

ЕСТЕСТВЕННОЕ ДВОЙНОЕ ЛУЧЕПРЕЛОМЛЕНИЕ КУБИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛОВ CuBr В ЭКСИТОННОЙ ОБЛАСТИ СПЕКТРА

О.В.Гоголин, Е.Г.Цицишвили, Ж.Л.Дайс¹⁾,

К.Клингсхирн²⁾, В.Е.Соломко

Впервые экспериментально обнаружено двойное лучепреломление кубических кристаллов в экситонной области спектра, обусловленное различием трансляционных масс поперечных экситонов.

Оптическая анизотропия кубических кристаллов, обусловленная пространственной дисперсией диэлектрической проницаемости, в области прозрачности приводит к двойному лучепреломлению. Этот эффект пропорционален $(a/\lambda)^2$ (где a — величина порядка постоянной решетки, λ — длина волны света в кристалле) и должен увеличиваться при приближении к полосам поглощения [1].

¹⁾ Лаборатория оптики и спектроскопии твердых тел Страсбургского университета.

²⁾ Институт прикладной физики Университета г. Карлсруэ.

В настоящем сообщении приводятся результаты по измерению двойного лучепреломления Δn в кубических кристаллах CuBr . Измерения величины Δn проводились по обычной интерференционной методике при распространении света вдоль кристаллографического направления $[110]$. На рис. 1 представлена зависимость Δn от энергии квантов. Зачерненные и полые кружочки показывают величины Δn , измеренные при помощи спектрометра и перестраиваемого лазера на красителях соответственно, на двух различных образцах. На вставке показана зависимость интенсивности проходящего через скрещенные поляриды света от угла между направлением колебаний в поляризаторе и кристаллографической осью $[110]$.

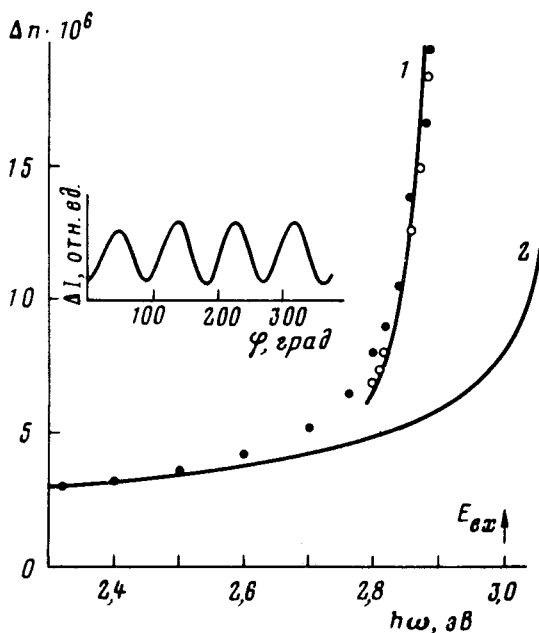


Рис. 1. Частотная зависимость Δn . Точки — экспериментальные значения, сплошные кривые — теория

Приводимые в данной работе результаты существенным образом отличаются от полученных в [2, 3]. В этих работах наблюдалось двойное лучепреломление в кристаллах Ge , Si , GaAs , GaP , ZnTe и ZnSe при комнатной температуре. Все вышеперечисленные кристаллы обладают малой энергией связи экситонов, в силу чего наблюдаемое в них двойное лучепреломление определяется междузонными переходами. В кристаллах CuBr экситонное состояние Z_{12} обладает значительной (~ 110 мэВ) энергией связи и уже при комнатных температурах вклад экситонного состояния в двупреломление может стать основным.

