

ВЛИЯНИЕ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НА СПЕКТР ЭКСИТОНОВ  
В ОДНОМЕРНЫХ И ДВУМЕРНЫХ КРИСТАЛЛАХ

В.М.Агранович, О.А.Дубовский

В трехмерных кристаллах волновой вектор при взаимодействии экситонов с фотонами с точностью до целочисленного вектора обратной решетки полностью сохраняется. Поэтому учет запаздывающего взаимодействия в таких кристаллах приводит к новым состояниям — нормальным электромагнитным волнам, которые являются незатухающими, если не принят во внимание ангармонизм (см., например [1], § 8, а также [2-4]). Естественно, что тензор диэлектрической проницаемости при этом остается вещественным [5].

В отличие от трехмерных кристаллов учет запаздывающего взаимодействия в одномерных и двумерных периодических структурах приводит в спектрах экситонов к ряду особенностей. Это обстоятельство связано с тем, что в одномерных и двумерных кристаллах при взаимодействии фотонов с экситонами сохраняется, с точностью до целочисленного вектора обратной решетки, соответственно либо только одна, либо только две проекции волнового вектора.

Рассмотрим ниже вопрос более подробно <sup>1)</sup>. Используя кулоновскую калибровку векторного потенциала и следуя [4], гамильтониан системы экситоны плюс поле поперечных фотонов представим в виде:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{кхл}} + \hat{H}_L + \hat{H}_{\text{вз}}, \quad (I)$$

где

$$\hat{H}_{\text{кхл}} = \sum_{\vec{k}, \mu} E_{\mu}(\vec{k}) \hat{B}_{\mu}^*(\vec{k}) \hat{B}_{\mu}(\vec{k}) \quad (2)$$

- гамильтониан экситонов, отвечающий полному учету кулоновского взаимодействия,

$$\hat{H}_1 = \sum_{\vec{q}} \hbar \omega c \hat{a}_j^*(\vec{q}) \hat{a}_j(\vec{q}) \quad (3)$$

- гамильтониан поля поперечных фотонов, и

$$\hat{H}_{\text{вз}} = - \sum_{\vec{\kappa}} \frac{e}{mc} \hat{A}(\vec{\kappa}) \hat{I}(\vec{\kappa}) \quad (4)$$

- основной член в операторе экситон-фотонного взаимодействия. В соотношениях (2) и (3)  $E_{\mu}(\vec{k})$  - энергия экситона с волновым вектором  $\vec{k}$  в зоне  $\mu$ ,  $\hat{B}_{\mu}^*(\vec{k})$ ,  $\hat{B}_{\mu}(\vec{k})$  и  $\hat{a}_j^*(\vec{q})$ ,  $\hat{a}_j(\vec{q})$  - бозе-амплитуды рождения и уничтожения, соответственно, экситонов и фотонов,  $\vec{q}$  - волновой вектор фотона,  $j = 1, 2$  - его поляризация. В соотношении (4)  $\hat{A}(\vec{\kappa})$  - оператор векторного потенциала,  $\hat{I}(\vec{\kappa})$  - оператор импульса электронов молекулы  $\vec{\kappa}$ . Если волновой вектор фотона  $\vec{q}$  представить в виде суммы  $\vec{q} = \vec{q}_{\parallel} + \vec{q}_{\perp}$ , где  $(\vec{q}_{\parallel}, \vec{q}_{\perp}) = 0$ , причем компонента  $\vec{q}_{\perp}$  перпендикулярна волновым векторам экситона, то в представлении вторичного квантования оператор (4) может быть (см. также [4]) приведен к виду (несущественными здесь процессами типа процессов переброса пренебрегаем):

$$\hat{H}_{\text{вз}} = \sum_{j, \mu, \vec{q}} T_{j\mu}(\vec{q}) \hat{a}_j(\vec{q}) [\hat{B}_{\mu}(-\vec{q}_{\parallel}) - \hat{B}_{\mu}^*(\vec{q}_{\parallel})] + \text{з.с.}, \quad (5)$$

$$T_{j\mu}(\vec{q}) = i (2\pi N / V \hbar c q)^{1/2} E_{\mu}(\vec{q}_{\parallel}) (\vec{e}_j(\vec{q}) \vec{P}_{\mu}(\vec{q}_{\parallel})), \quad (5a)$$

где  $N$  - число молекул в объеме цикличности кристалла ( $N = N_1$ ,  $N = N_1 N_2$  - для одномерного или плоского кристалла соответственно),  $V$  - объем цикличности для фотонов  $V = N_1 N_2 N_3 d^3$ ,  $d$  - постоянная решетки,  $\vec{e}_j(\vec{q})$  - орт поляризации фотона ( $j, \vec{q}$ ),  $\vec{P}_{\mu}(\vec{q}_{\parallel})$  - матричный элемент оператора дипольного момента перехода из основного состояния в экситонное ( $\mu, \vec{q}_{\parallel}$ ), Соотношение (5a) справедливо лишь при

