

В. ФЕДОСЕЕВ

К ТЕОРИИ ОДНОФОННЫХ ПОЛОС В СПЕКТРАХ ПОГЛОЩЕНИЯ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ЭКСИТОНОВ ВАНЬЕ-МОТТА

Введение

У многих полупроводниковых соединений спектр поглощения в области возбуждения нижнего состояния экситона Ванье-Мотта состоит из резонансной линии и боковых полос, обязанных рождению экситона с одновременным рождением или уничтожением оптического фонона [1-8]. В спектрах экситонной люминесценции таких соединений также обычно содержатся полосы, соответствующие аннигиляции экситона, сопровождающейся рождением одного или нескольких оптических фононов [9, 10].

При теоретическом анализе формы и интенсивности боковых полос обычно считается, что за взаимодействие экситона с оптическими фононами отвечаетея фрёлиховский (поляризационный) механизм [11-15]. Нужно заметить, что взаимодействие заряженных частиц (электрона и дырки) с полем поляризационных колебаний значительно перестраивает энергетический спектр отдельных частиц и внутреннюю структуру их связанных состояний, т. е. экситона («поляронные эффекты»). Эта перестройка особенно велика для мелких экситонных уровней. В свою очередь поглощение и люминесценция в области фононных повторений сильно зависят от внутренней структуры экситона. Поэтому последовательная теория экситонных переходов, сопровождающихся рождением или уничтожением оптических (поляризационных) фононов, должна корректно учитывать «поляронные эффекты».

Виртуальные переходы через верхние возбужденные состояния экситона, включая состояния непрерывного спектра, также должны приниматься во внимание при анализе фононных повторений в спектрах поглощения и люминесценции экситонов. Такие переходы впервые были рассмотрены в работах Б. Сегалла [11, 13], который использовал теорию возмущений и метод функций Грина.

Оказывается, что учет всех виртуальных уровней экситона и «поляронных эффектов» автоматически происходит при использовании метода канонического преобразования [16], «очищающего» некоторый экситонный уровень от взаимодействия с фононами. Такое каноническое преобразование приводит к появлению в гамильтониане экситон-фотонного взаимодействия членов, содержащих операторы рождения и уничтожения фононов*, которые и определяют спектр поглощения (излучения) в области фононных повторений.

В настоящей работе с помощью канонического преобразования проанализируем однофононные повторения в антистоксовой области погло-

* Эти члены аналогичны членам, описывающим отклонение от приближения Кондона в теории примесных центров [17].

щения и в стоковой области люминесценции 1S-экситона при низких температурах. При анализе будут учтены «одноцентровые» и «двухцентровые» переходы.

Используемая модель

Представим полный гамильтониан H кристалла и электромагнитного поля в виде суммы трех частей: электронно-колебательного гамильтониана H_0 , гамильтониана поля поперечных фотонов H_R и гамильтониана взаимодействия электромагнитного поля с кристаллом H_{eR}

$$H = H_0 + H_R + H_{eR}. \quad (1)$$

Здесь H_0 равен сумме электронно-дырочного гамильтониана H_e , колебательного гамильтониана H_L и гамильтониана взаимодействия заряженных частиц с поляризационными колебаниями H_{eL}

$$H_0 = H_e + H_L + H_{eL}. \quad (2)$$

Будем учитывать одну зону проводимости и одну валентную зону, параболические при малых волновых векторах электрона и дырки \mathbf{k} . Предположим, что дно зоны проводимости и потолок валентной зоны находятся в точке $\mathbf{k} = 0$. Зоны характеризуются эффективными массами «голых» частиц — электрона m_e и дырки m_h и энергетическим расстоянием между потолком валентной зоны и дном зоны проводимости Δ_g (ширина запрещенной зоны).

В простейшем случае можно считать, что электрон и дырка взаимодействуют между собой по кулоновскому закону с учетом статической электронной поляризуемости и с одной ветвью поляризационных колебаний по закону Фрелиха [18]. В такой модели, как следует из работы [16], при исследовании мелких экситонных уровней H_e удобно разбить на две части, включив в электронно-дырочный гамильтониан «нулевого порядка» важнейшие «поляронные эффекты» — перенормировку масс электрона и дырки и статическое экранирование зарядов решеткой. Тогда в первом приближении внутреннее состояние электронно-дырочной пары будет описываться водородоподобной функцией $\Psi_{\lambda\gamma}(\mathbf{r})$ (λ — главное квантовое число, γ — совокупность орбитального (l) и магнитного (m) квантовых чисел, \mathbf{r} — радиус-вектор взаимного расстояния электрона и дырки), являющейся собственной функцией гамильтониана

$$H = -\frac{\nabla^2}{2\mu^*} - \frac{e^2}{\epsilon_0 r}, \quad \text{где } \nabla — \text{оператор градиента, } \mu^* — \text{приведенная}$$

