ЖЭТФ, 1999, том 115, вып. 4, стр. 1353–1376

НОВЫЙ МЕТОД ОБНАРУЖЕНИЯ БОЗЕ-КОНДЕНСАЦИИ ЭКСИТОНОВ С ПОМОЩЬЮ ИНДУЦИРОВАННОГО ДВУХФОТОННОГО ИСПУСКАНИЯ

ତ୍ର*1999*

Ю. Е. Лозовик*, А. В. Пушнов

Институт спектроскопии Российской академии наук 142092, Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 18 августа 1998 г.

Исследуется индуцированное двухфотонное испускание бозе-конденсированными экситонами, сопровождающееся когерентной двухэкситонной рекомбинацией — одновременной рекомбинацией двух экситонов с противоположными импульсами, оставляющей неизменными числа заполнения экситонных состояний с импульсами р 7 0. Анализируется также комбинационное рассеяние света (КРС), сопровождающееся аналогичной двухэкситонной рекомбинацией (или двухэкситонным рождением). Исследуемые процессы имеют место, только если в системе есть бозе-конденсат, и поэтому могут использоваться как новый способ обнаружения бозе-конденсации экситонов. Импульс отдачи, соответствующий изменению импульса электромагнитного поля в этих процессах, берут на себя фононы или примеси. Если импульс отдачи передается оптическим фононам с частотой ω_0^g , числа заполнения которых пренебрежимо малы, то при частоте падающего света $\omega < 2\Omega_{-}$ ($\Omega_{-} = \Omega - \omega_0^s$, Ω — частота, соответствующая рекомбинации экситона с нулевым импульсом) индуцированное двухфотонное испускание и КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией приводят к появлению линии $2\Omega_{-} - \omega$ и, соответственно, антистоксовой компоненты $\omega + 2\Omega_{-}$. При $\omega > 2\Omega_{-}$ спектр КРС содержит антистоксову и стоксову компоненты на частотах $\omega \pm 2\Omega_{-}$, а индуцированное двухфотонное испускание невозможно. Получены выражения для сечений исследуемых процессов при конечных температурах. Оценка показывает, что в Cu₂O может экспериментально наблюдаться спектральная линия $2\Omega_{-} - \omega$, соответствующая индуцированному двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам.

1. ВВЕДЕНИЕ

Одними из наиболее интересных коллективных свойств экситонов являются их возможная бозе-конденсация и сверхтекучесть (см. работы [1–7] и цитируемую там литературу). В последнее время появился ряд сообщений об экспериментальном обнаружении явлений бозе-конденсации и сверхтекучести экситонов в Cu₂O, основанных на наблюдении изменений в спектрах экситонной люминесценции [8, 9], и обнаружении баллистического транспорта экситонов [9–11], которые в настоящее время являются предметом дискуссий [12–14]. Имеются также сообщения о наблюдении конденсации непрямых экситонов в связанных квантовых ямах, находящихся в сильных магнитных полях (см. [15], а также теоретическое обсуждение в [16–18] и цитируемую там литературу). В этой связи представляется актуальным детальное исследование свойств когерентных экситонов, обнаружение которых могло бы стать альтернативным подтверждением существования экситонной бозе-конденсации.

*E-mail: lozovik@isan.troitsk.ru

Если система экситонов находится в бозе-конденсированном состоянии, среднее от оператора уничтожения (рождения) экситона с нулевым импульсом по основному состоянию экситонной системы отлично от нуля:

$$\langle N - 1 | Q_0 | N \rangle = \langle N + 1 | Q_0^+ | N \rangle = \sqrt{N_0}.$$
 (1)

Здесь $|N\rangle$ — основное состояние экситонной системы, соответствующее среднему числу экситонов N, Q_0 — оператор уничтожения экситона с нулевым импульсом, N_0 — число экситонов в конденсате.

Из соотношения (1) легко видеть, что при рекомбинации (рождении) экситона с нулевым импульсом экситонная система, находящаяся в бозе-конденсированном состоянии, снова переходит в основное состояние, отличающееся от исходного лишь средним числом экситонов с импульсом $\mathbf{p} = 0$. Рекомбинации экситонов с нулевым импульсом соответствует пик излучения (так называемый конденсатный пик) в спектре экситонной люминесценции на частоте $\Omega = [E_0(N) - E_0(N-1)]/\hbar$, где $E_0(N)$ — энергия основного состояния экситонной системы.

Если межэкситонное взаимодействие отлично от нуля, то помимо средних вида (1) отличны от нуля также произведения двух операторов уничтожения (рождения) экситонов с противоположными импульсами, усредненные по основному состоянию бозе-конденсированной экситонной системы (так называемые аномальные средние):

$$\langle N - 2|Q_{-p}Q_{p}|N \rangle \neq 0, \quad \langle N + 2|Q_{-p}^{+}Q_{p}^{+}|N \rangle \neq 0.$$
 (2)

В настоящей работе исследованы необычные оптические свойства, появляющиеся у взаимодействующих экситонов при переходе в бозе-конденсированное состояние благодаря появлению отличных от нуля средних (2). Мы покажем, что при взаимодействии с электромагнитным полем в системе бозе-конденсированных экситонов возможна когерентная двухэкситонная рекомбинация (или рождение) — одновременная рекомбинация (или рождение) двух экситонов с противоположными импульсами, соответствующая средним (2). В этих процессах числа заполнения экситонов с $\mathbf{p} \neq 0$ остаются неизменными, а конечное состояние экситонной системы отличается от начального лишь средним числом экситонов с нулевым импульсом. Например, после двухэкситонной рекомбинации среднее число конденсатных экситонов уменьшается на два.

Когерентная двухэкситонная рекомбинация может сопровождать, например, индуцированное двухфотонное испускание или комбинационное рассеяние света (КРС) бозе-конденсированными экситонами. КРС может также сопровождаться когерентным двухэкситонным рождением. В этих процессах импульс экситон-фотонной системы не сохраняется: импульс отдачи, равный изменению импульса электромагнитного поля, передается фононам или примесям [19, 20]. В настоящей работе рассмотрены процессы с передачей импульса отдачи двум оптическим фононам. Такие процессы, по-видимому, наиболее вероятны в случае экситонов в Cu_2O — одном из самых перспективных кристаллов с точки зрения обнаружения экситонной бозе-конденсации. Действительно, для экситонов в этом кристалле характерна излучательная рекомбинация с передачей импульса отдачи одному оптическому фонону (см. [7]). Используя законы сохранения энергии и импульса, можно показать, что в отсутствие примесей и дефектов когерентная рекомбинация двух экситонов с произвольными импульсами возможна лишь с передачей импульса отдачи двум фононам. При низких температурах числа заполнения оптических фононов малы, поэтому наиболее вероятна передача импульса отдачи двум излученным фононам. Если дисперсия фононов пренебрежимо мала, то при частоте падающего света $\omega < 2\Omega_{-}$ появляются линия $2\Omega_{-} - \omega$ в спектре индуцированного двухфотонного испускания и антистоксова компонента $\omega + 2\Omega_{-}$ в спектре КРС. Здесь $\Omega_{-} = \Omega - \omega_{0}^{s}$, ω_{0}^{s} — частота оптических фононов. Обе линии соответствуют когерентной двухэкситонной рекомбинации: энергия экситонной системы в начальном состоянии превышает энергию конечного состояния на $2\hbar\Omega$, где Ω — частота, соответствующая рекомбинации экситона с нулевым импульсом. Если $\omega > 2\Omega_{-}$, спектр КРС содержит антистоксову компоненту $\omega + 2\Omega_{-}$, соответствующую когерентной двухэкситонному рождению. Индуцированное двухфотонное испускание в этом случае невозможно. Появление линий на частотах $|\omega \pm 2\Omega_{-}|$ возможно только в том случае, когда экситоны находятся в бозе-конденсированном состоянии: при переходе экситонов в нормальное состояние эти линии исчезают.

Структура статьи такова. В разд. 2 рассматривается индуцированное двухфотонное испускание с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам. На основе диаграммной техники получены соотношения, позволяющие найти сечения двухфотонных процессов, сопровождающихся когерентной двухэкситонной рекомбинацией (или рождением), при конечных температурах. При таком подходе соответствующие элементы S-матрицы естественным образом выражаются через аномальные функции Грина бозе-конденсированных экситонов. Получено сечение индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам и исследована его зависимость от температуры. Показано, что при определенных условиях эта зависимость может стать немонотонной: в определенном интервале температур ниже T_c сечение рассматриваемого индуцированного двухфотонного испускания будет возрастать при увеличении температуры и даже может превысить свое значение при T = 0. Исследованы причины такой необычной температурной зависимости.

Раздел 3 посвящен КРС, сопровождающемуся когерентными процессами двухэкситонной рекомбинации или рождения. В разд. 4 анализируется возможность экспериментального обнаружения линий $|\omega \pm 2\Omega_-|$, соответствующих индуцированному двухфотонному испусканию и КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией (или рождением). Численная оценка для экситонов в Cu₂O показывает, что экспериментальное наблюдение спектральной линии на частоте $2\Omega_- - \omega$, соответствующей когерентной двухэкситонной рекомбинации с передачей импульса отдачи оптическим фононам, возможно и, таким образом, может быть использовано для обнаружения экситонной бозе-конденсации.

2. ИНДУЦИРОВАННОЕ ДВУХФОТОННОЕ ИСПУСКАНИЕ С КОГЕРЕНТНОЙ ДВУХЭКСИТОННОЙ РЕКОМБИНАЦИЕЙ

Эффективный гамильтониан, описывающий оптическую рекомбинацию (рождение) экситонов с передачей импульса отдачи фононам, может быть представлен в следующем виде (см. [20], а также Приложение А):

Ю. Е. Лозовик, А. В. Пушнов

$$\hat{H}_{L} = \sum_{pq} \left[L_{pq}^{>} e^{-i\Omega t} Q_{p}(t) c_{q}^{+}(t) b_{p-q}^{+}(t) + L_{pq}^{<} e^{-i\Omega t} Q_{p}(t) c_{q}^{+}(t) b_{q-p}(t) + L_{pq}^{>} e^{-i\Omega t} Q_{p}(t) c_{q}(t) b_{p+q}(t) + L_{pq}^{\prime <} e^{-i\Omega t} Q_{p}(t) c_{q}(t) b_{-p-q}(t) + \text{H.c.} \right],$$
(3)

где

$$L_{pq}^{>(<)} = i\sqrt{2\pi\omega_q} \mathbf{e}^* \mathbf{f}_{pq}^{>(<)}, \quad L_{pq}^{\prime>(<)} = -i\sqrt{2\pi\omega_q} \mathbf{e} \mathbf{f}_{pq}^{\prime>(<)},$$

 Ω — частота, соответствующая рекомбинации экситона с нулевым импульсом. Гамильтониан (3) записан в гейзенберговском представлении. Здесь $Q_p(t) = Q_p \exp[-i\epsilon(p)t]$ и $b_p(t) = b_p \exp(-i\omega_p^s t)$ — операторы уничтожения соответственно экситона и фонона с импульсами $p, c_q(t) = c_q \exp(-i\omega_q t)$ — оператор уничтожения фотона с импульсом q (ω_q и е — частота фотона и направление вектора его поляризации). Энергия экситона $\epsilon(p)$ отсчитывается от дна экситонной зоны: $\epsilon(0) = 0$. Эффективные матричные элементы $f_{pq}^{>(<)}$ и $f'_{pq}^{>(<)}$ соответствуют рекомбинации экситона с импульсом p, сопровождающейся помимо излучения (поглощения) фотона с импульсом q одновременным излучением или поглощением фонона¹) (см. [20], а также Приложение A).