$q < 1/d$ . Если же  $q > 1/d$ , то  $T_{j\mu}(\vec{q}) \rightarrow 0$  (см. [4]). Поэтому ниже в (5) при суммировании ограничимся областью  $q \leq q_0 \approx 1/d$ . Оператор (5) приводит к процессам превращения экситона в фотоны и обратно с сохранением компоненты волнового вектора  $\vec{q}_{||}$ . Если сплошной линией обозначить гриновскую функцию экситона, а волнистой — гриновскую функцию фотона, то, очевидно, ряд теории возмущений для гриновской функции экситона имеет вид:

$$\underline{\vec{k}, \omega} = \underline{\vec{k}, \omega} + \underline{\vec{k}, \omega} \underline{\vec{k} + \vec{q}, \omega} \underline{\vec{k}, \omega} + \dots = \underline{\vec{k}, \omega} + \underline{\vec{k}, \omega} \underline{\vec{k} + \vec{q}, \omega} \underline{\vec{k}, \omega} \quad (6)$$

Здесь точки обозначают вершинную часть в нулевом приближении.

Решая это уравнение относительно групповой функции экситона, находим, что ее полюса определяются уравнением:

$$\varepsilon^2 - E_{\mu}^2(\vec{k}) = \sum_{j\mu} 4\hbar c q E_{\mu}(\vec{k}) |T_{j\mu}(\vec{q})|^2 (\varepsilon^2 - \hbar^2 c^2 q^2)^{-1}. \quad (7)$$

Для линейной цепочки это уравнение имеет следующий вид:

$$E_{\mu}^2(\vec{k}) - \varepsilon^2 = A(\vec{k}) \int_0^{\theta} \frac{dx}{x-a} \left[ 1 - \frac{k^2 \cos^2 \theta + \frac{x}{2} \sin^2 \theta}{k^2 + x} \right], \quad (8)$$

где

$$A(\vec{k}) = \frac{8\pi^2 E_{\mu}^3(\vec{k})}{d\hbar^3 c^3} |\vec{p}_{\mu}(\vec{k})|^2, \quad a \equiv \frac{\varepsilon^2 - \hbar^2 c^2 k^2}{\hbar^2 c^2}. \quad (9)$$

Поскольку величина  $A$  пропорциональна  $|\vec{p}_{\mu}(\vec{k})|^2$ , ясно, что роль запаздывания может быть существенной лишь для достаточно интенсивных дипольных переходов. Если, например,  $E_{\mu} \approx 5 \text{ эВ}$ ,  $|\vec{p}_{\mu}| \approx e \cdot 10^{-8} \text{ см}$ ,  $d \approx 5 \cdot 10^{-8} \text{ см}$ , то  $A \approx 1 \text{ (эВ)}^2$ .

Решения уравнения (8) являются, вообще говоря, комплексными:

$\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$ . В этой области спектра, где  $|\varepsilon''| < \varepsilon'$ ,

$$\frac{1}{x-a} = \mathcal{P} \frac{1}{x-a} + i\pi \delta(x-a).$$

Пренебрегая в первом приближении затуханием и производя интегрирование в (8) в смысле главного значения, находим при  $k \ll \ll q_0$ ,  $|a| \ll q_0$  следующее уравнение для  $\varepsilon'(\vec{k})$ :

$$E_{\mu}^2(\vec{k}) - (\varepsilon')^2 = \frac{A}{2} \left\{ (1 + \cos^2 \theta) \ln \left| \frac{\hbar^2 c^2 q_0^2}{(\varepsilon')^2 - \hbar^2 c^2 k^2} \right| + \frac{1 - 3\cos^2 \theta}{(\varepsilon')^2} \hbar^2 c^2 k^2 \ln \left| \frac{k^2}{a} \right| \right\}. \quad (10)$$

Здесь  $\theta$  - угол между вектором  $\vec{P}_M(\vec{k})$  и осью цепочки.

Решение этого уравнения схематически представлено на рис. 1. Для величины  $\varepsilon''(\vec{k})$  получаем, что при  $\varepsilon'(\vec{k}) > \hbar k c$

$$\varepsilon''(\vec{k}) = \frac{A}{2\varepsilon'} \left[ 1 - \frac{k^2 \cos \theta + \frac{a}{2} \sin^2 \theta}{k^2 + a} \right] \quad (\text{II})$$

и  $\varepsilon''(\vec{k}) = 0$  при  $\varepsilon'(\vec{k}) < \hbar k c$ . Таким образом состояния нижней ветви рис. 1 не затухают, тогда как состояния верхней обладают значительной радиационной шириной. Крестиком на рис. 1 обозначена условно граница спектра: здесь  $|\varepsilon''| \approx \varepsilon'$ . При  $k \rightarrow 0$   $\varepsilon'' \approx \frac{A}{2\varepsilon'}$ , и если  $A = 1$  (эв)<sup>2</sup>,  $\varepsilon' = 5$  эв, то  $\varepsilon'' \approx 0,1$  эв.