масса «одетых» частиц, $\frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$, $m_{e,h}^* = m_{e,h} \left(1 + \frac{1}{6} a_{e,h}\right)$,

$a_{e,h} = \frac{e^2}{2\epsilon r_{e,h}\omega_0}$, e — заряд электрона, $r_{e,h} = (2m_{e,h}^*\omega_0)^{-1/2}$, ω_0 — частота оптического фонона, $\hbar \equiv 1$, $\epsilon^{-1} = \epsilon_\infty^{-1} - \epsilon_0^{-1}$, ϵ_∞ и ϵ_0 — оптическая и статическая диэлектрические постоянные.

Предположим, что концентрация электронно-дырочных пар в кристалле мала. Тогда в первом приближении по плотности пар H_e можно представить в следующем виде [16]:

$$H_e = \bar{H}_e + W(\mathbf{K}), \quad (3)$$

$$\bar{H}_e = \sum_{\lambda} \sum_{\gamma} \sum_{\mathbf{K}} \left(\Delta_g^* + \frac{K^2}{2M^*} + E_\lambda \right) b_{\lambda\gamma}^+(\mathbf{K}) b_{\lambda\gamma}(\mathbf{K}). \quad (4)$$

Здесь $\Delta_g^* = \Delta_g - (a_e + a_h)\omega_0$, $M^* = m_e^* + m_h^*$, \mathbf{K} — полный волновой вектор пары частиц, E_λ — собственные значения гамильтониана H , для дискретного спектра $E_\lambda = -\frac{Ry}{\lambda^2}$, где Ry — постоянная Ридберга «оде того» экситона, $b_{\lambda\gamma}^+(\mathbf{K})$ ($b_{\lambda\gamma}(\mathbf{K})$) — операторы рождения (уничтожения) электронно-дырочной пары (экситона) с полным волновым вектором \mathbf{K} , внутреннее состояние которой характеризуется квантовыми числами λ и γ .

$$W(\mathbf{K}) = \sum_{\lambda_1} \sum_{\gamma_1} \sum_{\lambda_2} \sum_{\gamma_2} \sum_{\mathbf{K}} \omega_{\lambda_1\gamma_1, \lambda_2\gamma_2}(\mathbf{K}) b_{\lambda_1\gamma_1}^+(\mathbf{K}) b_{\lambda_2\gamma_2}(\mathbf{K}), \quad (5)$$

$$\omega_{\lambda_1\gamma_1, \lambda_2\gamma_2}(\mathbf{K}) = \int \psi_{\lambda_1\gamma_1}^*(\mathbf{r}) \hat{\omega}(\mathbf{K}) \psi_{\lambda_2\gamma_2}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (6a)$$

$$\hat{\omega}(\mathbf{K}) = (a_e + a_h)\omega_0 - \frac{e^2}{\epsilon r} - \left(\frac{1}{\mu} - \frac{1}{\mu^*} \right) \frac{\nabla^2}{2} - i \frac{(a_e - a_h)(\mathbf{K}\nabla)}{6M^*} + \frac{(a_e p_e + a_h p_h) K^2}{12M^*}, \quad (6b)$$

где $p_{e,h} = \mu(m_{e,h}^*)^{-1}$.

В выбранном представлении «голый» электронно-дырочный гамильтониан H_e оказался недиагональным по λ и γ .

Заметим еще, что дополнительное прямое взаимодействие между электроном и дыркой, не учтенное в выбранной модели, а также «поляризационные» поправки к гамильтониану H приводят главным образом к искажению S -состояний экситона, и в первую очередь $1S$ -состояния, не затрагивая существенно P -состояний [16]. Поэтому в дальнейшем в некоторых случаях будем использовать и такую модель, в которой P -состояния являясь с хорошей точностью собственными состояниями гамильтониана H , а $1S$ -состояние таковым не является; в этом случае природу возмущения, приводящего к искажению $1S$ -состояния, конкретизировать не будем.

Для гамильтонианов H_L и H_R возьмем обычное представление [19]

$$H_L = \omega_0 \sum_{\mathbf{q}} a^+(\mathbf{q}) a(\mathbf{q}), \quad (7)$$

$$H_R = \sum_{\sigma=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \Omega(\mathbf{k}) A_\sigma^+(\mathbf{k}) A_\sigma(\mathbf{k}). \quad (8)$$

Гамильтониан H_R не учитывает возможности переходов электрона под действием света между выделенными валентной зоной и зоной проводимости, $\Omega(\mathbf{k}) = \frac{c_0}{n_0} k$, c_0 — скорость света в вакууме, n_0 — показатель

преломления на частоте Δ_g^* без учета перехода электрона между выделенными зонами, $A_\sigma^+(\mathbf{k})$ ($A_\sigma(\mathbf{k})$) — операторы рождения (уничтожения) фотона с волновым вектором \mathbf{k} и поляризацией σ .

