

БИЭКСИТОНЫ В КРИСТАЛЛАХ A_2B_6

Б.С.Разбирин, И.Н.Уральцев, Г.В.Михайлов

Экспериментально установлено существование биэкситонных состояний при высоких интенсивностях возбуждения в кристаллах CdS, CdSe с энергиями связи 2,5 мэв (CdS) и 1,2 мэв (CdSe).

1. Существует мнение, порожденное серией работ группы Шионой, что в гексагональных кристаллах A_2B_6 биэкситону следует приписывать полосу излучения M [1], возникающую при высоких интенсивностях возбуждения и расположенную с низкоэнергетической стороны от известной линии I_2 , обусловленной экситоном, связанным на нейтральном доноре. Такая интерпретация встречает серьезную критику [2 – 4]. В этих работах полоса M не связывается с излучением биэкситона и объясняется другими механизмами. Основными аргументами против биэкситонной интерпретации являются слишком большая энергия связи [1] по сравнению с теоретически предсказываемой величиной [5], наличие химического сдвига [2, 3] (зависимость от спектрального положения линии I_2), возможности иного толкования явления [3, 4]. Таким образом, вопрос о биэкситонных состояниях в кристаллах A_2B_6 должен быть рассмотрен заново.

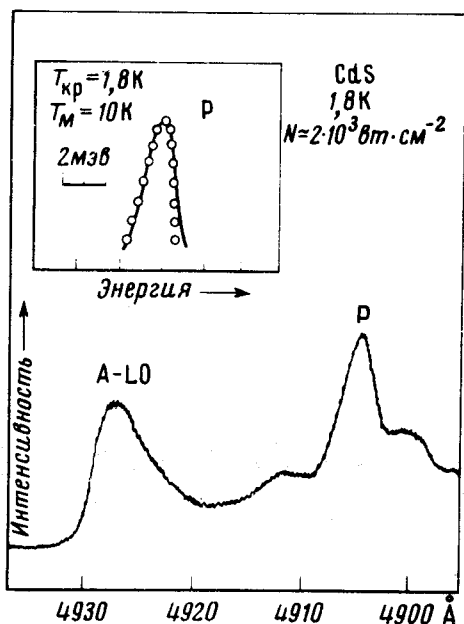


Рис. 1. Спектр излучения кристалла CdS при высокой интенсивности возбуждения. На вставке приведено сравнение экспериментального контура линии P (сплошная линия) с контуром распределения Максвелла (точки)

2. В настоящей работе доказывается существование биэкситонов в соединениях A_2B_6 , причем их излучательному распаду соответствует другая спектральная особенность, так называемая линия P , объяснявшаяся ранее процессом оже-рекомбинации двух свободных экситонов [1].

На рис. 1 представлен спектр излучения кристалла CdS при возбуждении азотным лазером ЛГИ-21. Детальный анализ спектрального положения линии P ($\lambda=4904,5\text{\AA}$) показал, что она может быть объяснена излучательным распадом биэкситона с переходом остающегося экситона в возбужденное состояние A , $n = 2$. Аналогичная линия P ($\lambda=6842\text{\AA}$) наблюдалась нами и в кристалле CdSe. Контур линий P характеризуется обратным распределением Максвелла, соответствующим температуре биэкситонов $\sim 10\text{K}$ (CdS) и $\sim 20\text{K}$ (CdSe). Энергии связи биэкситонов, определенные по спектральному сдвигу линий P относительно экситонного уровня $A_T(\Gamma_5)$, составляют $2,5\text{ мэв}$ (CdS) и $1,2\text{ мэв}$ (CdSe). Эти величины близки к теоретически ожидаемым [5] $2,6\text{ мэв}$ (CdS), $1,3\text{ мэв}$ (CdSe) и согласуются с быстрым температурным исчезновением линий P . Интенсивность этих линий сверхлинейно растет с увеличением интенсивности возбуждения.

