/3}$

$$\delta\rho_{\mathbf{K},r} = \frac{8\pi t}{\hbar \Delta K_3^2 r^2} \sum_{\mathbf{q}s} \tilde{\rho}(\mathbf{K}+\mathbf{q}) \{F_{\text{ак}}^2 q [N_{\mathbf{q}s} \delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}s}) +$$
$$+ (N_{\mathbf{q}s} + 1) \delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{q}s})] + F_{\text{оп}}^2 \times$$
$$\times [N_s \delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} - \omega_s) + (N_s + 1) \delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} + \omega_s)]\}. \tag{31}$$

Здесь экситон-фононное взаимодействие записано в длинноволновом приближении, $\tilde{\rho}(\mathbf{K}+\mathbf{q}) = \rho(\mathbf{K}+\mathbf{q}) Z_0 N_3 / \Pi_3 a_3$ — поверхностная плотность экситонов. Рассмотрим теперь случай, когда возбуждение осуществляется в узкой области волновых векторов $\Delta\varkappa$ вблизи поляритонного узкого горла K_b. Тогда, учитывая, что $\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \approx \varepsilon_{K_b} \approx \omega_0$, получаем в пренебрежении процессами излучения фононов для случая $K \parallel K_b$

$$\delta\rho_{\mathbf{K}r} = \frac{Vt}{\pi^2 \hbar \Delta K_3^2 r^2} \sum_s \left[\bar{\rho} \Delta\Omega \frac{F_{\text{ак}}^2 \varepsilon_{\mathbf{K}}^3}{\hbar \cdot v_s^4} N_{\mathbf{K}} \Theta(K_s - K) + \tilde{n} N_s F_{\text{оп}}^2 \delta(\omega_0 - \varepsilon_{\mathbf{K}} + \omega_s) \right]. \tag{32}$$

Здесь $\Delta\Omega$ — угловые размеры распределения $\rho(\mathbf{K})$; $\bar{\rho}$ — среднее значение поверхностной плотности экситонов; $n = \sum_{\mathbf{q}} \tilde{\rho}(\mathbf{K}+\mathbf{q})$ — поверхностная концентрация экситонов,

$$N_{\mathbf{K}} = [\exp(\varepsilon_{\mathbf{K}}/T) - 1]^{-1},$$

$$K_s = \frac{-mv_s}{\hbar} + \left(\frac{m^2 v_s^2}{\hbar^2} + \frac{2mv_s}{\hbar} (K_b + \Delta\varkappa) \right)^{1/2}.$$

Анализ зависимости от K первого слагаемого в (32) дает колоколообразную кривую с максимумом вблизи $K_m = (3mT/\hbar)^{1/2}$, ограниченную Θ-

---

[3] Заметим, что время $\Delta\tau$ выбором условий эксперимента может быть сделано порядка времени жизни экситонов.

функцией $\Theta(K_s - K)$; оптические фононы дают ряд узких пиков в точках $\varkappa_s = (2m\omega_s/\hbar^2)^{1/2}$.

Таким образом, при выбранном режиме неоднородного возбуждения экситонов заселенность части кристалла вне области накачки обратно пропорциональна квадрату расстояния до возбуждаемой поверхности, ее энергетическая зависимость в точности воспроизводит фононный спектр кристалла и, наконец, она линейно растет со временем.