При выводе электрон-фотонного гамильтониана мы, следуя Р. Дж. Эллиоту [20] (см. также [21]), выделим «одноцентровые» и «двухцентровые» переходы между локализованными состояниями Ванье валентной зоны и зоны проводимости, причем последние вычислим в модели кубического кристалла, принимая во внимание только переходы между состояниями Ванье, локализованными на ближайших соседях. Тогда для H_{eR} получим выражение

$$H_{eR} = -Z \sum_{\lambda} \sum_{\gamma} \sum_{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} [\hat{d}(\sigma, \mathbf{k}) \psi_{\lambda\gamma}(0) A_{\sigma}(\mathbf{k}) b_{\lambda\gamma}(\mathbf{k}) + \text{c. c.}], \quad (9)$$

где $Z = \left[\frac{2\pi e^2 N}{m_0^2 c_0 n_0 k} \right]^{1/2}$, m_0 — масса свободного электрона, N — число элементарных ячеек кристалла

$$\hat{d}(\sigma, \mathbf{k}) = d_0(\sigma, \mathbf{k}) + 2\rho_0 d_1(\mathbf{e}_{\sigma\mathbf{k}} \nabla). \quad (10)$$

В формуле (10) $d_0(\sigma, \mathbf{k})$ — «одноцентровый» матричный элемент оператора $-i(\mathbf{e}_{\sigma\mathbf{k}} \nabla) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$, а d_1 — «двухцентровый» матричный элемент оператора $-(\mathbf{e}_{\sigma\mathbf{k}} \nabla)$ [21] (последний — в модели кубического кристалла), ρ_0 — постоянная решетки.

Если матричный элемент $d_0(\sigma, \mathbf{k})$ отличен от нуля в дипольном приближении, то он обычно гораздо больше «двухцентровых» матричных элементов.

Каноническое преобразование

Совершим над гамильтонианом H каноническое преобразование

$$H^T = e^{-i\hat{S}} H e^{i\hat{S}}. \quad (11)$$

Оператор \hat{S} выберем в виде

$$\begin{aligned} \hat{S} = & \sum_{\lambda_1} \sum_{\gamma_1} \sum_{\lambda_2} \sum_{\gamma_2} \sum_{\mathbf{K}} \sum_{\mathbf{q}} b_{\lambda_1\gamma_1}^+(\mathbf{K}) b_{\lambda_2\gamma_2}(\mathbf{K} - \mathbf{q}) \times \\ & \times [\delta_{\lambda_1,1} F_{\lambda_2\gamma_2}^{(-)}(\mathbf{q}) a(\mathbf{q}) + \delta_{\lambda_2,1} F_{\lambda_1\gamma_1}^{(+)}(\mathbf{q}) a^+(-\mathbf{q})], \end{aligned} \quad (12)$$

где

$$F_{\lambda\gamma}^{(-)}(\mathbf{q}) = (2\pi e^2 \varepsilon^{-1(\omega_0)})^{1/2} \gamma_{10,\lambda\gamma}(\mathbf{q}) \left[E_1 - E_{\lambda} - \frac{q^2}{2M^*} - \omega_0 \right]^{-1}, \quad (12a)$$

$$F_{\lambda\gamma}^{(+)}(\mathbf{q}) = (2\pi e^2 \varepsilon^{-1(\omega_0)})^{1/2} \gamma_{\lambda\gamma,10}(\mathbf{q}) \left[E_1 - E_{\lambda} - \frac{q^2}{2M^*} - \omega_0 \right]^{-1}. \quad (12b)$$

При $r \ll R_0$ (R_0 — боровский радиус «одетого» экситона, r_0 — приведенный радиус поляризации, $r_0 = (r_e^2 + r_h^2)^{1/2} = (2\mu^* \omega_0)^{-1/2}$) каноническое преобразование (11) с большой точностью убирает в гамильтонианах H_e^T и H_{eL}^T члены, описывающие взаимодействие экситона с другими уровнями и с фононным полем. Действительно, из работы [16] следует, что после совершения такого канонического преобразования недиагональные по λ матричные элементы бесфононной части трансформированного гамильтониана H_e^T окажутся малы и приведут к изменению энергии 1S-экситона только на величину порядка $\left(\frac{r_0}{R_0}\right)^3 \text{Ry}$ или $\frac{r_0^3 K^2}{R_0} \text{Ry}$, а линейные по $a_{e,h}$ члены, описывающие распад 1S-экситона с одновременным рождением фонона, а также члены, описывающие обратный процесс, будут равны нулю, если полный волновой вектор \mathbf{K} экситона равен нулю, или малы порядка $a_{e,h} \left(\frac{r_0^3 K^2}{R_0}\right)^{1/2}$ при его отличном от нуля значении.