Разлагая оператор эволюции

$$\hat{S}(t) = T_t \exp\left[-i \int_{-\infty}^t \hat{H}_L(t') dt'\right]$$

по степеням \hat{H}_L до второго порядка включительно, для элементов S-матрицы, соответствующих двухфотонным процессам с передачей импульса отдачи фононам, имеем

$$S_{n'n} = \frac{(-i)^2}{2!} \iint_{-\infty}^{\infty} \langle n' | T_t \hat{H}_L(t') \hat{H}_L(t'') | n \rangle dt' dt'', \tag{4}$$

где n и n' — начальное и конечное состояния системы «экситоны и фононы + электромагнитное поле».

Рассмотрим двухфотонное испускание бозе-конденсированными экситонами, сопровождающееся когерентной двухэкситонной рекомбинацией — переходом экситонной системы из состояния $|n\rangle_{exc} = |n, N\rangle_{exc}$ в состояние $|m\rangle_{exc} = |n, N - 2\rangle_{exc}$, отличающееся от исходного лишь средним числом экситонов с импульсом $\mathbf{p} = 0$. В этом процессе импульс электромагнитного поля меняется на величину $\mathbf{k}' + \mathbf{k}$, где \mathbf{k} и \mathbf{k}' импульсы излученных фотонов. Импульс отдачи $\delta \mathbf{k} = -(\mathbf{k} + \mathbf{k}')$ целиком передается фононам, поскольку в рассматриваемом случае импульс экситонной системы в начальном и конечном состояниях равен нулю.

Для элемента S-матрицы, соответствующего двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам, имеем

¹⁾ В общем случае оптическая рекомбинация экситона может сопровождаться излучением (поглощением) произвольного числа фононов. Используя гамильтониан (3), мы для упрощения ограничиваемся рассмотрением экситонной рекомбинации с излучением (поглощением) одного фонона.

$$(S_{p})_{mn} = -\frac{1}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} dt' dt'' \exp\left[-i\Omega(t'+t'')\right] \times \\ \times \left\{ \left[L_{pk}^{>} L_{-pk'}^{>} \langle m | T_{t}Q_{p}(t')Q_{-p}(t'') | n \rangle_{exc} \langle f | T_{t}b_{p-k}^{+}(t')b_{-p-k'}^{+}(t'') | i \rangle_{phon} + \right. \\ \left. + L_{q-p,k}^{>} L_{p-q,k'}^{>} \langle m | T_{t}Q_{q-p}(t')Q_{p-q}(t'') | n \rangle_{exc} \langle f | T_{t}b_{-p-k'}^{+}(t')b_{p-k}^{+}(t'') | i \rangle_{phon} \right] \times \\ \left. \times \langle f | T_{t}c_{k}^{+}(t')c_{k'}^{+}(t'') | i \rangle_{phot} + \right. \\ \left. + \left[L_{-pk'}^{>} L_{pk}^{>} \langle m | T_{t}Q_{-p}(t')Q_{p}(t'') | n \rangle_{exc} \langle f | T_{t}b_{-p-k'}^{+}(t')b_{p-k}^{+}(t'') | i \rangle_{phon} + \right. \\ \left. + L_{p-q,k'}^{>} L_{q-p,k}^{>} \langle m | T_{t}Q_{p-q}(t')Q_{q-p}(t'') | n \rangle_{exc} \langle f | T_{t}b_{p-k}^{+}(t')b_{-p-k'}^{+}(t'') | i \rangle_{phon} \right] \times \\ \left. \times \langle f | T_{t}c_{k'}^{+}(t')c_{k}^{+}(t'') | i \rangle_{phot} \right\},$$

$$(5)$$

где **q** = **k** – **k**'. Здесь $|i\rangle_{phot} = |0\rangle_{phot}$ и $|f\rangle_{phot} = |1_k, 1_{k'}\rangle_{phot}$ — соответственно начальное и конечное состояния электромагнитного поля. Полагая фононы оптическими, а температуру решетки T_{lat} , которая в общем случае не совпадает с температурой экситонной системы T, достаточно малой ($T_{lat} \ll \omega_0^s$, где ω_0^s — характерная энергия оптических фононов), мы считаем $|i\rangle_{phon} = |0\rangle_{phon}$, $|f\rangle_{phon} = |1_{p-k}, 1_{-p-k'}\rangle_{phon}$.

Проводя усреднение по распределению Гиббса экситонной системы, получим элемент S-матрицы, соответствующий двухфотонному испусканию с переходом системы экситонов из термодинамически основного состояния $|i\rangle_{exc} = \sum_{n} \exp[(F - E_n(N) + +\mu N)/T]|n, N\rangle_{exc}$ в состояние $|f\rangle_{exc} = Q_0^2 |i\rangle/N_0$:

$$(S_p)_{fi} = \sum_{n} \exp[(F - E_n(N) + \mu N)/T](S_p)_{mn}.$$
 (6)

Выражая элемент S-матрицы (6) через аномальную гриновскую функцию экситонов, имеем

$$(S_{p})_{fi} = -\frac{1}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} dt' dt'' \exp\left[-i\Omega(t'+t'')\right] \times \\ \times \left\{ \left[L_{pk}^{>} L_{-pk'}^{>} \left(n_{0}(T)\delta_{p} + i\hat{G}_{-p}(t'-t'') \right) \langle f|T_{t}b_{p-k}^{+}(t')b_{-p-k'}^{+}(t'')|i\rangle_{phon} + \right. \\ \left. + L_{q-p,k}^{>} L_{p-q,k'}^{>} \left(n_{0}(T)\delta_{p-q} + i\hat{G}_{p-q}(t'-t'') \right) \langle f|T_{t}b_{-p-k'}^{+}(t')b_{p-k}^{+}(t'')|i\rangle_{phon} \right] \times \\ \left. \times \langle f|T_{t}c_{k}^{+}(t')c_{k'}^{+}(t'')|i\rangle_{phot} + \\ \left. + \left[L_{-pk'}^{>} L_{pk}^{>} \left(n_{0}(T)\delta_{p} + i\hat{G}_{p}(t'-t'') \right) \langle f|T_{t}b_{-p-k'}^{+}(t')b_{p-k}^{+}(t'')|i\rangle_{phon} + \right. \\ \left. + L_{p-q,k'}^{>} L_{q-p,k}^{>} \left(n_{0}(T)\delta_{p-q} + i\hat{G}_{q-p}(t'-t'') \right) \langle f|T_{t}b_{p-k}^{+}(t')b_{-p-k'}^{+}(t'')|i\rangle_{phon} \right] \times \\ \left. \times \langle f|T_{t}c_{k'}^{+}(t')c_{k}^{+}(t'')|i\rangle_{phot} \right\},$$

$$(7)$$

где $\delta_p = 1$ при p = 0 и $\delta_p = 0$ при $p \neq 0$. Здесь $\hat{G}_p(t' - t'')$ — причинная аномальная функция Грина бозе-конденсированных экситонов при температуре T:

$$\hat{G}_p(t'-t'')=-i(1{-}\delta_p)\times$$



Рис. 1. Диаграммы, соответствующие двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи двум фононам (обозначения см. в тексте)

$$\times \sum_{n} \exp\left[(F - E_n(N) + \mu N) / T \right] \langle n, N - 2 | T_t Q_{-p}(t') Q_p(t'') | n, N \rangle_{exc}, \qquad (8)$$

функция $n_0(T)$ — плотность конденсатных экситонов при этой температуре.

Полученному элементу (7) *S*-матрицы соответствует сумма диаграмм, изображенных на рис. 1. Линия со встречными стрелками обозначает причинную аномальную гриновскую функцию бозе-конденсированных экситонов при T > 0 (если импульсы при этой линии равны нулю, ей соответствует функция $n_0(T)$). Волнистые линии отвечают операторам рождения фотонов, штриховые — операторам рождения фононов. Вершинам на этих диаграммах соответствуют матричные элементы $L_{pk}^{>}$, где p и k — импульсы соответственно экситонной и фотонной линий, выходящих из вершины².

Интегрирование по t' - t'' и t'' дает

$$(S_{p})_{fi} = 2\pi i T_{k'k}(\mathbf{p}) \left[(\sqrt{2} - 1)\delta(\mathbf{p} - \mathbf{q}/2) + 1 \right] \delta(\omega' + \omega + \omega_{p-k}^{s} + \omega_{-p-k'}^{s} - 2\Omega),$$
(9)

где

$$T_{k'k}(\mathbf{p}) = i \left\{ L_{pk}^{>} L_{-pk'}^{>} \left[2\pi n_0(T) \delta_p \delta(\omega + \omega_{p-k}^s - \Omega) + i \hat{G}_p(\omega + \omega_{p-k}^s - \Omega) \right] + L_{q-p,k}^{>} L_{p-q,k'}^{>} \left[2\pi n_0(T) \delta_{p-q} \delta(\omega + \omega_{-p-k'}^s - \Omega) + i \hat{G}_{p-q}(\omega + \omega_{-p-k'}^s - \Omega) \right] \right\}$$
(10)

— матричный элемент двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам, аналогичный амплитуде рассеяния в задаче о столкновениях [22]. При выводе этого выражения мы учли, что аномальная функция Грина является четной функцией частоты и зависит только от абсолютной

²⁾ Для расчета рассматриваемых нами двухфотонного испускания и КРС можно было бы использовать элегантную диаграммную технику Келдыша (см., например, работу [21], в которой рассмотрена весьма близкая с точки зрения техники проблема). Однако в случае нашей задачи развиваемый нами подход обладает большей наглядностью.

величины импульса. Сумма в квадратных скобках в формуле (9) учитывает тот факт, что при $\mathbf{p} = \mathbf{q}/2$ импульсы излученных фононов совпадают.

Ограничимся рассмотрением индуцированного двухфотонного испускания с передачей импульса отдачи двум оптическим фононам с пренебрежимо малой дисперсией $(\omega_q^s = \omega_0^s)$. Из выражения (9) следует, что индуцированное двухфотонное испускание такого вида ведет к появлению линии на частоте $2\Omega_- -\omega$, где $\Omega_- = \Omega - \omega_0^s$, ω — частота падающего света³).

