

## НЕРАВНОВЕСНАЯ БОЗЕ-КОНДЕНСАЦИЯ ПОЛЯРИТОНОВ В МАКРОЗАПОЛНЕННУЮ МОДУ В КРИСТАЛЛАХ $\text{HgI}_2$ , $\text{PbI}_2$

*М.С.Бродин, В.Н.Кадан, М.Г.Мацко*

Обнаружена и изучена перестройка низкотемпературных спектров люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$  и  $4\text{H} - \text{PbI}_2$ , индуцированная интенсивным лазерным излучением. Характер перестройки указывает на наличие процессов неравновесной бозе-конденсации, проявляющейся в активном поглощении внеконденсатных поляритонов макрозаполненной модой.

Вопросам распространения интенсивной поляритонной волны или макрозаполненной поляритонной моды (МПМ) в резонансной области кристаллов ниже дна экситонной зоны посвящен ряд теоретических работ <sup>1-3</sup>. Индуцируемое МПМ активное поглощение антистоксовых поляритонов их авторы связывают с неравновесной бозе-конденсацией. В настоящей работе сообщается о первом экспериментальном наблюдении такой бозе-конденсации поляритонов (кристаллы  $\text{HgI}_2$  и  $4\text{H} - \text{PbI}_2$ ).

Сущность проведенного эксперимента заключалась в регистрации изменений спектра люминесценции кристалла, возбуждаемого в область экситонного поглощения лазером на красителе (лазер 1), возникающих в присутствии излучения лазера 2 в области прозрачности ниже дна экситонной зоны. Оба перестраиваемых лазера (1 и 2) идентичной конструкции со спектральной шириной линии 0,4 – 0,7 мэВ одновременно накачивались расщепленным пучком  $\text{N}_2$ -лазера мощностью 500 кВт в импульсе с длительностью 8 нс и частотой пов-

торения 10 Гц. Излучение лазеров 1 и 2 фокусировалось в одну точку на поверхности кристалла, температура которого могла регулироваться в диапазоне 4,2 – 60 К. Временное совпадение импульсов излучения лазеров 1 и 2 обеспечивалось равенством оптических путей. Люминесцентные спектры регистрировались с помощью дифракционного спектрографа PGS-2.

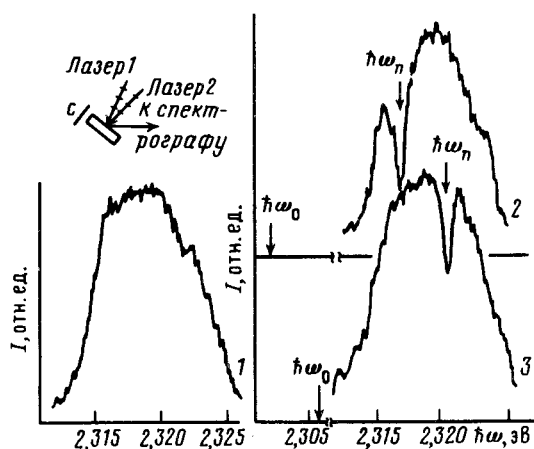


Рис. 1

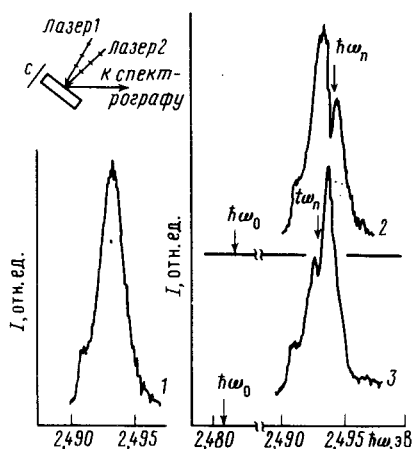


Рис. 2

Рис. 1. Спектры люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$  при 4,2 К: 1 – без МПМ, 2 –  $\hbar\omega_0 = 2,3020$  эВ, 3 –  $\hbar\omega_0 = 2,3060$  эВ

Рис. 2. Спектры люминесценции кристаллов  $4\text{H} - \text{PbI}_2$  при 4,2 К: 1 – без МПМ; 2 –  $\hbar\omega_0 = 2,4817$  эВ; 3 –  $\hbar\omega_0 = 2,4810$  эВ