Кристаллы CuBr принадлежат к группе A_1B_7 и имеют структуру цинковой обманки. Верхняя валентная зона CuBr четырехкратно вырождена и соответствует представлению Γ_8 , а двукратно вырожденная зона проводимости — представлению Γ_6 . Этим зонам соответствует восьмикратно вырожденное при $q = 0$ (без учета обменного взаимодействия) экситонное состояние $\Gamma_6 \times \Gamma_8$ (Z_{12}), преобразующееся по следу-

ющим неприводимым представлениям:

$$\Gamma_6 \times \Gamma_8 = \Gamma_3 + \Gamma_4 + \Gamma_5 \quad (\equiv \Gamma_{12} + \Gamma_{15} + \Gamma_{25}),$$

где представление Γ_3 вырождено двукратно, а Γ_4 и Γ_5 — трехкратно. Состояния Γ_4 (Γ_{15}) являются дипольно-разрешенными, состояния Γ_3 и Γ_5 — дипольнозапрещенными.

Мы предполагаем, что основной вклад в наблюдаемое нами естественное двупреломление в области энергий, близких к экситону Z_{12} , вносит состояние Γ_{15} . При $q \parallel [110]$ возможно возбуждение поляризованного вдоль q продольного экситона и поперечных экситонов, поляризованных в перпендикулярных к q направлениях $[\bar{1}10]$ и $[001]$. В области частот света вблизи основного состояния экситона Z_{12} тензор диэлектрической проницаемости можно записать в виде [1];

$$\epsilon_{\alpha\beta}(\omega, q) = \epsilon_0 \delta_{\alpha\beta} + \frac{\pi e^2}{\hbar\omega^2 m_0^2} \sum_i \frac{P_i^\alpha(q) P_i^\beta(q)}{\hbar\omega - E_i(q)}. \quad (1)$$

В выражении (1) индекс i нумерует экситонное состояние Γ_{15} с энергией $E_i(q)$; $P_i^\alpha(q)$ — α -компонента матричного элемента оптического возбуждения i -ого экситона, которую мы будем считать зависящей только от направления q (т. е. квадрупольными поправками пренебрегаем); ϵ_0 — фоновая диэлектрическая проницаемость, включающая остальные возбуждения и нерезонансные слагаемые. Если диэлектрическую проницаемость $\epsilon_{\alpha\beta}$ записать в системе координат, три оси которой (X, Y, Z) есть кристаллографические направления $[110]$, $[001]$ и $[110] \parallel q$, то величина двупреломления определится разностью:

$$n_0 \Delta n = \epsilon_{XX} - \epsilon_{YY}. \quad (2)$$

При малых q , когда кинетическая энергия экситона мала по сравнению с дефицитом ($\hbar\omega - E_q - E_0$), согласно (1) и (2) получим

$$n_0 \Delta n = \frac{Ax^2}{(1-x)^2} \left(\frac{1}{\mu_1} - \frac{1}{\mu_2} \right). \quad (3)$$

Здесь $x = \frac{E_0}{E_g - \hbar\omega}$; E_0 — энергия связи экситона Z_{12} ; $A = \frac{\pi e^2 \hbar n_0^2 p^2}{2m_0^2 c^2 E_0^2}$

величины μ_1 и μ_2 играют роль масс поперечных экситонов [4].

Вклад дипольно-разрешенного экситонного состояния Γ_{15} в двойное лучепреломление обусловлен расщеплением экситонных зон при $q \neq 0$ и определяется различием трансляционных масс μ_1 и μ_2 поперечных экситонов. Отметим, что на возможность двойного лучепреломления в кубических кристаллах в случае, когда эффективные массы в двух поперечных экситонных зонах различны, было указано в [5].

На рис. 1 приведена теоретическая кривая 1, построенная по формуле (3) при $A \left(\frac{1}{\mu_1} - \frac{1}{\mu_2} \right) = 2,6 \cdot 10^{-3}$ в экситонной области спектра ($\hbar\omega \approx$

$\approx 2,8 + 2,9$ эВ). Хорошее согласие с экспериментом указывает на определяющую роль экситонного состояния Γ_{15} в данной области спектра.