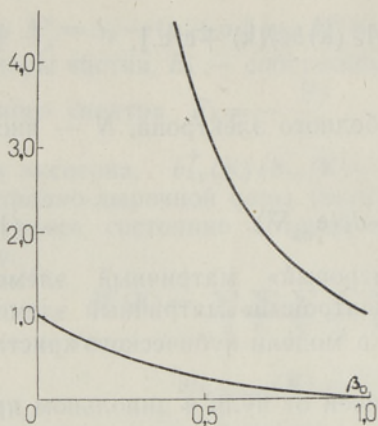


Рис. 1. Отношение приближенных значений функций $J_{\text{прибл}}^{(1S)}(\beta_0, 1)$ (верхняя кривая) и $J_{\text{прибл}}^{(S, \text{св})}(\beta_0, 1)$ (нижняя кривая) к функции $J(\beta_0, 1)$.

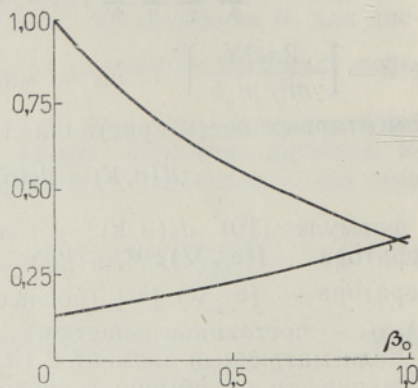


Рис. 2. Отношение приближенных значений функций $J_{\text{прибл}}^{(P, \text{св})}(\beta_0, 1)$ (верхняя кривая) и $J_{\text{прибл}}^{(2P)}(\beta_0, 1)$ (нижняя кривая) к функции $J(\beta_0, 1)$.

Пренебрежем указанными малыми членами в гамильтонианах H_e^T и H_{eL}^T . Тогда спектр поглощения света в области, соответствующей рождению $1S$ -экситона и уничтожению одного оптического фонона, в первом приближении по $a_{e,h}$ будет определяться линейными по фононным операторам членами и в гамильтониане H_{eR}^T . При низких температурах эти же члены определяют и спектр люминесценции в области первого оптического повторения линии $n = 1$.

Оставив в H_{eR}^T только те члены, которые определяют спектр в области резонанса, а также в антистоксовой области поглощения (стоксовой области люминесценции), из (11) и (12) получим следующее выражение для H_{eR}^T :

$$H_{eR}^T = H_{eR} + H'_{eR}, \quad (13)$$

где H'_{eR} имеет вид

$$H'_{eR} = Z \sum_{\sigma=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{q}} [L_{\sigma}(\mathbf{q}) A_{\sigma}^+(\mathbf{k}) b_{10}(\mathbf{k}+\mathbf{q}) a^+(\mathbf{q}) + \text{c. c.}]. \quad (14)$$

В дальнейшем везде будем считать, что промежуточные состояния, через которые осуществляется процесс превращения экситона в фотон и фонон (а также обратный процесс), являются водородоподобными состояниями. Здесь нужно обратить внимание на то, что для «одноцентровых» переходов промежуточными являются S -состояния, а для «двухцентровых» переходов — P -состояния. В последнем случае требование водородоподобности промежуточных состояний не исключает того, что $1S$ -состояние экситона может отличаться от водородоподобного.

При анализе «двухцентровых» переходов будем аппроксимировать радиальную часть волновой функции $1S$ -экситона следующей функцией: $R_{10}(r) = 2(\chi R_0)^{-3/2} \exp\left(-\frac{r}{\chi R_0}\right)$, где $\chi = \left(\frac{Ry}{E_{1S}}\right)^{1/2}$, E_{1S} — энергия связи экситона в $1S$ -состоянии. Случай $\chi = 1$ соответствует «пол-

ностью водородоподобной» модели экситона. Для «одноцентровых» переходов будем рассматривать только последнюю модель.