Для дифференциального сечения индуцированного двухфотонного испускания, сопровождающегося когерентной двухэкситонной рекомбинацией с передачей импульса отдачи двум оптическим фононам, имеем

$$d\sigma^{L} = \frac{2\pi}{c} \left[\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p} \neq \mathbf{q}/2} |T_{k'k}(\mathbf{p})|^{2} + 2|T_{k'k}(\mathbf{q}/2)|^{2} \right] \frac{(2\Omega_{-} - \omega)^{2}}{(2\pi c)^{3}} do',$$
(11)

где

$$T_{k'k}(\mathbf{p}) = i \left\{ L_{pk}^{>} L_{-pk'}^{>} \left[2\pi n_0(T) \delta_p \delta(\omega - \Omega_-) + i \hat{G}_p(\omega - \Omega_-) \right] + L_{q-p,k}^{>} L_{p-q,k'}^{>} \left[2\pi n_0(T) \delta_{p-q} \delta(\omega - \Omega_-) + i \hat{G}_{p-q}(\omega - \Omega_-) \right] \right\}.$$
 (12)

Появление множителя 1/2 перед суммой по **p** в выражении (11) связано с тем, что при суммировании по всевозможным **p** испускание двух фононов с импульсами **p** – **k** и – **p** – **k'** учитывается дважды: $T_{k'k}(\mathbf{p}) = T_{k'k}(-\mathbf{p} + \mathbf{q})$.

Легко видеть, что при $\omega \neq \Omega_{-}$ слагаемые, пропорциональные $n_0(T)$, не дают вклада в сечение (11). В этом случае оно пропорционально аномальным гриновским функциям, которые, как известно, определяются не только наличием бозе-конденсата в системе, но и взаимодействием между частицами. Таким образом, при $\omega \neq \Omega_{-}$ индуцированное двухфотонное испускание, сопровождающееся когерентной двухэкситонной рекомбинацией, возможно лишь в неидеальном газе бозе-конденсированных экситонов.

Предполагая условие $\omega \neq \Omega_{-}$ выполненным, представим сечение (11) в следующем виде:

$$d\sigma^{L} = \frac{\omega(2\Omega_{-} - \omega)^{3}}{c^{4}} \left[\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p} \neq \mathbf{q}/2} |(s_{p})_{nm} e_{n}^{\prime *} e_{m}^{*}|^{2} + 2|(s_{q/2})_{nm} e_{n}^{\prime *} e_{m}^{*}|^{2} \right] do', \tag{13}$$

где

$$(s_p)_{nm} = \hat{G}_p(\omega - \Omega_-)(f^{>}_{-pk'})_n (f^{>}_{pk})_m + \hat{G}_{p-q}(\omega - \Omega_-)(f^{>}_{p-q,k'})_n (f^{>}_{q-p,k})_m$$
(14)

 тензор двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам.

³⁾ В общем случае в двухфотонном испускании может участвовать произвольное число фононов. Кроме того, импульс отдачи (целиком или частично) может передаваться примесям. Таким образом, индуцированное двухфотонное испускание может сопровождаться появлением спектральных линий на частотах $2(\Omega - n\omega_0^s) - \omega$, где n — произвольное целое число.

Причинная функция Грина $\hat{G}_{p}(\omega)$ связана с запаздывающей и опережающей гриновскими функциями следующим соотношением (см. [23]):

$$\hat{G}_p(\omega) = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{cth} \frac{\omega}{2T} \right) \hat{G}_p^R(\omega) + \frac{1}{2} \left(1 - \operatorname{cth} \frac{\omega}{2T} \right) \hat{G}_p^A(\omega), \tag{15}$$

используя которое, имеем

$$(s_{p})_{nm} = \frac{1}{2} \left\{ \left[\left(1 + \operatorname{cth} \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \hat{G}_{p}^{R} (\Delta \omega) + \left(1 - \operatorname{cth} \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \hat{G}_{p}^{A} (\Delta \omega) \right] (f_{-pk'}^{>})_{n} (f_{pk}^{>})_{m} + \left[\left(1 + \operatorname{cth} \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \hat{G}_{p-q}^{R} (\Delta \omega) + \left(1 - \operatorname{cth} \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \hat{G}_{p-q}^{A} (\Delta \omega) \right] (f_{p-q,k'}^{>})_{n} (f_{q-p,k}^{>})_{m} \right\}, \quad (16)$$

где $\Delta \omega = \omega - \Omega_{-}$.

Используя это выражение, для суммы по р в формуле (13) для сечения индуцированного двухфотонного испускания получаем

$$\sum_{\mathbf{p}\neq\mathbf{q}/2} |(s_{p})_{nm}e_{n}^{\prime*}e_{m}^{*}|^{2} =$$

$$= \frac{1}{2}\sum_{\mathbf{p}\neq\mathbf{q}/2} \left\{ 2\left[\left(1 + \operatorname{cth}^{2}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) |\hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega)|^{2} + \left(1 - \operatorname{cth}^{2}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) \operatorname{Re}\left[\hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega) \right]^{2} \right] \times \\ \times |(\mathbf{e}^{\prime*}\mathbf{f}_{-pk^{\prime}}^{>})(\mathbf{e}^{*}\mathbf{f}_{pk}^{>})|^{2} + \\ + \left[\left(1 + \operatorname{cth}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) \hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega) + \left(1 - \operatorname{cth}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) \hat{G}_{p-q}^{R*}(\Delta\omega) \right] \times \\ \times \left[\left(1 + \operatorname{cth}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) \hat{G}_{p-q}^{R*}(\Delta\omega) + \left(1 - \operatorname{cth}\frac{\Delta\omega}{2T} \right) \hat{G}_{p-q}^{R}(\Delta\omega) \right] \times \\ \times (\mathbf{e}^{\prime*}\mathbf{f}_{-pk^{\prime}}^{>})(\mathbf{e}^{*}\mathbf{f}_{p-q,k^{\prime}}^{>})(\mathbf{ef}_{q-p,k}^{>*}) \right\}.$$
(17)

При выводе этого выражения мы учли, что на вещественной оси ω опережающая и запаздывающая функции Грина связаны между собой соотношением $G_p^A(\omega) = G_p^{R*}(\omega)$.

Для дальнейшего вычисления сечения индуцированного двухфотонного испускания (13) необходимо выражение для запаздывающей аномальной гриновской функции экситонов при конечной температуре. Оно может быть получено путем аналитического продолжения аномальной функции Грина, записанной в мацубаровском представлении, на верхнюю полуплоскость ω .

Мацубаровская аномальная функция Грина бозе-системы определяется следующим выражением [24]:

$$\hat{G}_{p}(\omega_{s}) = -\frac{(1-\delta_{p})\Sigma_{\omega_{s}p}^{02}}{\left(i\omega_{s}-\epsilon_{0}(p)+\mu-\Sigma_{\omega_{s}p}^{11}\right)\left(i\omega_{s}+\epsilon_{0}(p)-\mu+\Sigma_{-\omega_{s},-p}^{11}\right)+\Sigma_{\omega_{s}p}^{20}\Sigma_{\omega_{s}p}^{02}},$$
(18)

где $\omega_s = 2\pi sT$, s — целое число. Здесь $\epsilon_0(p) = p^2/2m$, μ — химический потенциал системы, определяемый соотношением $\mu = \left[\Sigma_{\omega_s p}^{11} - \Sigma_{\omega_s p}^{02}\right]\Big|_{\omega_s = p = 0}$.

При $T \sim T_c$, где T_c — температура бозе-конденсации идеального бозе-газа, собственно-энергетические части разреженной бозе-системы с взаимодействием могут быть представлены в следующем виде [24]:

$$\Sigma^{11}_{\omega_s p} = \frac{8\pi}{m} na, \quad \Sigma^{20}_{\omega_s p} = \Sigma^{02}_{\omega_s p} = \frac{4\pi}{m} n_0(T)a, \tag{19}$$

где n — полная плотность частиц, a — амплитуда их рассеяния друг на друге, $n_0(T)$ — плотность частиц в бозе-конденсате, приближенно определяемая соотношением $n_0(T) = n \left[1 - (T/T_c)^{3/2}\right]$.

Таким образом, аномальная функция Грина разреженных экситонов может быть записана как

$$\hat{G}_p(\omega_s) = (1 - \delta_p) \frac{\zeta(T)}{\omega_s^2 + \epsilon_p^2},\tag{20}$$

где

$$\epsilon_p = \sqrt{\xi_p^2 - \zeta^2(T)}, \quad \xi_p = \frac{p^2}{2m} + \zeta(T), \quad \zeta(T) = \mu(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^{3/2} \right], \quad \mu(0) = \frac{4\pi na}{m},$$

n — плотность экситонов, m — масса экситона. Величина $\mu(0)$ совпадает с химическим потенциалом экситонов при T = 0.

Аналитически продолжая $G_p(\omega_s)$ на верхнюю полуплоскость, получим выражение для запаздывающей аномальной функции Грина:

$$\hat{G}_{p}^{R}(\omega) = -(1-\delta_{p})\frac{\zeta(T)}{(\omega-\epsilon_{p}+i\Gamma_{p}/2)(\omega+\epsilon_{p}+i\Gamma_{p}/2)}.$$
(21)

Здесь $\Gamma_p = \tau_p^{-1}$, где τ_p — время жизни квазичастицы с импульсом p в экситонной системе.

Подставляя (21) в выражение (17), легко видеть, что при $|\Delta\omega| \gg \Gamma_p$ основной вклад в сечение индуцированного двухфотонного испускания (13) вносят слагаемые, соответствующие импульсам p таким, что $\epsilon_p \sim |\Delta\omega|$. На этом основании матричные элементы $\mathbf{f}_{-pk'}^{>}$ и $\mathbf{f}_{pk}^{>}$ можно заменить на их значения, соответствующие импульсу p_L , удовлетворяющему условию $\epsilon(p_L) = \Delta\omega$, и вынести за знак интегрирования. Кроме того, если $p_L \gg q$, при суммировании по p в выражении (17) можно положить q = 0. Таким образом, имеем

$$\sum_{\mathbf{p}} |(s_p)_{nm} e_n'^* e_m^*|^2 = 2 \left[\left(1 + \operatorname{cth}^2 \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \sum_{\mathbf{p}} |\hat{G}_p^R(\Delta \omega)|^2 + \left(1 - \operatorname{cth}^2 \frac{\Delta \omega}{2T} \right) \sum_{\mathbf{p}} \operatorname{Re}[\hat{G}_p^R(\Delta \omega)]^2 \right] |f_n(\omega_L') f_m(\omega_L) e_n'^* e_m^*|^2,$$
(22)

где

$$\mathbf{f}(\omega_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}^{>}(p_L, k) do_{p_L}, \quad \mathbf{f}(\omega'_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}^{>}(p_L, k') do_{p_L}$$

— матричные элементы, усредненные по направлениям вектора \mathbf{p}_L .

