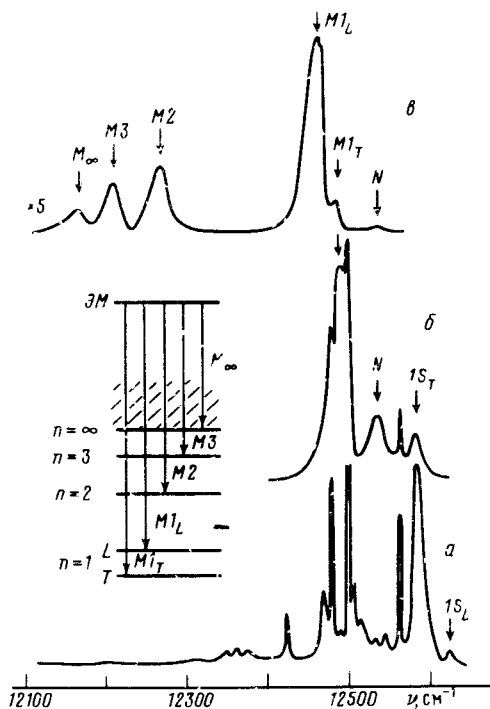


ДВУХЭЛЕКТРОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ С УЧАСТИЕМ БИЭКСИТОНА*Н.М.Белый, И.С.Горбань, В.А.Губанов, И.Н.Дмитрук*

В спектре люминесценции сильно возбужденного кристалла β -ZnP₂ обнаружена обратная водородоподобная серия полос, которые интерпретированы как излучательные переходы из состояния экситонной молекулы в основное и возбужденные состояния экситона.

В настоящей работе исследовалась фотолюминесценция (ФЛ) монокристаллов β -ZnP₂ при возбуждении излучением аргонового, медного и азотного лазеров в широком диапазоне плотностей мощности ($P = 10^1 \div 10^6$ Вт/см²). На рисунке (кривая *a*) представлен спектр ФЛ исследуемого кристалла при возбуждении излучением аргонового лазера ($P = 50$ Вт/см²), в котором наблюдаются полосы излучения с верхней и нижней поляритонных ветвей (ВПВ и НПВ), а также узкие линии, обусловленные, по-видимому, излучательными переходами из состояний локализованных экситонов (ЛЭ). При увеличении плотности мощности лазерного излучения (медный лазер, $P = 60$ кВт/см², кривая *b*; азотный лазер, $P = 1$ МВт/см², кривая *в*) наблюдается полная перестройка спектра: линии излучения ЛЭ практически отсутствуют из-за насыщения соответствующих каналов рекомбинации и возникают несколько широких интенсивных полос ФЛ, образующих обратную водородоподобную серию (ОВС), сходящуюся в длинноволновую сторону. Полосы ОВС и энергетические уровни экситона симметричны относительно точки $E^* = 12539$ см⁻¹. Спектральное положение полос ОВС, а также ее возникновение при больших уровнях возбуждения кристалла дают основание полагать, что ОВС образуется вследствие излучательных переходов из основного состояния экситонной молекулы (ЭМ) на экситонные уровни с $n = 1, 2, 3, \dots \infty$. Для проверки высказанного предположения о природе полос ОВС были исследованы зависимости интенсивностей полос ФЛ от

плотности мощности возбуждающего излучения, которые оказались степенными с показателями, близкими к двум, что полностью подтверждает предположение об отнесении данной серии полос ФЛ к спектру излучения ЭМ.



Спектры ФЛ кристалла моноклинного дифосфида цинка при $T = 2$ К и различных интенсивностях возбуждения, а также схема переходов, образующих ОВС

Правильность предложенной интерпретации о природе ОВС полос подтверждается и теоретико-групповым расчетом симметрии ЭМ, выполненным с учетом принципа Паули, накладывающего на волновую функцию биэкситона требование антисимметрии относительно перестановок электронов и дырок, а также предположении о полностью симметричной огибающей функции основного состояния ЭМ. С учетом различной четности состояний в валентной зоне и зоне проводимости исследуемого кристалла (одна из них описывается представлением $(E')^+$, а другая — $(E')^-$, что следует из наблюдавшихся в 1 разрешенных переходах в S -состояния экситонов) симметрия ЭМ характеризуется представлением:

$$\Gamma_{ЭМ} = [\Gamma_v \times \Gamma_v]_- \times [\Gamma_c \times \Gamma_c]_- \times \Gamma_{env} = [(E')^+ \times (E')^+]_- \times [(E')^- \times (E')^-]_- \times A^+ = A^+,$$