Рассмотрим не прямые переходы с участием фононов, обладающих малым волновым вектором \mathbf{q} . Предположим, что $\frac{q^2}{2M^*} \ll \omega_0 + E_{1S}$. Для таких значений \mathbf{q} после некоторых преобразований получим следующее выражение для $L_\sigma(\mathbf{q})$ **:

$$L_\sigma(\mathbf{q}) = -2\chi \left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} - 1 \right)^{1/2} \frac{\beta_0^2 (1 + \beta_0^2)^{1/2}}{(1 + \beta_0)^{3/2}} J(\beta_0, \chi) \times \left[\delta_{\chi,1} (p_h - p_e) r_0 q d_0(\sigma, \mathbf{k}) + 2i \frac{Q_0}{r_0} \frac{(\mathbf{e}_{\sigma\mathbf{k}} \mathbf{q})}{q} d_1 \right], \quad (15)$$

где $\beta_0 = (1 + \omega_0 E_{1S}^{-1})^{-1/2}$, а

$$J(\beta_0, \chi) = \frac{3(1 + \beta_0)^{3/2} \Gamma(1 - \chi\beta_0)}{2(1 + \beta_0^2)^{1/2} \Gamma(4 - \chi\beta_0)} \left[\frac{1 - \beta_0^2}{4 - \chi\beta_0} F\left(5, 4; 5 - \chi\beta_0; \frac{1}{2}(1 - \beta_0)\right) + 2(1 - \chi)\beta_0 F\left(4, 3; 4 - \chi\beta_0; \frac{1}{2}(1 - \beta_0)\right) \right]. \quad (16)$$

В формуле (16) $\Gamma(n - \chi\beta_0)$ — гамма-функция, а $F(n + 1, n; n + 1 - \chi\beta_0; \frac{1}{2}(1 - \beta_0))$ — гипергеометрическая функция [22].

Значения функции $J(\tilde{\beta}_0, \chi)$

χ^{-1}	$\tilde{\beta}_0$										
	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0
1,0	1,000	1,013	1,021	1,022	1,020	1,014	1,007	1,000	0,996	0,995	1,000
1,1	1,000	1,002	0,997	0,987	0,973	0,956	0,937	0,919	0,902	0,888	0,877
1,2	1,000	0,992	0,978	0,959	0,936	0,911	0,884	0,858	0,834	0,811	0,792
1,3	1,000	0,983	0,962	0,936	0,906	0,875	0,843	0,812	0,782	0,754	0,729
1,4	1,000	0,976	0,948	0,917	0,882	0,846	0,810	0,775	0,741	0,710	0,681
1,5	1,000	0,970	0,937	0,900	0,862	0,822	0,783	0,744	0,708	0,674	0,643

Численные значения функции $J(\tilde{\beta}_0, \chi)$ в интервалах $0 \leq \tilde{\beta}_0 \leq 1$ и $1 \leq \chi^{-1} \leq 1,5$ приведены в таблице.

Из формулы (15) видно, что для «одноцентровых» переходов функция, описывающая эффективное взаимодействие экситона с фотоном и одним оптическим фононом, сферически симметрична по \mathbf{q} , в то время

** Представление функции $L_\sigma(\mathbf{q})$ в виде (15) получено в предположении, что $r_0 \ll R_0$. Для $r_0 \geq R_0$ оно будет справедливым лишь в том случае, если $\left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} - 1 \right) \ll 1$ (при $\left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} - 1 \right) \ll 1$ состояния «голового» и «одетого» экситонов мало отличаются).

как для «двухцентровых» переходов это взаимодействие наиболее сильно для тех фононов, волновой вектор которых коллинеарен с вектором поляризации фотона, и равно нулю для фононов с волновым вектором, перпендикулярным вектору поляризации фотона. Последнее обстоятельство легко объяснить, так как в случае «двухцентровых» переходов эффективное экситон-фотон-фононное взаимодействие должно быть максимальным тогда, когда электрический дипольный момент перехода из S -состояния в P -состояние коллинеарен как с вектором поляризации фотона, так и с вектором поляризации фонона, последний же должен быть коллинеарен с волновым вектором фонона.

Коэффициент экситонного поглощения света и спектральная интенсивность экситонной люминесценции в области однофононных полос

В интересующих нас областях спектра (область резонанса и край однофононной ступеньки в антистоксовой области) коэффициент поглощения света с поляризацией σ на частоте Ω с помощью формул (9), (13) и (15) можно представить в следующем виде:

$$\mu_{\sigma k}(\Omega) = \frac{e^2}{m_0 c_0^2 n_0 k} [(2\pi)^2 N \delta(\Omega - \Delta_g^* - E_{1S}) \times \\ \times |d_0(\sigma, \mathbf{k}) \Psi_{10}(0)|^2 + 4n(\omega_0) \sum_{J=1}^2 D_J(\sigma, \mathbf{k}) \Phi_J(\beta_0, a) x^{J/2-J}]. \quad (17)$$

В формуле (17) $n(\omega_0) = \left[\exp\left(\frac{\omega_0}{T}\right) - 1 \right]^{-1}$ (T — температура кристалла, выраженная в энергетических единицах), $x = \Omega - E_{1S} + \omega_0$, $a = m_e^*/m_h^*$. Индекс $J=1$ относится к «одноцентровым», а индекс $J=2$ — к «двухцентровым» переходам.