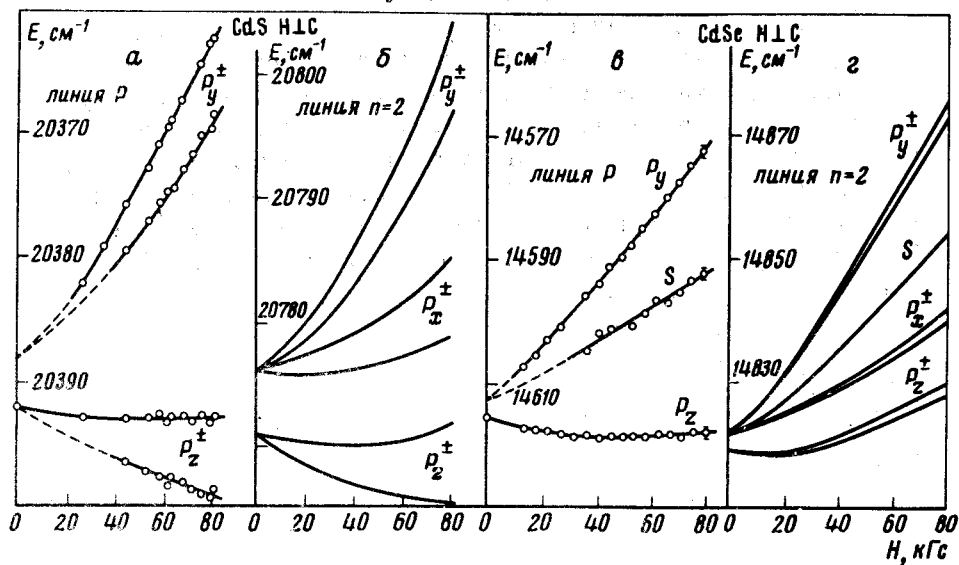


Рис. 2. Зависимость энергетического положения линий P (а, в) и линий $n = 2$ свободного экситона (б, г) для кристаллов CdS (а, б), CdSe (в, г) от величины магнитного поля ($H \perp c$).

3. Для подтверждения гипотезы о биэкситонном происхождении линий P , основанной на перечисленных выше экспериментальных фактах, было проведено магнито-оптическое исследование. Мы обнаружили сложное расщепление этих линий (CdS, CdSe) в магнитном поле (см. рис. 2). Сравнение картин зеемановского расщепления линии P и линии поглощения $n = 2$ ¹⁾ для обеих ориентаций магнитного поля $H \perp c$ и $H \parallel c$ позволило однозначно интерпретировать наблюдающиеся термы и доказать, что конечным состоянием, в которое происходит переход, действительно является уровень $n = 2$ свободного экситона. Приведенные на рис. 2 обозначения расщепленных компонент относятся к термам

¹⁾ Для магнитных полей до 35 кГс анализ проводился также на основании теории возмущений [6, 7].

уровня $n = 2$, на который происходят переходы. Как видно из рис. 3, линия P расщепляется в точности с теми же самыми g -факторами, что и линия $n = 2$. Этот факт отвергает возможность объяснить линию P оже-рекомбинацией связанного экситона [8], для которого характерна существенно иная картина зеемановского расщепления.

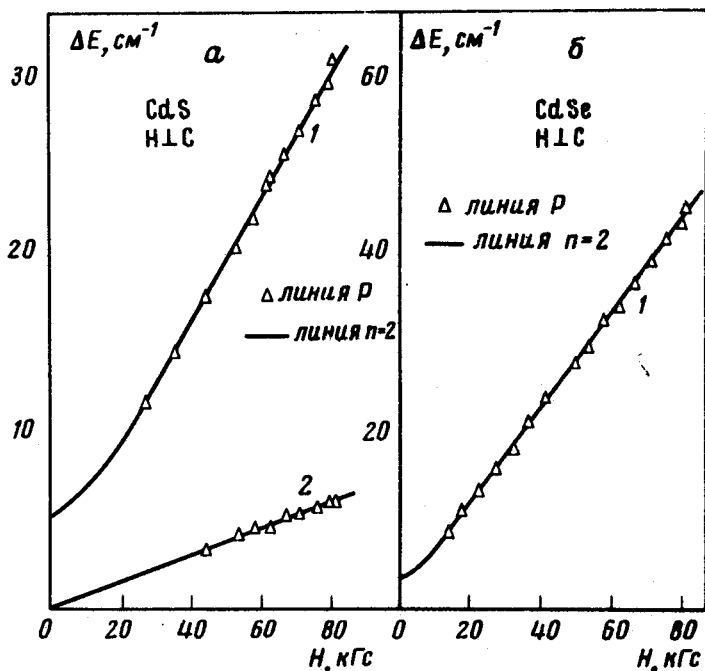


Рис. 3. Сравнение орбитального 1 и спинового 2 расщеплений зеемановских компонент линий P (треугольники) и линий $n = 2$ (сплошная линия): а — CdS, б — CdSe