Измерения выполнялись в два этапа. На первом этапе температура кристаллов составляла 4,2 К. Геометрия опытов изображена на вставках к рис. 1 и рис. 2. Энергия квантов лазера 1  $\hbar\omega$  не изменялась в процессе измерений и для  $\text{HgI}_2$  составляла 2,350 эВ при плотности мощности возбуждения  $I = 100$  кВт/см<sup>2</sup>. Возникающая при этом широкая люминесцентная полоса обеспечивала зондирующее излучение со сплошным спектром в диапазоне 2,314 – 2,325 эВ ниже уровня поперечного экситона  $\hbar\omega_T = 2,3348$  эВ (см. рис. 1 (1)). МПМ создавалась излучением лазера 2 с  $I_0 = 100$  кВт/см<sup>2</sup> в области прозрачности кристалла длинноволнее полосы люминесценции. На рис. 1 (2, 3) приведены два спектра, полученные в отличие от рис. 1 (1), в присутствии МПМ с различными  $\hbar\omega_0$ . Следует особое внимание уделить тому факту, что в присутствии МПМ в зондирующем люминесцентном спектре возникает узкий интенсивный ( $\sim 50\%$ ) провал перепоглощения с энергией  $\hbar\omega_{\text{п}}$ , расположенный в антистоксовой области относительно  $\hbar\omega_0$ . При перестройке  $\hbar\omega_0$  от 2,300 до 2,310 эВ провал, без изменения формы, линейно смещается в ту же сторону в пределах полосы люминесценции, отслеживая изменение  $\hbar\omega_0$ . Интервал  $\hbar\omega_{\text{п}} - \hbar\omega_0$  при этом остается неизменным и равным 14,6 мэВ, т. е. энергии оптического фонона симметрии  $A_{1g}$ .

Для кристаллов  $4\text{H} - \text{PbI}_2$  ( $\hbar\omega_T = 2,5079$  эВ) получены аналогичные результаты. Здесь  $I = I_0 = 100$  кВт/см<sup>2</sup>,  $\hbar\omega = 2,528$  эВ.  $\hbar\omega_0$  изменялась в пределах 2,479 – 2,483 эВ. На рис. 2 приведены три люминесцентных спектра для двух различных  $\hbar\omega_0$  (кривые 2 и 3) и без участия лазера 2 (кривая 1). Интервал  $\hbar\omega_{\text{п}} - \hbar\omega_0$  в данном случае не зависит от  $\hbar\omega_0$ , однако равен 11,8 мэВ, т. е. энергии наиболее КР-активного фонона симметрии  $A_1$ . Ширина провалов составляла 0,5 – 0,7 мэВ для  $\text{HgI}_2$  и 0,4 мэВ для  $4\text{H} - \text{PbI}_2$  и не превышала спектральной ширины линии лазера 2. При увеличении мощности возбуждения до 200 кВт/см<sup>2</sup> ( $\text{HgI}_2$ ) и до 400 кВт/см<sup>2</sup> ( $4\text{H} - \text{PbI}_2$ ) изменения ширины провалов не обнаружено.

Особенности наблюдаемых полос перепоглощения достаточно хорошо интерпретируются с точки зрения теории, развитой в работах <sup>1-3</sup>. Действительно, рассмотренная в них фоно-

ритонная перестройка спектров поляритонов и оптических фононов в антистоксовой области МПМ предполагает уже на своем начальном этапе увеличение вероятности индуцированного комбинационного рассеяния поляритонов из антистоксовой области в МПМ. Авторы показали, что такое поглощение антистоксовых поляритонов макрозаполненной модой является одним из возможных механизмов реализации неравновесной бозе-конденсации поляритонов.