3. Люминесценция пространственно-неоднородного экситонного распределения

Рассмотрим теперь интенсивность люминесценции не возбужденных при $t=0$ областей кристалла. Согласно поляритонному механизму люминесценции (см., например, [2]), процессы рассеяния с излучением фононов перебрасывают экситоны в область $K < K_b$, т. е. превращают их в фотоны, которые уходят за пределы кристалла. Учитывая, что число экситонов, перебрасываемых в единицу времени в состояние XK ($K < K_b$), равно

$$\sum_{\mathbf{YK}'} W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'}\rho_{\mathbf{YK}'}(t)$$

получаем выражение для интенсивности поляритонной люминесценции из точки X поверхности на частоте $\varepsilon_{\mathbf{K}}/\hbar$

$$I(\mathbf{K},\ \mathbf{X}) = \varepsilon_{\mathbf{K}} T(\varepsilon_{\mathbf{K}}) \sum_{\mathbf{YK}'} W_{\mathbf{XK},\,\mathbf{YK}'}\rho_{\mathbf{YK}'}(t). \tag{33}$$

Коэффициент пропускания экситонной волны $T(\varepsilon_{\mathbf{K}})$ легко рассчитывается для области частот ниже «узкого горла» [9, 10]

$$T(\varepsilon_{\mathbf{K}}) = \frac{T_s + T_p}{2},$$

$$T_p = \frac{4n^2 n_z Z'_p}{(n_z + n^2 Z'_p)^2 + n^4 Z''^2_p},$$

$$T_s = \frac{4Z'_s n_z}{(n_z Z'_s + 1)^2 + n_z^2 Z''^2_s}, \tag{34}$$

где $Z_{s,p} = Z'_{s,p} + iZ''_{s,p}$ — поверхностный импеданс кристалла для s- и p-поляризаций экситонной волны, n — коэффициент преломления нормальной волны на частоте $\varepsilon_{\mathbf{K}}/\hbar$

$$n^2 = \varepsilon_0 + \frac{4\pi\beta\omega_0^2}{\omega_0^2 - \varepsilon_{\mathbf{K}}^2}, \quad \beta = \frac{\hbar^2 e^2 df}{m\omega_0^2},$$

d — плотность кристалла, f — сила осциллятора экситонного перехода, ω_0 — энергия экситонного перехода. Подставляя в (33) распределение (30) и пренебрегая на рассматриваемых временах вкладом в люминесценцию в точке $r \notin \Delta V_0$ заселенности $\delta\rho_{\mathbf{K}r}(t)$ для случая, когда температура много больше ширины «узкого горла», получаем

$$I(\mathbf{K},\ r) = \frac{VT(\varepsilon_{\mathbf{K}})\,\varepsilon_{\mathbf{K}}}{\pi^2\hbar\Delta K_3^2 r^2} \sum_s \Big[\Delta\Omega\tilde{\rho}F^2_{\text{ак}}\varepsilon^3_{\mathbf{K}}(N_{\mathbf{K}}+1)\times$$

$$\times\frac{\Theta(K - K_b + \Delta\varkappa v_s\sqrt{\varepsilon_0}/c)}{\hbar^4 v_s^4} + F^2_{\text{оп}}\tilde{n}(N_s+1)\,\delta(\varepsilon_{\mathbf{K}} + \omega_s - \omega_0)\Big]. \tag{35}$$

Заметим, что в отличие от (32) здесь ненулевой вклад вносят процессы с испусканием фононов. Поскольку в рассматриваемой области частот $T(\varepsilon_{\mathbf{K}})$ плавная функция энергии $\varepsilon_{\mathbf{K}}$, то спектр люминесценции невозбужденной при $t=0$ части кристалла в направлении оси z подобен фононному спектру кристалла со сравнительно широкой акустической полосой вблизи ω_0 и узкими пиками, обусловленными оптическими фононами. Зависимость интенсивности люминесценции от расстояния до возбуждаемой поверхности $\sim 1/r^2$. Отметим, что для волновых векторов узкого горла $I(K_b, X)=0$. Отсутствие излучения на частоте $\omega_0/\hbar$ объясняется равенством нулю коэффициента пропускания излучения границей $T(\omega_0)=0$. Максимум фононного пика, обусловленного тремя акустическими ветвями, лежит вблизи $\tilde{K}_m=2T\sqrt{\varepsilon_0}/c\hbar$. На рассматриваемых временах $t \ll \overline{\Delta\tau}$ интенсивность люминесценции для $r \notin \Delta V_0$ практически не зависит от времени, т. е. она связана с экситонами, из области ΔV_0 «переброшенными» в результате рассеяния на фононе в состояние $|\, r, K_3\rangle$.