Идентификация конечного состояния ($n = 2$ свободного экситона) в переходе P позволила нам определить поведение в магнитном поле исходного состояния (биэкситонного). Расщепления биэкситонного уровня не наблюдалось, однако, установлен сильный диамагнитный сдвиг, который был выделен путем вычитания квадратичного сдвига соответствующих компонент состояния $n = 2$ из экспериментально установленного смещения зеемановских компонент линии P . Диамагнитный сдвиг оказывается существенно анизотропным (для CdS: $d_{\perp} = 6 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-1} \text{ гс}^{-2}$, $d_{\parallel} = 9,4 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-1} \text{ гс}^{-2}$), что и следует ожидать для гексагональных кристаллов, в которых волновая функция биэкситона должна быть сжата в направлении оси c . Сама величина диамагнитного сдвига значительно больше, чем удвоенный диамагнитный сдвиг уровня экситона $n = 1$ и, следовательно, линия P не может быть объяснена процессом столкновения двух свободных экситонов. Таким образом, магнито-оптические эксперименты позволяют установить, что линия P действительно вызвана излучательным распадом биэкситона с переводом остающегося экситона в возбужденное состояние $n = 2$.

4. В принципе излучательный распад биэкситона с образованием экситона в разных квантовых состояниях мог бы приводить к наблюде-

нию обратной серии линий излучения ($M \rightarrow n = 1, 2, 3 \dots \infty$), сдвинутой в низкоэнергетическую сторону относительно экситонного уровня $n = 1$ на энергию связи молекулы. Однако, как следует из работы Бюттнера [9], интенсивность переходов в возбужденные состояния ($n > 1$) быстро убывает с увеличением квантового числа. Действительно, в наших экспериментах отчетливо наблюдается переходом $M \rightarrow n = 2$, а переход $M \rightarrow n = 3$ лишь едва заметен. Важным экспериментальным фактом является отсутствие при высоких интенсивностях возбуждения заметных линий излучения, которые можно было бы интерпретировать как переходы $M \rightarrow n = 1$. Причиной этому могут быть два эффекта. Вероятность процесса $M \rightarrow n = 1$ пропорциональна квадрату модуля фурье-компоненты волновой функции относительного движения экситонов в биэкситоне [10]:

$$W(Q) \sim \left| \psi_m \left(\frac{Q}{2} \right) \right|^2,$$

где Q — волновой вектор биэкситона. Вычисление $W(Q)$ с применением волновой функции биэкситона из [5] обнаруживает резкое убывание $W(Q)$ с увеличением Q , что приводит к ослаблению вероятности переходов $M \rightarrow n = 1$. С другой стороны, в области малых значений Q можно ожидать уменьшение вероятности перехода $M \rightarrow n = 1$ из-за светоекситонного взаимодействия в состоянии $n = 1$ [11, 12].

Авторы благодарят А.А.Клочихина за плодотворные обсуждения.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
10 января 1977 г.

Литература

- [1] H.Saito, S.Shionoya, E.Hanamura. Sol. Stat. Comm., 12, 227, 1973; S.Shionoya. Proc. XII Int. Conf. Phys. Semicond. Stuttgart, p. 113, 1974; H.Saito, A.Kuroiwa, S.Kuribayashi, Y.Aogaki, S.Shionoya. J.Luminescence, 12/13, 575, 1976.
- [2] C.Klingshirn. Phys. Stat. Sol., (b) 71, 547, 1975.
- [3] А.Ф.Дите, В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев, П.Д.Алтухов. Письма в ЖЭТФ, 18, 579, 1973.
- [4] В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев. Письма в ЖЭТФ, 24, 157, 1976.
- [5] O.Akimoto, E.Hanamura. Sol. Stat. Comm., 10, 253, 1972; J.Phys. Soc. Japan 33, 1537, 1972.
- [6] J.J.Hopfield, D.G.Thomas. Phys. Rev., 122, 35, 1961.
- [7] R.G.Wheeler, J.O.Dimmock. Phys. Rev., 125, 1805, 1962.
- [8] D.C.Reynolds, C.W.Litton, T.C.Collins. Phys. Rev., 140, A1726, 1965.
- [9] H.Buttner. Phys. Stat. Sol., 42, 775, 1970.
- [10] Э.И.Рашба. ФТП, 8, 1241, 1974.
- [11] А.А.Гоголин. ФТТ, 15, 2746, 1973.
- [12] F.Heneberger, J.Voigt. Phys. Stat. Sol., (b) 76, 313, 1976.