Переходя в полученном выражении от суммирования по р к интегрированию, для первой суммы имеем

$$\sum_{\mathbf{p}} |\hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega)|^{2} = \int_{0}^{\infty} \frac{d^{3}p}{(2\pi)^{3}} \frac{\zeta^{2}(T)}{|(\Delta\omega + i\Gamma_{p}/2)^{2} - \epsilon_{p}^{2}|^{2}}.$$
(23)

При $\Gamma_p \to 0$ интеграл (23) расходится. Переходя к интегрированию по переменной $t = \xi_p / \zeta(T)$, выразим его через сумму двух интегралов, сходящихся при $\Gamma_p \to 0$:

$$\sum_{\mathbf{p}} |\hat{G}_{\mathbf{p}}^{R}(\Delta\omega)|^{2} = \frac{\sqrt{2m^{3}/\zeta(T)}}{2\pi^{2}(\beta_{+}^{2} - \beta_{-}^{2})} \left[\int_{1}^{\infty} \frac{dt\sqrt{t-1}}{t^{2} - \beta_{+}^{2}} - \int_{1}^{\infty} \frac{dt\sqrt{t-1}}{t^{2} - \beta_{-}^{2}} \right],$$
(24)

где

$$\beta_{\pm}^2 = (\alpha_L \pm i\gamma_L)^2 + 1, \quad \alpha_L = \frac{|\Delta\omega|}{\zeta(T)}, \quad \gamma_L = \frac{\Gamma_L}{2\zeta(T)}, \quad \Gamma_L = \Gamma_{p_L}$$

Таким образом, при вычислении интегралов в правой части полученного выражения можно положить $\beta_{\pm}^2 = \beta^2 \pm i\delta$. В результате находим

$$\sum_{\mathbf{p}} |\hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega)|^{2} = \frac{\sqrt{2m^{3}\zeta(T)(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1)}}{4\pi\alpha_{L}\Gamma_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}}.$$
(25)

Вторая сумма по **р** в выражении (22) сходится и при $\Gamma_p \to 0$. Таким образом, если $|\Delta \omega| \gg \Gamma_p$, в этой сумме можно сразу положить $\Gamma_p = 0+$. В этом случае имеем

$$\operatorname{Re}\sum_{\mathbf{p}} [\hat{G}_{p}^{R}(\Delta\omega)]^{2} = -\frac{\sqrt{2m^{3}/\zeta(T)}}{16\pi} \frac{\sqrt{\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1}\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}+2\right)}{\alpha_{L}\sqrt{(\alpha_{L}^{2}+1)^{3}}}.$$
 (26)

Легко видеть, что при $|\Delta \omega| \gg \Gamma_p$ справедливо соотношение

$$\left|\sum_{\mathbf{p}} \operatorname{Re}\left[G_{p}^{R}(\Delta\omega)\right]^{2}\right| \ll \sum_{\mathbf{p}} |G_{p}^{R}(\Delta\omega)|^{2}.$$

Таким образом,

$$\sum_{\mathbf{p}} |(s_p)_{nm} e_n'^* e_m^*|^2 = \frac{\sqrt{2m^3 \zeta(T) \left(\sqrt{\alpha_L^2 + 1} - 1\right)}}{2\pi \alpha_L \Gamma_L \sqrt{\alpha_L^2 + 1}} \left(1 + \operatorname{cth}^2 \frac{\Delta \omega}{2T}\right) \times |f_n(\omega_L') f_m(\omega_L) e_m'^* e_n^*|^2.$$
(27)

Подставляя полученное выражение в формулу для дифференциального сечения (13), имеем

$$d\sigma^{L} = \frac{\omega(2\Omega_{-} - \omega)^{3}}{4\pi c^{4}} \frac{\sqrt{2m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2} + 1} - 1\right)}}{\alpha_{L}\Gamma_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2} + 1}} \left(1 + \operatorname{cth}^{2}\frac{\Delta\omega}{2T}\right) \times |f_{n}(\omega_{L}')f_{m}(\omega_{L})e_{n}^{\prime*}e_{m}^{*}|^{2}do'.$$
(28)

Если экситон-фононная система изотропна и падающий свет монохроматичен и линейно поляризован, то $|e_m^* f_m(\omega_L)|^2 = f^2(\omega_L)/3$. Суммируя по поляризациям фотона

 ω' и интегрируя по направлениям его распространения (напомним, что при индуцированном двухфотонном испускании фотон ω идентичен падающему), получим полное сечение индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам:

$$\sigma^{L}(\omega,T) = \frac{\omega(2\Omega_{-}-\omega)^{3}}{c^{4}} \frac{\sqrt{8m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1\right)}}{9\alpha_{L}\Gamma_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}} \left(1+\operatorname{cth}^{2}\frac{\Delta\omega}{2T}\right) \mathbf{f}^{2}(\omega_{L})\mathbf{f}^{2}(\omega_{L}'). \tag{29}$$

Отметим, что если $\Delta \omega \ll \Omega_{-}$, $\mu(0) \ll \Omega$ и $\tau^L = \text{const}$, то при заданном отношении химического потенциала $\mu(0)$ экситонов при нулевой температуре к удвоенной температуре их бозе-конденсации, $\gamma = \mu(0)/2T_c$, величина $\sigma^L(\Delta \omega, T)/\sigma^L(0, 0)$ однозначно определяется всего лишь двумя величинами $x = \Delta \omega/2T_c$ и $y = T/T_c$:

$$\frac{\sigma^{L}(\Delta\omega,T)}{\sigma^{L}(0,0)} = \frac{z^{2}\sqrt{\sqrt{x^{2}+z^{2}}-z}}{|x|\sqrt{2\gamma(x^{2}+z^{2})}} \left(1+\operatorname{cth}^{2}\frac{x}{y}\right),\tag{30}$$

где $z = \gamma (1 - y^{3/2}).$

На рис. 2*а* приведены зависимости сечения (29) от частоты (вернее, от разности между частотой падающего света ω и частотой Ω_{-}), соответствующие различным температурам экситонной подсистемы. На рис. 2*б* показана зависимость этого сечения от температуры при различных фиксированных значениях разности $\Delta \omega = \omega - \Omega_{-}$. Все графики, приведенные на рис. 2, соответствуют параметру $\gamma = 0.3$; предполагается, что $\tau^{L} = \text{const.}$ Легко видеть, что при $|\Delta \omega| \ll T_c$ и $T < T_c$ существует интервал температур, в котором зависимость сечения (29) индуцированного двухфотонного испускания от температуры немонотонна: σ^{L} возрастает с увеличением температуры и может даже превысить свое значение при T = 0.

Причина такой необычной температурной зависимости заключается в следующем. Сечение (29) индуцированного двухфотонного испускания определяется двумя величинами, по-разному зависящими от температуры: величиной $\zeta(T)$, пропорциональной числу конденсатных экситонов, и числами заполнения квазичастичных уровней экситонной системы, соответствующих энергиям квазичастиц $\epsilon(p_L) = |\Delta\omega|$. Действительно, с ростом температуры плотность экситонов с нулевым импульсом и, соответственно, величина $\zeta(T)$ уменьшаются, что, в свою очередь, ведет к уменьшению сечения (29). С другой стороны, используя боголюбовские *u*-*v*-преобразования, легко видеть, что когерентная двухэкситонная рекомбинация, являясь процессом второго порядка по гамильтониану (3), идет через промежуточные состояния экситонной системы, содержащие на одну квазичастицу больше (меньше), чем в термодинамически равновесном состоянии (см. также [19, 20]). Сечение индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией пропорционально величине

$$(n_{p_L}+1)^2 + n_{p_L}^2 = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{cth}^2 \frac{\Delta \omega}{2T}\right),$$

где $n_{p_L} = [\exp(\epsilon_{p_L}/T) - 1]^{-1}$ — квазичастичное число заполнения, соответствующее квазичастице с энергией $\epsilon(p_L) = |\Delta \omega|$ в экситонной системе. При увеличении температуры числа заполнения n_p возрастают, что ведет к увеличению сечения (29). Если эта тенденция преобладает, сечение индуцированного двухфотонного испускания с когерентной





Рис. 2. Зависимость сечения индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам: a — от разности $\Delta \omega = \omega - \Omega_{-}$ между частотой падающего света ω и частотой Ω_{-} при различных температурах экситонной системы T: $T/T_c = 0.01$ (1); 0.10 (2); 0.60 (3); 0.90 (4); 0.99 (5); δ — от температуры экситонной системы T при различных значениях разности $\Delta \omega$: $|\Delta \omega|/2T_c = 0.2$ (1); 0.3 (2); 0.9 (3). Графики построены с использованием выражения (30). Для всех графиков параметр $\mu(0)/2T_c = 0.3$; считается, что τ^L = const

двухэкситонной рекомбинацией будет возрастать при увеличении температуры. Разумеется, при $T \to T_c$ рано или поздно возобладает тенденция уменьшения сечения (29) с ростом температуры, и при $T = T_c$ оно обратится в нуль.

Отметим, что зависимость сечения (29) индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией от температуры получена с использованием приближения (19), справедливого в узкой области температур вблизи температуры бозе-конденсации T_c , которая считается равной температуре бозе-конденсации идеального бозе-газа. Несмотря на то что использование этого приближения позволяет формально воспроизвести результаты работы [20], полученные для T = 0, в промежуточной области температур зависимость сечения $\sigma^L(\Delta\omega, T)$ от температуры будет отличаться от зависимостей, изображенных на рис. 2. Тем не менее вывод о немонотонной зависимости сечения исследуемого индуцированного двухфотонного испускания от температуры остается справедливым: например, при $\Delta\omega/2T_c = 0.2$ имеем $\sigma^L(\Delta\omega, T) > \sigma^L(\Delta\omega, 0)$ уже при $T_c - T \ll T_c$ (см. рис. 26), где приближение (19) является справедливым.

3. КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА

Помимо двойного испускания света, когерентная двухэкситонная рекомбинация может сопровождать комбинационное рассеяние света (КРС). В работе [25] было рассмотрено КРС сверхпроводником, аналогом которого в случае полупроводника было бы КРС плотной электронно-дырочной системой со спариванием электронов и дырок (фазовый переход в этой системе был исследован в работе [26]; см. также обзор [27] и цитируемую там литературу). Мы же рассматриваем случай малой плотности электронов и дырок (систему экситонов). Кроме того, для рассматриваемого нами КРС существенно, что электронно-дырочная система является неравновесной: именно в такой системе возможна когерентная двухэкситонная рекомбинация (рождение), которой соответствует переход в состояние с меньшей (большей) энергией. Закон сохранения энергии для рассматриваемого КРС с передачей импульса отдачи двум излученным оптическим фононам имеет вид

$$\omega + 2\Omega_{-} = \omega'. \tag{31}$$

Рассматриваемому КРС соответствует антистоксова компонента на частоте ω' , определяемой этим соотношением.

Кроме того, возможно КРС, сопровождающееся когерентным двухэкситонным рождением, для которого закон сохранения энергии имеет вид⁴⁾

$$\omega - 2\Omega_{-} = \omega'. \tag{32}$$

Это соотношение определяет частоту стоксовой компоненты ω' , соответствующей данному КРС. Легко видеть, что КРС с когерентным двухэкситонным рождением и передачей импульса отдачи двум излученным оптическим фононам может иметь место только при $\omega > 2\Omega_{-}$. Индуцированное двухфотонное испускание с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи двум излученным оптическим фононам в этом случае невозможно.

Рассмотрение КРС с последующей когерентной двухэкситонной рекомбинацией (или рождением) аналогично рассмотрению индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией. Ввиду громоздкости формул для сечений КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией или рождением мы укажем лишь, как записать эти формулы путем соответствующих замен в выражении (29).