Функции $D_J(\sigma, \mathbf{k})$ и $\Phi_J(\beta_0, a)$ имеют следующий вид:

$$D_1(\sigma, \mathbf{k}) = |d_0(\sigma, \mathbf{k})|^2, \quad (18a)$$

$$D_2(\sigma, \mathbf{k}) = \frac{1}{8} \left(\frac{Q_0}{R_0} d_1 \right)^2, \quad (18b)$$

$$\Phi_1(\beta_0, a) = \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} - 1 \right) \left[\frac{\beta_0^2 (1 + \beta_0^2)}{(1 + \beta_0)^3} J^2(\beta_0, 1) \right]_{\chi=1} \frac{(1+a)^3 (1-a)^2}{a^{3/2} \omega_0 R Y^{3/2}}, \quad (19a)$$

$$\Phi_2(\beta_0, a) = \frac{32}{3\pi^2} \left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} - 1 \right) \frac{\chi \beta_0^4 (1 + \beta_0^2)}{(1 + \beta_0)^3} J^2(\beta_0, \chi) \frac{(1+a)^3 \omega_0}{a^{3/2} R Y^{3/2}}. \quad (19b)$$

Строго говоря, спектр поглощения в исследуемой области представляет собой суперпозицию двух полос: «одноцентровой» и «двухцентровой». Первая из них начинается как $x^{3/2}$, а вторая — как $x^{1/2}$.

В «полностью водородоподобной» модели эти полосы должны иметь одинаковую интенсивность на частоте $x = \xi \omega_0$, где

$\xi = \frac{1}{3} \frac{a}{(1-a)^2} \left(\frac{2Q_0}{r_0} \right)^2 \left| \frac{d_1}{d_0(\sigma, \mathbf{k})} \right|^2$, причем переход от закона « $1/2$ » к закону « $3/2$ » возможен только в том случае, если $\Gamma \omega_0^{-1} < \xi < 1$, где Γ — ширина экситонного уровня.

Квадраты матричных элементов $|d_0(\sigma, \mathbf{k})|^2$ и d_1^2 , входящие в формулу (17), можно выразить через силы осцилляторов переходов [21] или через интегральные коэффициенты поглощения света с поляризацией σ в линиях $1S\left(\mu_{\text{инт}}^{(1)}(\sigma, \mathbf{k})\right)$ и $2P\left(\mu_{\text{инт}}^{(2)}(\sigma, \mathbf{k})\right)$ соответственно. Тогда в антистоксовой области спектра поглощения для «одноцентровых» ($J=1$) и для «двухцентровых» ($J=2$) переходов получим

$$\mu_{\sigma\mathbf{k}}^{(J)}(\Omega) = n(\omega_0) \mu_{\text{инт}}^{(J)}(\sigma, \mathbf{k}) \Phi_J(\beta_0, a) x^{5/2-J}. \quad (17a)$$

Спектральная интенсивность излучения света с поляризацией σ в области однофононного повторения при нормировке резонансной линии на единицу будет определяться формулой [14]

$$I_{\sigma\mathbf{k}}^{(J)}(x) = \Phi_J(\beta_0, a) x^{5/2-J} \exp\left(-\frac{x}{T}\right). \quad (20)$$

Из формулы (20) можно получить температурную зависимость относительной интегральной интенсивности фононного повторения $\left(I_{\sigma\mathbf{k}}^{(J)}(T)\right)$. Для «одноцентровых» переходов

$$I_{\sigma\mathbf{k}}^{(1)}(T) = \frac{3}{4} \pi^{3/2} \Phi_1(\beta_0, a) T^{5/2}, \quad (21a)$$

и для «двухцентровых» переходов

$$I_{\sigma\mathbf{k}}^{(2)}(T) = \frac{2}{3} \pi^{3/2} \Phi_2(\beta_0, a) \frac{\bar{f}_2^{(2P)}}{\bar{f}_1^{(1S)}(\sigma, \mathbf{k})} T^{3/2}, \quad (21b)$$

где $f_1^{(1S)}(\sigma, \mathbf{k})$ и $f_2^{(2P)}$ — силы осцилляторов соответствующих переходов. Как и следовало ожидать, температурная зависимость относительной интенсивности однофононного повторения в люминесценции оказалась различной для «одноцентровых» и «двухцентровых» переходов. Оба вида температурной зависимости были обнаружены экспериментально [9, 10].