Таким образом, биэкситоны в β -ZnP₂ тождественны по симметрии основному состоянию кристалла и не имеют тонкой структуры, а в процессах фотораспада ЭМ должны участвовать экситонные состояния, переходы в которые разрешены в спектрах поглощения, отражения и ФЛ. Несмотря на предполагаемое отсутствие тонкой структуры ЭМ, в спектрах ее излучательной рекомбинации может проявиться тонкая структура экситонных состояний, на которые происходит переход:

$$\Gamma(nS)_{ex} = \Gamma(nS)_{env} \times \Gamma_v \times \Gamma_c = A^+ \times (E')^+ \times (E')^- = 2A^- + 2B^- ,$$

а также поляритонное расщепление экситонных состояний. Такая структура наблюдается в полосе $M1$ (кривая β). Расстояние между ее двумя основными компонентами $M1_L$ и $M1_T$

соответствует величине продольно-поперечного расщепления $1S$ -экситона, что можно интерпретировать как результат переходов из основного состояния ЭМ на уровни ВПВ и НПВ основного состояния экситона (см. рисунок) ². Менее ярко выраженные особенности тонкой структуры полосы $M1$ обусловлены, по-видимому, тонкой структурой энергетических состояний $1S$ -экситона, на которые происходит переход. Интересные результаты были получены при исследовании тонкой структуры полосы $M1$ в широком диапазоне интенсивностей лазерного возбуждения кристалла. При $P = 10^3 \div 10^4$ Вт/см² (кривая б) преобладали переходы на НПВ $M1_T$. При повышении уровня возбуждения темп роста интенсивности полосы $M1_T$ замедлялся (вероятно, из-за увеличения количества экситонов в состоянии $1S_T$ и перепоглощения фотонов полосы $M1_T$ при переходах $1S_T \rightarrow \text{ЭМ}$), а интенсивность полосы $M1_L$ возрастала и при $P = 10^5 \div 10^6$ Вт/см² $M1_L$ -полоса становилась доминирующей в спектре. Амплитудная "перекачка" в пользу полосы $M1_L$ объясняется, по-видимому, незначительным ростом населенности ВПВ из-за быстрой релаксации экситонов на НПВ. При $P = 10^4$ Вт/см² в спектрах ФЛ β -ZnP₂ возникает полоса N , интенсивность которой растет сверхлинейно, но медленнее, чем полосы ЭМ. Предполагается, что N -полоса образуется в процессе неупругого поляритон-поляритонного рассеяния $1S_T + 1S_T \rightarrow 1S_L + \hbar\omega_N$ или при аннигиляции в трехчастичном комплексе, состоящем из экситона и свободного носителя.

Исходя из значения E^* , можно определить энергию связи ЭМ:

$$E_{\text{св ЭМ}} = 2 [E(1S)_{ex} - E^*] = 120 \text{ см}^{-1}.$$

Необычно большое значение этой величины ($\sim 0,3$ экситонного ридберга) может быть объяснено либо существенным различием в эффективных массах электрона и дырки в β -ZnP₂, либо значительным отклонением в энергетическом положении $1S$ экситона от его расчетного значения (аналогичная ситуация наблюдается в кристалле ZnO ²).

Таким образом, в кристаллах β -ZnP₂ при плотности мощности лазерного возбуждения $P = 10^5 \div 10^6$ Вт/см² впервые наблюдалась ОВС полос, обусловленных переходами из основного состояния ЭМ на возбужденные ($M2$ и $M3$) и ионизированное (M^∞) состояния экситона.

Литература

1. Горбань И.С. и др. Докл. АН УССР. Сер. А, 1988, № 4, 48.
2. Klingshirn C., Haug H. Phys. Rep., 1981, 70, 315.