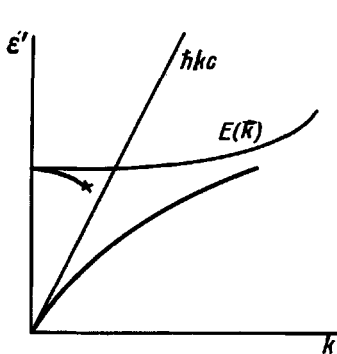


Рис. 1

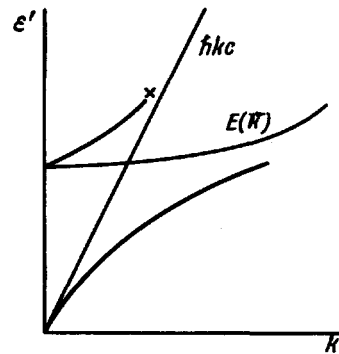


Рис. 2

Аналогично может быть рассмотрен случай плоского кристалла. Полагая, ради простоты, что вектор  $\vec{P}_M(0)$  перпендикулярен плоскости кристалла, находим, что при  $k \ll q_0$  уравнение для  $\varepsilon'$  имеет следующий вид:

$$E_M^2(\vec{k}) - (\varepsilon')^2 = B \frac{\hbar^2 k^2 c^2}{(\varepsilon')^2} \left\{ \int_0^{\frac{q_0}{k}} \frac{dq_1}{q_1^2 - a} - \frac{\pi}{2k} \right\}, \quad (\text{I2})$$

где

$$B = 8E_M^3(\vec{k}) \left| \vec{P}_M(0) \right|^2 / d^2 \hbar^2 c^2.$$

В то же время

$$|\varepsilon''| = B \hbar^2 k^2 c^2 / 2 (\varepsilon'(\vec{k}))^3 (a)^{1/2}, \quad (\text{I3})$$

если  $\varepsilon'(\vec{k}) > \hbar k c$  (верхняя ветвь спектра), и  $\varepsilon''(\vec{k}) = 0$ , если  $\varepsilon'(\vec{k}) < \hbar k c$  (нижняя ветвь спектра). Зависимость  $\varepsilon'(\vec{k})$  представлена на рис. 2. Для верхней ветви спектра с большой точностью

$$\varepsilon'(\vec{k}) \approx E_{\mu}(\vec{k}) \left[ 1 + \frac{k}{k'} \right], \quad (14)$$

где  $\tilde{k} = 4E_{\mu}^2 / \pi V k^2 c^2$ . Экситоны этой ветви обладают сравнительно большой групповой скоростью  $v \approx \frac{E_{\mu}(0)}{\hbar k} \approx 10^7 + 10^8 \frac{\text{см}}{\text{сек}}$  и должны слабо взаимодействовать с колебаниями решетки. Крестиком на рис.2 обозначена граница спектра. Здесь затухание элементарных возбуждений, обусловленное возможностью испустить фотон, становится слишком большим ( $|\varepsilon''| \sim \varepsilon'$ ).

Описанные выше особенности спектров могут иметь место, если неопределенность волнового вектора, связанная с конечностью кристалла, меньше волнового вектора  $k \sim E_{\mu} / \hbar c$ , в окрестности которого запаздывание существенно. Отсюда следует, что эффекты запаздывания могут иметь место, если размер кристаллов превышает длину волны  $\lambda = \hbar c / E_{\mu}$ . Экситоны в таких кристаллах должны иметь время жизни  $\sim 10^{-13} + 10^{-15}$  сек, что можно было бы заметить по времени затухания люминесценции, форме линий поглощения и испускания и т.д. Стоксово смещение линий в таких системах должно практически отсутствовать.

Авторы выражают благодарность Ю.М.Кагану за дискуссии, а также за возможность ознакомиться с работой [6] до ее опубликования. Авторы благодарны также А.С.Давыдову и Л.Н.Овандеру за обсуждение работы.

Поступило в редакцию

6 февраля 1966 г.

#### Литература

- [1] М.Борн, Хуан Кунь. Динамическая теория кристаллических решеток, Изд. иностр.лит., 1958.
- [2] U.Fano. Phys.Rev., 103, 1202, 1956.
- [3] J.J.Hopfield. Phys.Rev., 112, 1555, 1958.
- [4] В.М.Агранович. ЖЭТФ, 37, 430, 1959.
- [5] В.М.Агранович, Ю.В.Конобеев. Физ.твердого тела, 5, 2544, 1963.

[6] К.М.Каган, А.М.Афанасьев. ЕЭТФ, 50, 271, 1966.

[7] М.И.Подгорещкий, И.И.Ройзен, ЕЭТФ, 39, 1473, 1960.

---

Г) Радиационная ширина возбужденных состояний ядер в одномерных и плоских структурах рассматривался в ряде работ [6,7].