CdS представляет собой пример кристалла, в котором «одноцентровые» переходы разрешены в дипольном приближении. Подробный анализ формы однофононного повторения для этого кристалла при учете только одного виртуального уровня был проведен в [14]. Из приложения (формула (П.1)) видно, что отношение функции $I_{\sigma\mathbf{k}}^{(1)}(T)$ к той же функции, полученной при учете только одного виртуального уровня экситона $I_{\sigma\mathbf{k}}^{(4S)}(T)$, равно величине $4\beta_0^4(1+\beta_0^2)(1+\beta_0)^{-3}J^2(\beta_0, 1)$. Для кристалла CdS, где $\omega_0 = 0,038$ эв, $Ry = 0,027$ эв (экситонная серия $\Gamma_9 - \Gamma_7$), эта величина составляет 0,22.

Примером кристаллов, в которых «одноцентровые» переходы запрещены в дипольном приближении, могут служить кристаллы закиси меди и серебра. В спектрах экситонной люминесценции этих кристаллов обнаружены однофононные полосы, соответствующие непрямым переходам с рождением нескольких типов фононов [10]. Рассмотрим, например, однофононный переход в Cu_2O с участием продольного колебания симметрии $\Gamma_{15}^-(\omega_0 = 640 \text{ см}^{-1})$. Для этого колебания $\epsilon^{-1}\epsilon_0 = 0,11$ [23]. Если остальным входящим в формулу (21b) параметрам придать следующие значения: $a = 0,73$ [24], $Ry = 0,0968$ эв, $E_{1S} = 0,141$ эв [21], $\bar{f}_2^{(2P)}/\bar{f}_1^{(1S)} = 3 \cdot 10^{-10}$ [21], (\bar{f}_{1S} — средняя сила осциллятора), то получим $I_{\sigma\mathbf{k}}^{(640)}(T) = 0,011 \text{ град}^{-3/2} T^{3/2}(\text{К})$. Экспериментальное значение $I_{\sigma\mathbf{k}}^{(640)}(T) = (0,009 \pm 0,003) \text{ град}^{-3/2} T^{3/2}(\text{К})$ [10]. Следовательно

но, рассмотренный нами механизм может объяснить взаимодействие экситона с этим колебанием. С другой стороны, интенсивности фононных повторений с участием некоторых других фононов, и в первую очередь с участием наиболее интенсивного колебания симметрии $\Gamma_{12}^{(-)}$ ($\omega_0 = 105 \text{ см}^{-1}$), не могут быть объяснены в рамках рассматриваемой модели (например, величина $I_{\text{экс}}^{(105)}(T)$ при разумных значениях параметра $\varepsilon^{-1}\varepsilon_0 \ll 0,1$ превышает теоретически вычисленную величину на два порядка).

Автор выражает глубокую благодарность К. К. Ребане за руководство работой.

Приложение

Для сравнения приведем результаты приближенного вычисления функции $L_\sigma(\mathbf{q})$. Ограничимся анализом «полностью водородоподобной» модели ($\chi = 1$). Тогда

а) если принять во внимание только виртуальные уровни с наименьшим из возможных главным квантовым числом (1S-уровень в случае «одноцентровых» переходов и 2P-уровни в случае «двухцентровых» переходов), то $J(\beta_0, 1)$ в формуле (15) при $d_1 = 0$ нужно заменить на $J_{\text{прибл}}^{(1S)}(\beta_0, 1)$, а при $d_0(\sigma, \mathbf{k}) = 0$ на $J_{\text{прибл}}^{(2P)}(\beta_0, 1)$, где

$$J_{\text{прибл}}^{(1S)}(\beta_0, 1) = \frac{(1 + \beta_0)^{3/2}}{2\beta_0^2 (1 + \beta_0^2)^{1/2}}, \quad (\text{П.1})$$

$$J_{\text{прибл}}^{(2P)}(\beta_0, 1) = \frac{2^7}{3^5} \frac{(1 + \beta_0)^{3/2}}{(1 + \beta_0^2)^{1/2} (4 - \beta_0^2)}; \quad (\text{П.2})$$

б) если виртуальными состояниями считать состояния свободных частиц, не возмущенных кулоновским полем, то приближенные значения функции $J(\beta_0, 1)$ в (15) при $d_1 = 0$ ($J_{\text{прибл}}^{(S, \text{св})}(\beta_0, 1)$) и при $d_0(\sigma, \mathbf{k}) = 0$ ($J_{\text{прибл}}^{(P, \text{св})}(\beta_0, 1)$), примут вид

$$J_{\text{прибл}}^{(S, \text{св})}(\beta_0, 1) = \frac{(1 - \beta_0^2)}{(1 + \beta_0)^{5/2} (1 + \beta_0^2)^{1/2}}, \quad (\text{П.3})$$

$$J_{\text{прибл}}^{(P, \text{св})}(\beta_0, 1) = \frac{1 + \frac{\beta_0}{3}}{(1 + \beta_0)^{3/2} (1 + \beta_0^2)^{1/2}}. \quad (\text{П.4})$$

На рис. 1 и 2 приведено отношение функций $J_{\text{прибл}}(\beta_0, 1)$ к функции $J(\beta_0, 1)$. Естественно, что при $\beta_0 \rightarrow 0$ ($\omega_0 \gg Ry$) предельное значение функции $J(\beta_0, 1)$ совпадает с предельными значениями функций $J_{\text{прибл}}^{(S, \text{св})}(\beta_0, 1)$ и $J_{\text{прибл}}^{(P, \text{св})}(\beta_0, 1)$, а при $\beta_0 \rightarrow 1$ ($\omega_0 \ll Ry$) $J(\beta_0, 1) \rightarrow J_{\text{прибл}}^{(1S)}(\beta_0, 1)$.