1) Сечение КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией с передачей импульса отдачи двум оптическим фононам получается из выражения (29) путем замен

$$\mathbf{f}(\omega_L) \to \mathbf{f}'(\widetilde{\omega}_L), \quad \mathbf{f}(\omega'_L) \to \mathbf{f}(\widetilde{\omega}'_L), \quad \omega \to -\omega, \quad \Delta \omega \to \omega + \Omega_-, \quad \alpha_L \to \widetilde{\alpha}_L, \quad \Gamma_L \to \widetilde{\Gamma}_L.$$

⁴⁾ В общем случае в КРС, как и в двухфотонном испускании, может участвовать произвольное число фононов. Кроме того, импульс отдачи (целиком или частично) может передаваться примесям. Таким образом, КРС, сопровождающееся когерентными процессами двухэкситонной рекомбинации или рождения; может сопровождаться появлением антистоксовых и стоксовых компонент соответственно на частотах $\omega + (2\Omega - n\omega_0^s) = \omega'$ и $\omega - (2\Omega - n\omega_0^s) = \omega'$, где n — произвольное целое число (см. также [20]).

Здесь $\tilde{\alpha}_L = (\Omega_+ \omega)/\zeta(T)$, $\tilde{\Gamma}_L$ — обратное время жизни квазичастицы с энергией $\epsilon(\tilde{p}_L) = \Omega_+ \omega$ в экситонной системе,

$$\mathbf{f}'(\widetilde{\omega}_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}'^{>}(\widetilde{p}_L, k) do_{\widetilde{p}_L}, \quad \mathbf{f}(\widetilde{\omega}'_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}^{>}(\widetilde{p}_L, k') do_{\widetilde{p}_L}.$$

2) Сечение КРС с когерентным двухэкситонным рождением с передачей импульса отдачи двум оптическим фононам ($\omega > 2\Omega_{-}$) получается из выражения (29) путем замен

$$\mathbf{f}(\omega_L) \rightarrow \mathbf{f}'(\omega_L), \quad 2\Omega_- - \omega \rightarrow \omega - 2\Omega_-,$$

где

$$\mathbf{f}'(\omega_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}'^{>}(p_L, k) do_{p_L}.$$

4. О ВОЗМОЖНОСТИ НАБЛЮДЕНИЯ ДВУХФОТОННЫХ ПРОЦЕССОВ, СОПРОВОЖДАЮЩИХСЯ КОГЕРЕНТНОЙ ДВУХЭКСИТОННОЙ РЕКОМБИНАЦИЕЙ

Проанализируем возможность экспериментального наблюдения индуцированного двухфотонного испускания и КРС, сопровождающихся когерентной двухэкситонной рекомбинацией с передачей импульса отдачи фононам. Сначала рассмотрим индуцированное двухфотонное испускание.

Интенсивность света $I^{L}(\omega')$ на частоте $\omega' = 2\Omega_{-} - \omega$, соответствующая индуцированному двухфотонному испусканию с передачей импульса отдачи излученным оптическим фононам, дается выражением

$$I^{L}(\omega') = \frac{\omega'}{\omega} \sigma^{L}(\omega) I(\omega), \qquad (33)$$

где $\sigma^{L}(\omega)$ — сечение этого процесса (см. (29)), $I(\omega)$ — плотность потока падающего излучения с частотой ω .

Интенсивность (33) может быть представлена в виде суммы двух слагаемых:

$$I^{L}(\omega') = \Delta I^{L}(\omega') + \widetilde{I}^{L}(\omega'), \qquad (34)$$

где $\tilde{I}^{L}(\omega')$ — интенсивность, соответствующая индуцированному двухфотонному испусканию, которое является результатом двух последовательных процессов: спонтанного излучения на частоте $\omega' = 2\Omega_{-} - \omega$ и следующего за ним индуцированного излучения на частоте ω , каждый из которых удовлетворяет закону сохранения энергии.

Если частота падающего света $\omega > \Omega_-$, то $\omega' < \Omega_-$. В этом случае спонтанному излучению на частоте $\omega' = 2\Omega_- - \omega < \Omega_-$ соответствует экситонная рекомбинация, сопровождающаяся рождением боголюбовской квазичастицы с импульсом \mathbf{p}_L , удовлетворяющим условию $\epsilon(p_L) = \Delta \omega$ (см. Приложение Б, $\Delta \omega = -\Delta \omega'$). В результате спонтанной рекомбинации экситонов в экситонной системе в единицу времени появляется $I_s^L(\omega')/\omega'$ квазичастиц с энергией $\epsilon(p_L) = \Delta \omega$, где $I_s^L(\omega')$ — интенсивность люминесценции (57) (см. Приложение Б, а также работу [28]). Эти квазичастицы исчезают за время порядка τ^L ; исчезновение части квазичастиц сопровождается стимулированной

рекомбинацией экситонов с индуцированным излучением на частоте ω . Таким образом, при $\omega > \Omega_{-}$ интенсивность $\tilde{I}^{L}(\omega')$ можно найти из соотношения

$$\widetilde{I}^{L}(\omega') = \frac{\tau^{L}}{\tau^{L}_{s}} I^{L}_{s}(\omega'), \qquad (35)$$

где τ_r^L — время жизни квазичастицы с энергией $\epsilon(p_L)$ относительно ее рекомбинации, сопровождающейся индуцированным излучением на частоте ω , при условии, что в экситонной системе содержится на одну квазичастицу с импульсом \mathbf{p}_L больше, чем в термодинамически равновесном состоянии. Время τ_r^L легко найти с помощью золотого правила Ферми:

$$\frac{1}{\tau_r^L} = \frac{(2\pi)^2}{3c} \mathbf{f}^2(\omega_L) u_{p_L}^2(n_{p_L}+1) I(\omega),$$

$$u_{p_L}^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{\sqrt{\alpha_L^2+1}}{\alpha_L} + 1 \right), \quad n_{p_L} = \frac{1}{e^{\Delta \omega/T} - 1},$$
(36)

где u_{p_L} — коэффициент преобразования Боголюбова и n_{p_L} — функция распределения квазичастиц в системе бозе-конденсированных экситонов с энергией $\epsilon(p_L) = \Delta \omega$ при температуре T.

Если частота падающего света $\omega < \Omega_{-}$ и, соответственно, $\omega' > \Omega_{-}$, ситуация аналогична рассмотренной выше. В этом случае спонтанному излучению на частоте ω' соответствует рекомбинация экситона, сопровождающаяся уничтожением боголюбовской квазичастицы с энергией $\epsilon(p_L) = -\Delta \omega$ в экситонной системе. При $\omega' > \Omega_{-}$ в единицу времени в результате спонтанной рекомбинации экситонов исчезает $I_s^L(\omega')/\omega'$ квазичастиц, имеющих энергию $\epsilon(p_L) = -\Delta \omega$. За время порядка τ^L вместо исчезнувших квазичастиц появляются новые; появление части квазичастиц сопровождается индуцированным излучением на частоте ω . Таким образом, при $\omega < \Omega_{-}$ имеем

$$\widetilde{I}^{L}(\omega') = \frac{\tau^{L}}{\tau_{c}^{L}} I_{s}^{L}(\omega'), \qquad (37)$$

где τ_c^L — время жизни экситона с импульсом \mathbf{p}_L относительно стимулированной рекомбинации, сопровождающейся индуцированным излучением на частоте ω и рождением квазичастицы с энергией $\epsilon(p_L) = -\Delta \omega$ при условии, что в экситонной системе содержится на одну квазичастицу с импульсом \mathbf{p}_L меньше, чем в термодинамически равновесном случае. Используя золотое правило Ферми, для τ_c^L имеем

$$\frac{1}{\tau_c^L} = \frac{(2\pi)^2}{3c} \mathbf{f}^2(\omega_L) v_{p_L}^2 n_{p_L} I(\omega),$$

$$v_{p_L}^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{\sqrt{\alpha_L^2 + 1}}{\alpha_L} - 1 \right).$$
(38)

Используя соотношения (35)–(38), а также (57) из Приложения Б, для интенсивности $\tilde{I}^{L}(\omega')$ в общем случае имеем

$$\widetilde{I}^{L}(2\Omega_{-}-\omega) = \frac{2\Omega_{-}-\omega}{\omega}\widetilde{\sigma}^{L}(\omega)I(\omega),$$

$$\widetilde{\sigma}^{L}(\omega) = \tau^{L}\frac{\omega(2\Omega_{-}-\omega)^{3}}{c^{4}}\frac{\sqrt{2m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1\right)}}{18\alpha_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}}\mathbf{f}^{2}(\omega_{L})\mathbf{f}^{2}(\omega_{L}') \times$$

$$\times \left[\operatorname{sign}(\Delta\omega) + \operatorname{cth}\frac{|\Delta\omega|}{2T}\right]^{2}.$$
(39)

Спектральная линия на частоте $\omega' = 2\Omega_{-} - \omega$, соответствующая индуцированному двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам, будет наблюдаться на фоне люминесценции бозе-конденсированных экситонов. Из соотношений (35) и (37) легко видеть, что величина $\tilde{I}^{L}(\omega')$ определяет часть интенсивности спонтанного излучения $I_{s}^{L}(\omega')$. Таким образом, суммарная интенсивность света на частоте ω' может быть представлена в следующем виде:

$$I_{tot}^{L}(\omega') = \Delta I^{L}(\omega') + I_{s}^{L}(\omega'), \qquad (40)$$

где $I_s^L(\omega')$ — интенсивность люминесценции на частоте ω' в отсутствие падающего света на частоте ω , $\Delta I^L(\omega')$ — наблюдаемое изменение интенсивности света на частоте ω' , обусловленное индуцированным двухфотонным испусканием с когерентной двухэкситонной рекомбинацией. Подставляя сечение (29) в выражение (33), а также используя соотношения (34) и (39), для наблюдаемой интенсивности $\Delta I^L(\omega')$ имеем

$$\Delta I^{L}(2\Omega_{-}-\omega) = \frac{2\Omega_{-}-\omega}{\omega} \Delta \sigma^{L}(\omega) I(\omega),$$

$$\Delta \sigma^{L}(\omega) = \tau^{L} \frac{\omega(2\Omega_{-}-\omega)^{3}}{c^{4}} \frac{\sqrt{8m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1\right)}}{9\alpha_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}} \mathbf{f}^{2}(\omega_{L}) \mathbf{f}^{2}(\omega_{L}') \times$$

$$\times \left[1 + \operatorname{cth}^{2} \frac{\Delta \omega}{2T} - \frac{1}{4} \left(\operatorname{sign}(\Delta \omega) + \operatorname{cth} \frac{|\Delta \omega|}{2T}\right)^{2}\right].$$
(41)

Легко показать, что $1/2 \leq \Delta \sigma^L(\omega)/\sigma^L(\omega) \leq 1$. В частности, при T = 0 имеем $\Delta \sigma^L(\omega) = \sigma^L(\omega)$ при $\omega < \Omega_-$ и $\Delta \sigma^L(\omega) = \sigma^L(\omega)/2$ при $\omega > \Omega_-$.