Для сравнения приведена теоретическая кривая 2, описывающая вклад в Δn междузонных переходов, построенная по формуле [6]:

$$|\Delta n| = a \left\{ \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{\hbar\omega}{E_g}}} + \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\hbar\omega}{E_g}}} \right\}. \quad (4)$$

Кривой 2 соответствует значение константы $a = 1,3 \cdot 10^{-6}$, которое выбиралось из совмещения расчетных и экспериментальных значений Δn в длинноволновой области спектра, где вклад экситонных состояний мал. Очевидно, что теория, не учитывающая кулоновского взаимодействия, не описывает полученных экспериментальных данных в экситонной области спектра. Как отмечено в [3], междузонное двойное лучепреломление обусловлено анизотропией вырожденной валентной зоны. Это обстоятельство может быть использовано для определения разности констант Латтинджера $|\gamma_3 - \gamma_2|$ [7]. Выражение для константы a имеет вид

$$a = \frac{3\sqrt{2}}{2} \frac{e^2 s^2 q^2 \sqrt{m_c}}{\sqrt{E_g} \hbar \omega^2 \left(1 + \frac{m_c}{m_0} \gamma_1\right)^{5/2}} \frac{m_c}{m_0} |\gamma_3 - \gamma_2|, \quad (5)$$

где s — матричный элемент оператора скорости.

Вычисленное значение разности $|\gamma_3 - \gamma_2|$ согласно (5) для кристаллов CuBr оказывается равной $\sim 0,06$.

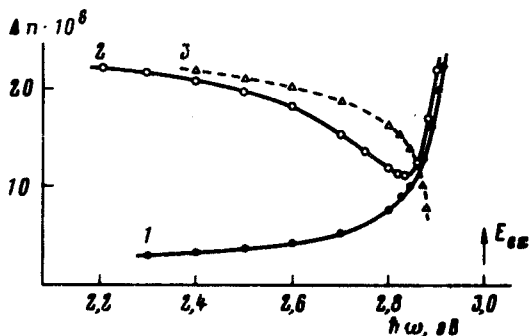


Рис. 2. Дисперсия Δn для различных образцов

Это значение, по-видимому, лишь завышено. В измеренную величину могут вносить дополнительный вклад оптические неоднородности, обусловленные условиями роста кристаллов. Это продемонстрировано на рис. 2, где кривые 2 (при $q \parallel [110]$) и 3 (при $q \parallel [100]$) соответствуют измерениям на образце, имеющем существенные оптические неоднородности. Кривая 1 соответствует максимально оптически однородному

образцу. Анализ дисперсии Δn в кристаллах CuBr позволяет заключить, что истинное значение разности $(\gamma_3 - \gamma_2)$ должно быть меньше определенного в данном эксперименте. Это значение близко к теоретически вычисленному в [8] ($\gamma_3 - \gamma_2 = 0,02$), однако сильно отличается от измеренного в работе [9] ($\gamma_3 - \gamma_2 = 0,3$).

В заключение, авторы выражают благодарность А.Г.Аронову, Е.Л.Ивченко, Л.В.Келдышу за полезные обсуждения.

Институт кибернетики
Академии наук Грузинской ССР

Поступила в редакцию
28 мая 1981 г.

Литература

- [1] *Агранович В.М., Гинзбург В.Л.* Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов, М.: Наука, 1979.
- [2] *Pastrnak J., Vedam K.* Phys. Rev., 1971, В3, 2567.
- [3] *Yu P.Y., Cardona M.* Sol. Stat. Comm., 1971, 9, 1421; *Bettini M., Cardona M.* Proc 11th Intern. Conf. Phys. Sem Warsaw, 1072, 1972.
- [4] *Kane E.*, Phys. Rev., 1975, В11, 3850.
- [5] *Пекар С.И., Цеквава Б.Е.* ФТТ, 1960, 11, 261.
- [6] *Цицишвили Е.Г.* ФТП (в печати)
- [7] *Берозашвили Ю.Н., Мачавариани С.З., Нацелишвили А.Г., Цицишвили Е.Г., Эдилашвили В.Ш.* ФТП, 1981.
- [8] *Khan M.A.* Phys. Stat. Sol (b), 1973, 60, 611.
- [9] *Mattauseh H.J., Uihlein Ch.* Sol. Stat. Comm., 1978, 25, 447.