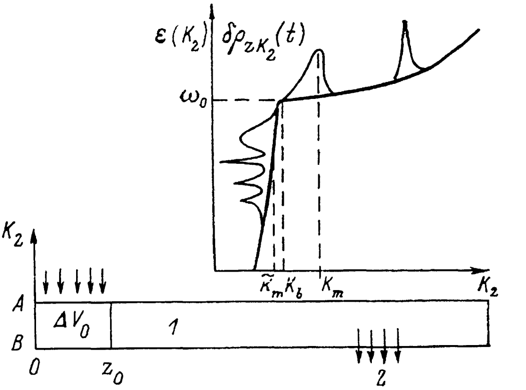

Рис. 2. Люминесценция неоднородной экситонной системы.

Выше энергии возбуждения ω_0 на кривой $\varepsilon(\mathbf{K})$ показана зависимость МП для координат $z \gg z_0$; ниже ω_0 показана примерная зависимость $I(K_2, z)$. *1* — кристалл, *2* — люминесценция.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Рассмотрим сначала выражение

$$M_{2n,0,0}=\sum_{Y_1,\mathbf{K}'}\left(\sum_{Y_2Y_3} W_{\mathbf{XK},\mathbf{YK}'}\right)\frac{(X_1-Y_1)^{2n}}{(2n)!}. \qquad (\text{П. }1)$$

Проведем суммирование по Y_2, Y_3. Запишем для этого с учетом (4), (5)

$$\sum_{Y_2Y_3}\Phi_{\mathbf{XY}}=\sum_{\varkappa,\mathbf{k}}F^*_{\varkappa,\mathbf{q}s}F_{\mathbf{k},\mathbf{q}s}\delta^{\Pi}_{\varkappa\mathbf{k}}\delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}}\delta^{\Pi}_{\varkappa+\mathbf{q},\mathbf{K}'}\delta^{\Pi}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{K}'}\sum_{Y_2,Y_3}e^{i(\mathbf{K}-\varkappa)(\mathbf{X}-\mathbf{Y})}=$$

$$=\sum_{\mathbf{k},\varkappa_1}F^*_{\varkappa,\mathbf{q}s}F_{\mathbf{k},\mathbf{q}s}\delta_{\varkappa_2K_2}\delta_{\varkappa_3K_3}\delta^{\Pi}_{\mathbf{kK}}\delta^{\Pi_1}_{\varkappa_1K_1}\delta^{\Pi}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{K}'}\delta^{\Pi_1}_{\varkappa_1+q_1,K_1'}e^{i(\varkappa_1-K_1)(Y_1-X_1)}. \qquad (\text{П. }2)$$

Принимая во внимание свойство пакетных δ-символов (6), проводим суммирование в (П. 2) по $\mathbf{k}$, $\varkappa_1$

$$\sum_{Y_2,Y_3}\Phi_{\mathbf{XY}}=\frac{V}{(2\pi)^3\,\Pi}\,|F_{\mathbf{K},\mathbf{Q}s}|^2\prod_{l=2}^{3}\left[(\Delta K_l-q_l')\,\delta_{K_l'-K_l,Q_l}+\delta_{K_l'-K_l,Q_l+\Delta K_l}q_l'\right]\times$$

$$\times\begin{cases}(\Delta K_1-q_1')\,\delta_{K_1'-K_1,Q_1}+\delta_{K_1'-K_1,Q_1+\Delta K_1}q_1', & X_1=Y_1,\\ 2\,(1-\cos q_1'(X_1-Y_1))\left(\delta_{K_1'-K_1,Q_1}+\delta_{K_1'-K_1,Q_1+\Delta K_1}\right)/(X_1-Y_1)^2, & X_1\neq Y_1.\end{cases} \qquad (\text{П. }3)$$