Используя выражение (29), оценим сечение σ^L индуцированного двухфотонного испускания. В единицах СГС это выражение имеет следующий вид:

$$\sigma^{L}(\omega,T) = \tau^{L} V \frac{\omega(2\Omega_{-}-\omega)^{3}}{9c^{4}\hbar^{4}} \frac{\sqrt{8m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}-1\right)}}{\alpha_{L}\sqrt{\alpha_{L}^{2}+1}} \times \left(1 + \operatorname{cth}^{2}\frac{\Delta\omega}{2T}\right) \mathbf{f}^{2}(\omega_{L})\mathbf{f}^{2}(\omega_{L}'),$$
(42)

где V — объем экситонов, взаимодействующих с падающим светом, $\alpha_L = \hbar |\Delta \omega| / \zeta(T)$. В качестве примера рассмотрим систему бозе-конденсированных экситонов в Cu₂O

при нулевой температуре. Эффективная масса экситона в этом кристалле $m = 2.7 m_e$,

характерный размер экситона a = 7 Å, энергия, соответствующая рекомбинации экситона с нулевым импульсом, $\hbar\Omega \simeq 2$ эВ. Для экситонов в Cu₂O характерна излучательная рекомбинация, сопровождающаяся излучением оптического фонона с энергией $\hbar\omega_0^a \simeq 10$ мэВ и пренебрежимо малой дисперсией.

Химический потенциал экситонов при T = 0 оценим по формуле

$$\mu(0)=\frac{4\pi\hbar^2}{m}na,$$

где n — концентрация экситонов. Полагая $n = 10^{19}$ см⁻³ (такая экситонная концентрация достигалась, например, в эксперименте [9]), получим оценку $\mu(0) \simeq 2.5$ мэВ. Бозе-конденсация идеального газа экситонов при $n = 10^{19}$ см⁻³ должна произойти при температуре $T_c \sim 50$ K; в этом случае $\mu(0)/2T_c \simeq 0.3$.

В эксперименте [9] накачка экситонов осуществлялась с помощью мощных наносекундных лазерных импульсов (длина волны $\lambda \simeq 500$ нм), сфокусированных на поверхности образца в пятно диаметром $d \simeq 30$ мкм. Таким образом, объем V экситонов, взаимодействующих с падающим светом, вызывающим двухфотонное испускание, можно оценить по формуле $V = d^2 l$, где $l \simeq 1$ мкм — глубина проникновения излучения с длиной волны 500 нм.

При $\omega \to \Omega_-$ ($\alpha_L \to 0$) сечение σ^L возрастает. Пусть $\hbar(\Omega_- - \omega) = \mu(0)$. В этом случае

$$\mathbf{f}(\omega_L) \simeq \mathbf{f}(\omega'_L) \simeq \mathbf{F}, \quad \mathbf{F} = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{F}^{>}(p_L, k) do_{p_L},$$

где F — матричный элемент излучательной рекомбинации изолированного экситона, сопровождающейся испусканием оптического фонона [20]. Матричный элемент F можно оценить из соотношения

$$\frac{1}{\tau_{exc}} = \frac{4\Omega_{-}^3}{3c^3\hbar} \mathbf{F}^2,\tag{43}$$

где τ_{exc} — время жизни изолированного экситона относительно спонтанной рекомбинации, сопровождающейся излучением фотона с энергией $\hbar\Omega_{-}$ и оптического фонона с энергией $\hbar\omega_{0}^{s}$. Для параэкситонов в Cu₂O $\tau_{exc} \sim 100$ мкс (см. [7]).

Время релаксации τ^L в системе бозе-конденсированных экситонов — предмет дальнейших исследований. Даже при нулевой температуре оно может быть существенно меньше радиационного времени жизни экситонов τ_{exc} , благодаря, например, возможности исчезновения квазичастицы с излучением одного или нескольких акустических фононов. Полагая, что время τ^L находится в пределах 10^{-11} - 10^{-5} с (нижняя граница соответствует условию $\Gamma_L = 10^{-1} \epsilon(p_L)$, верхняя равна $10^{-1} \tau_{exc}$), для сечения индуцированного двухфотонного излучения бозе-конденсированными параэкситонами в Cu₂O при T = 0 получаем оценку $\sigma^L = 10^{-16} - 10^{-10}$ см².

Радиационное время жизни ортоэкситонов в Cu₂O $\tau_{exc} \sim 300$ нс. Полагая, что время релаксации τ^L в системе бозе-конденсированных ортоэкситонов находится в пределах 10^{-11} – 10^{-9} с (в этом случае верхняя граница определяется временем жизни ортоэкситона по отношению к превращению в параэкситон), при T = 0 получаем оценку $\sigma^L = 10^{-11}$ – 10^{-9} см². Таким образом, индуцированное двухфотонное испускание, сопровождающееся когерентной двухэкситонной рекомбинацией, может быть экспериментально обнаружено в Cu₂O.

Сечение КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией с излучением двух оптических фононов определяется квадратом произведения матричных элементов

$$\mathbf{f}'(\widetilde{\omega}_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}'^{>}(\widetilde{p}_L, k) do_{\widetilde{p}_L}, \quad \mathbf{f}(\widetilde{\omega}'_L) = \frac{1}{4\pi} \int \mathbf{f}^{>}(\widetilde{p}_L, k') do_{\widetilde{p}_L},$$

где \tilde{p}_L определяется условием $\epsilon(\tilde{p}_L) = \omega + \Omega_-$ (см. разд. 3). Соединение Cu₂O имеет широкую запрещенную зону ($\Omega_- \sim 10^2 \omega_0^s$), поэтому $\epsilon(\tilde{p}_L) \gg \omega_0^s$. Используя подход, развитый в Приложении А, можно показать, что в этом случае $f(\tilde{\omega}'_L)$ и $f'(\tilde{\omega}_L)$ пренебрежимо малы по сравнению с матричными элементами $f(\omega_L)$ и $f(\omega'_L)$, входящими в выражение (42) при $|\Omega_- - \omega| \sim \mu(0)$. Кроме того, сечение рассматриваемого КРС пропорционально времени жизни квазичастицы с энергией $\epsilon(\tilde{p}_L) = \omega + \Omega_-$, которое существенно меньше времени релаксации τ^L , входящего в сечение (42) при $|\Omega_- - \omega| \sim \mu(0)$. Таким образом, в отличие от индуцированного двухфотонного испускания экспериментальное обнаружение КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией в Cu₂O вряд ли возможно. В случае КРС с когерентным двухэкситонным рождением ситуация аналогична.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе показано, что при взаимодействии с электромагнитным полем в системе бозе-конденсированных экситонов возможна когерентная двухэкситонная рекомбинация — одновременная рекомбинация двух экситонов с противоположными импульсами, соответствующая существованию в системе недиагонального дальнего порядка — отличных от нуля аномальных средних вида $\langle N-2|Q_{-p}Q_{p}|N\rangle$. Аналогично возможно когерентное двухэкситонное рождение, соответствующее аномальным средним вида $\langle N-2|Q^+_{-p}Q^+_p|N\rangle$. В этих процессах числа заполнения экситонов остаются неизменными, а конечное состояние экситонной системы отличается от начального лишь средним числом экситонов с нулевым импульсом. Показано, что когерентная двухэкситонная рекомбинация может сопровождать индуцированное двухфотонное испускание и комбинационное рассеяние света бозе-конденсированными экситонами (КРС может также сопровождаться когерентным двухэкситонным рождением). Импульс отдачи, соответствующий изменению импульса электромагнитного поля в этих процессах, берут на себя фононы или примеси. Установлено, что индуцированное двухфотонное испускание и КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией (рождением) имеют место, только если в системе взаимодействующих экситонов есть бозе-конденсат, и поэтому могут быть использованы в качестве нового способа обнаружения экситонной бозе-конденсации.

На основе диаграммной техники в работе развит метод, позволяющий получить сечения индуцированного двухфотонного испускания и КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией (или рождением) при T > 0. В этом подходе элементы матрицы рассеяния, соответствующие указанным процессам, естественным образом выражаются через функции Грина бозе-конденсированных экситонов (см. соотношения (9), (10), а также (49)).

Если частота падающего света $\omega < 2\Omega_{-}$, где $\Omega_{-} = \Omega - \omega_{0}^{s}$ (Ω — частота, соответствующая рекомбинации экситона с нулевым импульсом, ω_{0}^{s} — частота оптических

фононов), индуцированное двухфотонное испускание и КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам приводят к появлению спектральной линии на частоте $2\Omega_{-} - \omega$ и, соответственно, антистоксовой компоненты $\omega + 2\Omega_{-}$. При $\omega > 2\Omega_{-}$ спектр КРС содержит антистоксову и стоксову компоненты на частотах $\omega \pm 2\Omega_{-}$. Антистоксова линия соответствует когерентной двухэкситонной рекомбинации, а стоксова — когерентному двухэкситонному рождению с передачей импульса отдачи оптическим фононам. В этом случае индуцированное двухфотонное испускание невозможно.

С помощью приближения (19) получены выражения для сечений исследуемых процессов при конечных температурах. Показано, что при $|\omega - \Omega_-| \ll T_c$ (T_c — температура экситонной бозе-конденсации) сечение индуцированного двухфотонного испускания зависит от температуры немонотонно. В определенном интервале температур ниже T_c оно возрастает и даже может превысить свое значение при T = 0. Причина этой немонотонности состоит в том, что сечение индуцированного двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией определяется помимо межэкситонного взаимодействия не только плотностью конденсатных экситонов, которая уменьшается с ростом температуры, обращаясь при $T = T_c$ в нуль, но и числами заполнения квазичастиц с энергиями $|\omega - \Omega_-|$ в экситонной системе, которые возрастают с увеличением температуры.

Оценка показывает, что при $|\omega - \Omega_-| \sim \mu(0)$, где $\mu(0)$ — химический потенциал экситонов, отсчитываемый от дна экситонной зоны, в Cu₂O может экспериментально наблюдаться спектральная линия $2\Omega_- - \omega$, соответствующая индуцированному двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи оптическим фононам.

Работа поддержана грантами INTAS, Российского фонда фундаментальных исследований и Программой «Физика твердотельных наноструктур».

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Эффективные матричные элементы экситонной рекомбинации

Цель настоящего приложения — показать, что двухфотонное испускание и КРС с колерентной двухэкситонной рекомбинацией могут быть рассмотрены из первых принципов без привлечения эффективного гамильтониана (3). На примере двухфотонного испускания мы получим условия, при выполнении которых его рассмотрение с использованием эффективного гамильтониана (3) является корректным. Кроме того, мы покажем, что использованные нами эффективные матричные элементы экситонной рекомбинации не зависят от температуры и совпадают с соответствующими матричными элементами, полученными в работе [20] для T = 0.

Гамильтониан, описывающий взаимодействие экситонов с фононами и электромагнитным полем, может быть записан в следующем виде:

$$\hat{V}(t) = \hat{W}(t) + \hat{D}(t),$$

$$\hat{W}(t) = \sum_{pq} \left[W_{qp} Q_q^+(t) Q_p(t) b_{q-p}(t) + W_{pq}^* Q_q^+(t) Q_p(t) b_{p-q}^+(t) \right],$$

$$\hat{D}(t) = \sum_{q} \left[D_q e^{-i\Omega t} Q_q(t) c_q^+(t) + D_q' e^{-i\Omega t} Q_{-q}(t) c_q(t) + \text{H.c.} \right],$$
(44)

где гамильтониан $\hat{W}(t)$ описывает рассеяние экситонов на фононах, $\hat{D}(t)$ — взаимодействие экситонов с электромагнитным полем; $D_q = i\sqrt{2\pi\omega_q} \, \mathbf{e}^* \mathbf{d}_q$, $D_q' = -i\sqrt{2\pi\omega_q} \mathbf{e} \mathbf{d}_q$.