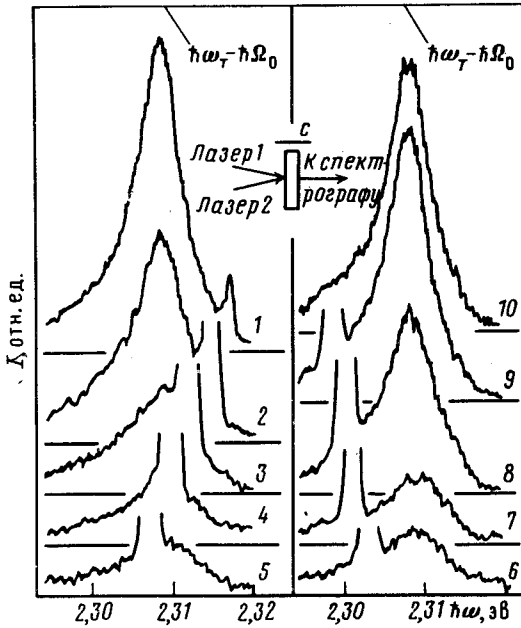


Рис. 3. Спектры поляритонной люминесценции кристаллов  $\text{HgI}_2$  при 55 К для различных величин  $\hbar\omega_0$  (эВ): 1 – 2,3167; 2 – 2,3146; 3 – 2,3188; 4 – 2,3096; 5 – 2,3071; 6 – 2,3025; 7 – 2,3009; 8 – 2,2997; 9 – 2,2982; 10 – без МПМ.  $\hbar\omega_T - \hbar\Omega_0 = 2,309$  эВ

Обратимся снова к рис. 1 и рис. 2. С учетом результатов работ <sup>1-3</sup> становится очевидным, что возникающие в присутствии МПМ узкие провалы соответствуют рассмотренным в указанных работах индуцированным переходам поляритонов в МПМ с участием оптических фононов. Наблюдаемая перекачка определенной части поляритонов из области провала зондирующей люминесцентной полосы в МПМ означает их неравновесную бозе-конденсацию<sup>1)</sup>.

Помимо формирования провалов, неравновесная бозе-конденсация может существенно изменить и сам характер спектра поляритонной люминесценции. Такая возможность была нами исследована на кристаллах  $\text{HgI}_2$ . Возбуждение осуществлялось лазером 1 в область экситонного поглощения,  $\hbar\omega = 2,338$  эВ,  $I = I_0 = 100$  кВт/см<sup>2</sup>. Чтобы обеспечить термализованный характер поляритонной люминесценции температура была повышена до 55 К. Действительно, возникающая в таких условиях единственная люминесцентная полоса является фоннным повторением термализованных поляритонов НПВ на фононе  $A_{1g}$  с  $\hbar\Omega_0 = 14,6$  мэВ (см. рис. 3(10)). В данном случае  $\hbar\omega_0$  сканировалась вблизи указанного фоннного повторения. Следовательно, область индуцированных переходов антистоксовых поляритонов в МПМ была близка к "бутылочному горлу" НПВ, где концентрация поляритонов максимальна. Трансформация люминесцентных спектров при перестройке  $\hbar\omega_0$  от 2,298 до 2,316 эВ показана на рис. 3. Если положение МПМ удовлетворяет условию  $\hbar\omega_0 \approx \hbar\omega_T - \hbar\Omega_0$ , то наблюдается резкое уменьшение интенсивности люминесцентной полосы. По нашему мнению, оно отражает уменьшение концентрации поляритонов "бутылочного горла" за счет индуцированных переходов в МПМ, т. е. неравновесной бозе-конденсации. Перекрытие излучения лазера 2, т. е. изъятие МПМ приводит к восстановлению интенсивности фоннного повторения поляритонов НПВ до исходного уровня (рис. 3(10)).

<sup>1)</sup> Ранее в работе <sup>4</sup> провал перепоглощения в люминесцентном спектре связывался с равновесной бозе-конденсацией экситонов. Однако, впоследствии сообщение было опровергнуто теми же авторами <sup>5</sup>.

В заключение отметим, что в наших экспериментах имел место лишь начальный этап фотонной перестройки. На этом этапе ширина области перестройки  $\Delta_{p-k_0}$  мала по сравнению с шириной лазерной линии. В таких условиях предсказываемое в работах <sup>1-3</sup> уширение полосы индуцированного поглощения с ростом  $I_0$  не может быть экспериментально зарегистрировано.

Авторы благодарны Б.С.Днепровскому и А.Л.Иванову за полезные замечания, высказанные в ходе обсуждения работы.

#### Литература

1. Иванов А.Л., Келдыш Л.В. ЖЭТФ, 1983, 84, 404.
2. Иванов А.Л. ДАН СССР, 1985, 283, 99.
3. Иванов А.Л. ЖЭТФ, 1986, 90, 158.
4. Goto T., Anzai T., Ueta M. J. Phys. Soc. Japan, 1973, 35, 940.
5. Anzai T., Goto T., Ueta M. J. Phys. Soc. Japan, 1975, 38, p. 774.

Институт физики  
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию  
19 января 1987 г.