Здесь, как и ранее, предполагалось, что функция $F_{\mathbf{k},\mathbf{q}s}$ слабо меняется в пределах объема ΔV_l. Подставляя (П. 3) в (П. 1) и интегрируя с учетом (4) по q_l' в пределах от 0 до ΔK_l, получаем

$$\sum_{Y_2Y_3}W_{\mathbf{XK},\mathbf{YK}'}=\Pi\sum_{\mathbf{Q}s}|F_{\mathbf{K},\mathbf{Q}s}|^2\prod_{l=1}^{3}\left(\delta_{K_l'-K_l,Q_l}+\delta_{K_l'-K_l,Q_l+\Delta K_l}\right)\times$$

$$\times\left[(N_{\mathbf{Q}s}+1)\,\delta(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{Q}}+\omega_{\mathbf{q}s})+N_{\mathbf{q}s}\delta(\varepsilon_{\mathbf{K}}-\varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{Q}}-\omega_{\mathbf{q}s})\right]\times$$

$$\times\begin{cases}1/12, & X_1=Y_1,\\ 1/2\Delta K_1^2(X_1-Y_1)^2, & X_1\neq Y_1.\end{cases} \qquad (\text{П. }4)$$

Суммирование (П. 4) по $\mathbf{K}'$ дает коэффициент 8 вместо $\prod_{l=1}^{3}$.... Таким образом, для определения $M_{2n,\,0,\,0}$ следует вычислить

$$\sum_{Y_1}(X_1-Y_1)^{2n-2}\approx\sum_{Y_1}Y_1^{2n-2}=\begin{cases}\dfrac{\Delta K_1}{12}, & n=0,\\[2mm] \dfrac{\Pi_1 L_1^{2n-2}}{2n-1}, & n>0.\end{cases} \qquad (\text{П. }5)$$

Отсюда получаем искомое соотношение для $M_{2n,\,0,\,0}$

$$M_{2n,0,0}=\tau_{\mathbf{K}}^{-1}\,\frac{L_1^{2n}}{\pi^2\Pi_1\,(2n-1)\,(2n)\,!}\,. \qquad (\text{П. }6)$$

В общем случае имеем

$$M_{\alpha,\beta,\gamma}=\tau_{\mathbf{K}}^{-1}\,\frac{L_1^{\alpha}L_2^{\beta}L_3^{\gamma}}{\pi^6\Pi\,(\alpha-1)\,(\beta-1)\,(\gamma-1)\,\alpha\,!\,\beta\,!\,\gamma\,!}\,. \qquad (\text{П. }7)$$

Список литературы

[1] Агранович В. М. Теория экситонов. М.: Наука, 1968.
[2] Агранович В. М., Галанин М. Д. Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах. М.: Наука, 1978.
[3] Давыдов А. С. Теория твердого тела. М.: Наука, 1976.
[4] Глушко Е. Я. // Деп. ВИНИТИ. № 4746- 80.
[5] Глушко Е. Я. // УФЖ. 1981. Т. 26. С. 2037—2043; Phys. Stat. Sol. (b). 1982. V. 114. P. 685—694.
[6] Kenkre V. M., Knox R. S. // Phys. Rev. 1974. V. B9. P. 5279—5290.
[7] Zwanzig R. // Physica. 1964. V. 30. P. 1109—1128.
[8] Глушко Е. Я., Ефремов Н. А. // Препринт ИСАН СССР. 1984. № 1. С. 46.
[9] Агранович В. М., Глушко Е. Я., Мальшуков А. Г. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 2. С. 534—538.
[10] Глушко Е. Я. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 3. С. 854—861.

Криворожский государственный
педагогический институт

Поступило в Редакцию
5 ноября 1990 г.
В окончательной редакции
9 апреля 1991 г.