Легко видеть, что двухфотонное испускание с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и передачей импульса отдачи фононам является процессом четвертого порядка по гамильтониану $\hat{V}(t)$. Для элемента S-матрицы двухфотонного испускания с когерентной двухэкситонной рекомбинацией и излучением двух оптических фононов с импульсами $\mathbf{p} - \mathbf{k}$ и $-\mathbf{p} - \mathbf{k}'$, усредненного по распределению Гиббса, имеем

$$(S_{p})_{fi} = \frac{(-i)^{4}}{4!} \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int \langle f | T_{t} \left[\hat{W}(t_{1}) \hat{W}(t_{2}) \hat{D}(t_{3}) \hat{D}(t_{4}) + \hat{W}(t_{1}) \hat{D}(t_{2}) \hat{W}(t_{3}) \hat{D}(t_{4}) + \hat{D}(t_{1}) \hat{W}(t_{2}) \hat{W}(t_{3}) \hat{D}(t_{4}) + \hat{W}(t_{1}) \hat{D}(t_{2}) \hat{D}(t_{3}) \hat{W}(t_{4}) + \hat{D}(t_{1}) \hat{W}(t_{2}) \hat{W}(t_{3}) \hat{W}(t_{4}) + \hat{D}(t_{1}) \hat{D}(t_{2}) \hat{W}(t_{3}) \hat{W}(t_{4}) \right] |i\rangle dt_{1} \dots dt_{4}.$$

$$(45)$$

Здесь $\langle f|...|i\rangle = \sum_{n} \exp[(F - E_n(N) + \mu N)/T]\langle m|...|n\rangle$, где $|n\rangle = |n, N\rangle_{exc} |i\rangle_{phon} |i\rangle_{phot}$ и $|m\rangle = |n, N - 2\rangle_{exc} |f\rangle_{phon} |f\rangle_{phot}$, остальные обозначения см. в разд. 2.

Проводя в каждом слагаемом выражения (45) переобозначение времен, мы можем привести его к следующему виду:

$$(S_p)_{fi} = \frac{1}{4} \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int \langle f | T_t \hat{W}(t_1) \hat{W}(t_2) \hat{D}(t_3) \hat{D}(t_4) | i \rangle dt_1 \dots dt_4,$$
(46)

где

$$\langle f | T_t \hat{W}(t_1) \hat{W}(t_2) \hat{D}(t_3) \hat{D}(t_4) | i \rangle = D_k D_{k'} \exp\left[-i\Omega(t_3 + t_4)\right] \sum_{p_1 p_2} W_{p_1, p_1 + p + k'} W_{p_2, p_2 - p + k} \times \\ \times \left\{ \left[\langle T_t Q_{p_1 + p + k'}^+(t_1) Q_{p_1}(t_1) Q_{p_2 - p + k}^+(t_2) Q_{p_2}(t_2) Q_k(t_3) Q_{k'}(t_4) \right] \times \\ \times \langle f | T_t b_{-p - k'}^+(t_1) b_{p - k}^+(t_2) | i \rangle_{phon} + \\ + \langle T_t Q_{p_2 - p + k}^+(t_1) Q_{p_1}(t_1) Q_{p_1 + p + k'}^+(t_2) Q_{p_1}(t_2) Q_k(t_3) Q_{k'}(t_4) \rangle \times \\ \times \langle f | T_t b_{-p - k'}^+(t_2) | i \rangle_{phon} \right] \langle f | T_t c_k^+(t_3) c_{k'}^+(t_4) | i \rangle_{phot} + \\ + \left[\langle T_t Q_{p_1 + p + k'}^+(t_1) Q_{p_1}(t_1) Q_{p_2 - p + k}^+(t_2) Q_{p_2}(t_2) Q_{k'}(t_3) Q_k(t_4) \rangle \times \\ \times \langle f | T_t b_{-p - k'}^+(t_1) b_{p - k}^+(t_2) | i \rangle_{phon} + \\ + \langle T_t Q_{p_2 - p + k}^+(t_1) Q_{p_2}(t_1) Q_{p_1 + p + k'}^+(t_2) Q_{p_1}(t_2) Q_{k'}(t_3) Q_k(t_4) \rangle \times \\ \times \langle f | T_t b_{-p - k'}^+(t_1) b_{-p - k'}^+(t_2) | i \rangle_{phon} \right] \langle f | T_t c_{k'}^+(t_3) c_{k'}^+(t_4) | i \rangle_{phot} \right\}.$$
(47)

Здесь $(...) = \sum_{n} \exp[(F - E_n(N) + \mu N)/T] \langle n, N - 2|...|n, N \rangle_{exc}$.

В интересующем нас случае $k \neq k'$ имеем

$$\begin{split} \sum_{p_{1}p_{2}} W_{p_{1},p_{1}+p+k'}^{*} W_{p_{2},p_{2}-p+k}^{*} \langle T_{t}Q_{p_{1}+p+k'}^{+}(t_{1})Q_{p_{1}}(t_{1})Q_{p_{2}-p+k}^{+}(t_{2})Q_{p_{2}}(t_{2})Q_{k}(t_{3})Q_{k'}(t_{4}) \rangle = \\ = \sum_{p_{1}} W_{p_{1}p_{1}}^{*} \left[W_{-k'k}^{*} \langle T_{t}Q_{p_{1}}^{+}(t_{1})Q_{p_{1}}(t_{1}) \rangle \langle T_{t}Q_{k}^{+}(t_{2})Q_{k}(t_{3}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-kk'}^{*} \langle T_{t}Q_{p_{1}}^{+}(t_{1})Q_{p_{1}}(t_{1}) \rangle \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k}(t_{3}) \rangle \right] \delta(p+k') + \\ + \sum_{p_{2}} W_{p_{2}p_{2}}^{*} \left[W_{-k'k}^{*} \langle T_{t}Q_{-k}^{+}(t_{1})Q_{k}(t_{3}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{p_{2}}(t_{2})Q_{p_{2}}^{+}(t_{2}) \rangle + \\ + W_{-kk'}^{*} \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{p_{2}}(t_{2})Q_{p_{2}}^{+}(t_{2}) \rangle + \\ + W_{-kk'}^{*} \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{p_{2}}(t_{2}) \rangle \right] \delta(p-k) + \\ + W_{-kk'}^{*} \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k}(t_{1})Q_{k}(t_{3}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-kk'}^{*} W_{-k,-p}^{*} \langle T_{t}Q_{p}^{+}(t_{1})Q_{p'}^{+}(t_{2}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{-k,-p}^{*} \langle T_{t}Q_{p}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-p}(t_{1})Q_{p-q}(t_{2}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{p}^{*} \langle T_{t}Q_{k}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-p}(t_{1})Q_{p-q}(t_{2}) \rangle \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{p}^{*} \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-p}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{p}^{*} \langle T_{t}Q_{p}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-p}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-k'}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{p}^{*} \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{-p}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_{k'}^{+}(t_{2})Q_{k'}(t_{4}) \rangle + \\ + W_{-k'p}^{*} W_{p}^{*} \langle T_{t}Q_{p}^{+}(t_{1})Q_{k'}(t_{4}) \rangle \langle T_{t}Q_$$

Аналогичные выражения могут быть получены и для остальных слагаемых в выражении (47).

Подставляя (48) в (46) и проводя интегрирование по времени, при $\mathbf{p} + \mathbf{k}' \neq 0$ и $\mathbf{p} - \mathbf{k} \neq 0$ имеем (фононы — оптические)

$$\begin{split} (S_{p})_{fi} &= 2\pi i T_{k'k}(\mathbf{p}) \left[(\sqrt{2} - 1)\delta(\mathbf{p} - \mathbf{q}/2) + 1 \right] \delta(\omega' + \omega - 2\Omega_{-}), \\ T_{k'k}(\mathbf{p}) &= D_{k} D_{k'} \left[W_{q-p,k}^{*} W_{p-q,k'}^{*} G_{k}(\omega - \Omega) G_{k'}(\Omega_{-} - \omega - \omega_{0}^{s}) \widetilde{G}_{p-q}(\omega - \Omega_{-}) + \right. \\ &+ W_{-k,p-q}^{*} W_{-k',q-p}^{*} \widetilde{G}_{-k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{k'}(\omega - \Omega_{-} + \omega_{0}^{s}) \widetilde{G}_{q-p}^{+}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{q-p,k}^{*} W_{-k',q-p}^{*} G_{k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{k'}(\omega - \Omega_{-} + \omega_{0}^{s}) G_{q-p}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{-k,p-q}^{*} W_{p-q,k'}^{*} \widetilde{G}_{-k}(\omega - \Omega) G_{k'}(\Omega_{-} - \omega - \omega_{0}^{s}) G_{p-q}(\Omega_{-} - \omega) + \\ &+ W_{-pk'}^{*} W_{pk}^{*} G_{k'}(\Omega_{-} - \omega - \omega_{0}^{s}) G_{k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{-p}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{-k'p}^{*} W_{-k,-p}^{*} \widetilde{G}_{-k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{k'}(\omega - \Omega_{-} + \omega_{0}^{s}) \widetilde{G}_{p}^{*}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{-k'p}^{*} W_{pk}^{*} G_{k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{k'}(\omega - \Omega_{-} + \omega_{0}^{s}) G_{p}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{-k'p}^{*} W_{pk}^{*} G_{k}(\omega - \Omega) \widetilde{G}_{k'}(\omega - \Omega_{-} + \omega_{0}^{s}) G_{p}(\omega - \Omega_{-}) + \\ &+ W_{-k'p}^{*} W_{-k,-p}^{*} \widetilde{G}_{-k}(\omega - \Omega) G_{k'}(\Omega_{-} - \omega - \omega_{0}^{s}) G_{-p}(\Omega_{-} - \omega) \right], \end{split}$$

где $\tilde{G}_p(\omega)$, $\tilde{G}_p^+(\omega)$ и $G_p(\omega)$ — фурье-образы аномальных и соответственно нормальной причинных функций Грина бозе-конденсированных экситонов, определенных следующим образом:

$$G_{p}(t-t') = -i\langle T_{t}Q_{p}(t)Q_{p}^{+}(t')\rangle,$$

$$\widetilde{G}_{p}^{(+)}(t-t') = -i\langle T_{t}Q_{-p}^{(+)}(t)Q_{p}^{(+)}(t')\rangle.$$
(50)

Таким образом, мы получили выражение для элемента S-матрицы, соответствующего двухфотонному испусканию с когерентной двухэкситонной рекомбинацией исходя непосредственно из гамильтониана взаимодействия экситонов с электромагнитным полем и гамильтониана экситон-фононного взаимодействия (44). Аналогично могут быть получены элементы S-матрицы, соответствующие КРС с когерентной двухэкситонной рекомбинацией (или рождением).