Заметим еще, что при $Ry \ll \omega_0$ $J_{\text{прибл}}^{(2S)}(\beta_0, 1) \rightarrow \frac{J(\beta_0, 1)}{\omega_0} \rightarrow \frac{2Ry}{\omega_0}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гросс Е. Ф., УФН, **63**, 575 (1957).
2. Горбань И. С., Тимофеев В. Б., ФТТ, **3**, 3584 (1961).
3. Baumeister P. W., Phys. Rev., **121**, 359 (1961).
4. Гросс Е. Ф., Захарченя Б. П., Сибилов А. И., ФТТ, **4**, 1003 (1962).
5. Гросс Е. Ф., Капланский А. А., Агекян В. Т., ФТТ, **4**, 1009 (1962).
6. Marple D. T., Phys. Rev., **150**, 728 (1966).
7. Thomas D. G., Hopfield J. J., Power M., Phys. Rev., **119**, 570 (1960).
8. Dietz R. E., Hopfield J. J., Thomas D. G., J. Appl. Phys., **32** S, 2282 (1961).
9. Гросс Е. Ф., Пермогоров С. А., Разбирин Б. С., ФТТ, **8**, 1483 (1966).
10. Крейнгольд Ф. И., Кулинкин Б. С., Опт. и спектр., **33**, 706 (1972).
11. Segall V., Phys. Rev., **163**, 769 (1967).
12. Москаленко С. А., Шмиглюк М. И., Чиник Б. И., ФТТ, **10**, 351 (1968); Москаленко С. А., Шмиглюк М. И., Чиник Б. И., Экситонное поглощение света и кинетика экситонов в полупроводниках, Кишинев, 1968, с. 3.
13. Segall V., Mahan G. D., Phys. Rev., **171**, 935 (1968).
14. Федосеев В., Хижняков В., Изв. АН ЭССР, Физ. Матем., **19**, 34 (1970).
15. Буляница Д. С., ФТТ, **4**, 1273 (1970).
16. Федосеев В. Г., Препринт ИФА-22, 1973.
17. Ребане К. К., Элементарная теория колебательной структуры спектров примесных центров кристаллов, М., 1968.
18. Fröhlich H., Pelzer H., Zienau S., Phil. Mag., **41**, 221 (1959).
19. Агранович В. М., Теория экситонов, М., 1968.
20. Elliott R. J., Phys. Rev., **108**, 1384 (1957).
21. Нокс Р., Теория экситонов, М., 1966.
22. Градштейн И. С., Рыжик И. М., Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений, М., 1963.
23. Heltemes E. G., Phys. Rev., **141**, 803 (1966).
24. Zhilich A. G., Halpern J., Zakharchenya B. P., Phys. Rev., **188**, 1294 (1969).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
25/IX 1973

V. FEDOSSEJEV

WANNIER-MOTTI EKSITONIDE LUMINESTSENTSI JA NEELDUMISE
ÜHEFOOTONILISTE SPEKTRAALRIBADE TEORIIAST

Artiklis arvatatakse valguse neeldumiskoefitsient piirkonnas, mis vastab eksitoni tekele olekus 1S ja optilise foononi kadumisele, ning leitakse joone $n=1$ ühefoononiliste võnkekorduste spektraalne ja integraalne intensiivsus. Vaadeldakse «ühetsentrilisi» ja «kahetsentrilisi» üleminekuid. Eeldatakse, et eksitoni ja optiliste foononite interaktsioon on tingitud Fröhlichi polarisatsioonimehhanismist.

V. FEDOSEYEV

ON THE THEORY OF ONE-PHONON SIDEBANDS IN ABSORPTION AND
EMISSION SPECTRA OF WANNIER-MOTT EXCITONS

The absorption coefficient is calculated in the region where the 1S exciton is created and an optical phonon is destructed. The spectral intensity of the one-phonon recurrence of the $n=1$ line in the emission spectrum is also calculated. The "one-centre" and "two-centre" transitions are considered. Fröhlich's law is supposed to be responsible for the interaction of the exciton with optical phonons.