В общем случае формула (49) не может быть приведена к соответствующему выражению (12), полученному с помощью эффективного гамильтониана (3). Ниже мы найдем условия, при которых это возможно, а также выведем выражение для $L_{pg}^{>}$.

Рассматривая индуцированное двухфотонное испускание при условии $|\omega - \Omega_{-}| \ll \ll \omega_0^s$, получаем

$$\begin{split} T_{k'k}(\mathbf{p}) &= D_k D_{k'} \left[W_{q-p,k}^* W_{p-q,k'}^* G_k(-\omega_0^s) G_{k'}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{p-q}(\omega - \Omega_-) + \right. \\ &+ W_{-k,p-q}^* W_{-k',q-p}^* \widetilde{G}_{-k}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k'}(\omega_0^s) \widetilde{G}_{q-p}^+(\omega - \Omega_-) + \\ &+ W_{q-p,k}^* W_{-k',q-p}^* G_k(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k'}(-\omega_0^s) G_{q-p}(\omega - \Omega_-) + \\ &+ W_{-k,p-q}^* W_{p-q,k'}^* \widetilde{G}_{-k}(-\omega_0^s) G_{k'}(-\omega_0^s) G_{p-q}(\Omega_- - \omega) + \\ &+ W_{-k'p}^* W_{pk}^* G_{k'}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{-p}(\omega - \Omega_-) + \\ &+ W_{-k'p}^* W_{-k,-p}^* \widetilde{G}_{-k}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k'}(\omega_0^s) \widetilde{G}_{p}^+(\omega - \Omega_-) + \\ &+ W_{-k'p}^* W_{pk}^* G_k(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k'}(\omega_0^s) G_p(\omega - \Omega_-) + \\ &+ W_{-k'p}^* W_{pk}^* G_k(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{k'}(-\omega_0^s) G_{-p}(\Omega_- - \omega) \right]. \end{split}$$

В рамках приближения (19) для запаздывающей нормальной функции Грина имеем

$$G_{p}^{R}(\omega) = -2\pi i n_{0}(T) \delta_{p} \delta(\omega) + G_{p}^{\prime R}(\omega),$$

$$G_{p}^{\prime R}(\omega) = (1 - \delta_{p}) \frac{\omega + \xi_{p}}{(\omega - \epsilon_{p} + i\Gamma_{p}/2)(\omega + \epsilon_{p} + i\Gamma_{p}/2)},$$
(52)

откуда может быть получено выражение для $G_p(\omega)$. Аномальная функция Грина $\tilde{G}_p(\omega)$, определенная выражением (50), связана с гриновской функцией $\hat{G}_p(\omega)$ (см. определение (8), а также формулы (15) и (21)) соотношением $\hat{G}_p(\omega) = -2\pi i n_0(T) \delta_p \delta(\omega) + \hat{G}_p(\omega)$.

Сравнивая аномальную и нормальную функции Грина при $\omega = \omega_0^s$, при $\omega_0^s \gg \xi_k$ имеем $\tilde{G}_k(\omega_0^s)/G_k(\omega_0^s) \ll 1$. В этом случае для элемента матрицы рассеяния (51) получим следующее выражение:

$$T_{k'k}(\mathbf{p}) = D_k D_{k'} \left[W_{q-p,k}^* W_{p-q,k'}^* G_k(-\omega_0^s) G_{k'}(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{p-q}(\omega - \Omega_-) + W_{-pk'}^* W_{pk}^* G_{k'}(-\omega_0^s) G_k(-\omega_0^s) \widetilde{G}_{-p}(\omega - \Omega_-) \right],$$
(53)

где $G_{k'}(\omega_0^s) \simeq G_k(\omega_0^s) \simeq 1/\omega_0^s$.

Сравнивая полученное выражение с формулой (12) в разд. 2, для эффективного элемента экситонной рекомбинации $L_{pq}^>$ имеем

$$L_{pq}^{>} = -i \frac{D_{q} W_{pq}^{*}}{\omega_{o}^{*}}.$$
(54)

Аналогично могут быть получены выражения и для остальных матричных элементов экситонной рекомбинации, входящих в эффективный гамильтониан (3).

Итак, рассмотрение индуцированного двухфотонного испускания, сопровождающегося когерентной двухэкситонной рекомбинацией, с помощью эффективного гамильтониана (3), в котором $L_{pq}^{>}$ дается выражением (54), справедливо, если падающий свет удовлетворяет условиям $|\omega - \Omega_{-}| \ll \omega_0^s$ и $\xi_k \ll \omega_0^s$. При этом матричный элемент (54) не зависит от температуры, а $f(\omega_L)$ совпадает с эффективным матричным элементом F, соответствующим рекомбинации изолированного экситона с испусканием оптического фонона ω_0^s (см. [20]).

ПРИЛОЖЕНИЕ Б

Интенсивность люминесценции бозе-конденсированных экситонов

Люминесценции бозе-конденсированных экситонов на частоте $\omega' < \Omega_{-}$ соответствует экситонная рекомбинация, сопровождающаяся рождением боголюбовской квазичастицы с энергией $\epsilon(p'_L) = \Omega_{-} - \omega'$ в экситонной системе и передачей импульса отдачи оптическому фонону. Матричный элемент, соответствующий такой рекомбинации, есть

$$L = L_{p'_{L}k}^{>} v_{p_{L}} \sqrt{n_{p'_{L}} + 1},$$

$$v_{p'_{L}}^{2} = \frac{\sqrt{\alpha_{L}^{\prime 2} + 1} - \alpha_{L}^{\prime}}{2\alpha_{L}^{\prime}}, \quad n_{p'_{L}} = \left[\exp\left(\frac{|\Delta\omega'|}{T}\right) - 1 \right]^{-1},$$
(55)

где $\Delta \omega' = \omega' - \Omega_-, \ \alpha'_L = |\Delta \omega'| / \zeta(T).$

Используя золотое правило Ферми, получим интенсивность люминесценции бозе-конденсированных экситонов с передачей импульса отдачи оптическому фонону $I_s^L(\omega')$ на частотах $\omega' < \Omega_-$:

$$I_{s}^{L}(\omega') = \frac{\omega'^{4}\sqrt{2m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}-1\right)}\mathbf{f}^{2}(\omega_{L}')}{6\pi^{2}c^{3}\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}\left(\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}+\alpha_{L}'\right)}\left[1+\operatorname{cth}\frac{|\Delta\omega'|}{2T}\right].$$
(56)

Люминесценции бозе-конденсированных экситонов на частоте $\omega' > \Omega_{-}$ соответствует экситонная рекомбинация, сопровождающаяся исчезновением квазичастицы с энергией $\epsilon(p'_L) = \omega' - \Omega_{-}$ и передачей импульса отдачи оптическому фонону. Матричный элемент, соответствующий такой рекомбинации, получается из (55) путем замены $v_{p'_L}\sqrt{n_{p'_L}+1} \rightarrow \sqrt{1+v_{p'_L}^2}\sqrt{n_{p'_L}}$. Интенсивность люминесценции на частоте $\omega' > \Omega_{-}$ получается из формулы (56) путем замен $\alpha'_L \rightarrow -\alpha'_L$ и cth $(|\Delta\omega'|/2T) + 1 \rightarrow$ \rightarrow cth($|\Delta\omega'|/2T$) – 1. Таким образом, выражение, дающее интенсивность люминесценции бозе-конденсированных экситонов на произвольной частоте $\omega' \neq \Omega_-$, имеет следующий вид:

$$I_{s}^{L}(\omega') = \frac{\omega'^{4}\sqrt{2m^{3}\zeta(T)\left(\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}-1\right)\mathbf{f}^{2}(\omega_{L}')}}{6\pi^{2}c^{3}\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}\left[\sqrt{\alpha_{L}'^{2}+1}-\operatorname{sign}(\Delta\omega')\alpha_{L}'\right]}\left[\operatorname{sign}(-\Delta\omega')+\operatorname{cth}\frac{|\Delta\omega'|}{2T}\right].$$
(57)

Литература

- 1. J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt, Phys. Rev. 126, 1691 (1962).
- 2. С. А. Москаленко, ФТТ 4, 276 (1962).
- 3. В. А. Гергель, Р. Ф. Казаринов, Р. А. Сурис, ЖЭТФ 53, 544 (1967).
- Л. В. Келдыш, А. Н. Козлов, ЖЭТФ 54, 978 (1968).
- 5. E. Hanamura and H. Haug, Phys. Rep. 33, 209 (1977).
- 6. C. Comte and P. Nozières, J. de Phys. 43, 1069 (1982).
- 7. Bose-Einstein Condensation, ed. by A. Griffin, D. W. Snoke, and S. Stringari, Cambridge University Press (1995).
- 8. D. W. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. 64, 2543 (1990).
- 9. Jia Ling Lin and J. P. Wolfe, Phys. Rev. Lett. 71, 1222 (1993).
- 10. E. Fortin, S. Fafard, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. 70, 3951 (1993).
- 11. E. Benson, E. Fortin, and A. Mysyrowicz, Sol. St. Comm. 101, 313 (1997).
- 12. C. Ell, A. L. Ivanov, and H. Haug, Phys. Rev. B 57, 9663 (1998).
- 13. A. E. Bulatov and S. G. Tikhodeev, Phys. Rev. B 46, 15058 (1992).
- 14. Г. А. Копелевич, С. Г. Тиходеев, Н. А. Гиппиус, ЖЭТФ 109, 2189 (1996).
- 15. L. V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter, G. Bohm, and G. Weimann, Phys. Rev. Lett. 73, 304 (1994).
- 16. Ю. Е. Лозовик, В. И. Юдсон, Письма в ЖЭТФ 22, 556 (1975); ЖЭТФ 71, 738 (1976).
- 17. Ю. Е. Лозовик, О. Л. Берман, ЖЭТФ 97, 1879 (1997).
- Ю. Е. Лозовик, О. Л. Берман, В. Г. Цветус, Письма в ЖЭТФ 66, 332 (1997); Yu. E. Lozovik, O. L. Berman, and V. G. Tsvetus, submitted to Phys. Rev. B.
- 19. Yu. E. Lozovik and A. V. Poushnov, Sol. St. Comm. 105, 527 (1998).
- 20. Yu. E. Lozovik and A. V. Poushnov, Phys. Rev. B 58, 6608 (1998).
- 21. Л. В. Келдыш, С. Г. Тиходеев, ЖЭТФ 90, 1852 (1986).
- В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, Квантовая электродинамика, Наука, Москва (1989).
- А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, Методы квантовой теории поля в статистической физике, Физматтиз, Москва (1962).
- 24. В. Н. Попов, Континуальные интегралы в квантовой теории поля и статистической механике, Госатомиздат, Москва (1982).
- 25. А. А. Абрикосов, Л. А. Фальковский, ЖЭТФ 40, 262 (1961).
- 26. Л. В. Келдыш, Ю. В. Копаев, ФТТ 6, 2791 (1964).
- 27. Ю. В. Копаев, Труды ФИАН 86, 3 (1975).
- 28. H. Shi, G. Verechaka, and A. Griffin, Phys. Rev. B 50, 1119 (1994).