

ВЛИЯНИЕ ГИДРОСТАТИЧЕСКОГО ДАВЛЕНИЯ НА ЭКСИТОННЫЕ СПЕКТРЫ КРИСТАЛЛА CsI

А.И.Кузнецов, А.И.Лайсаар, В.С.Щербаков, Г.С.Завт

Измерены спектры экситонного отражения кристалла CsI при давлениях до 12,5 кбар и $T = 80\text{K}$. Определен гидростатический деформационный потенциал для первых трех экситонных переходов. Обнаружено взаимодействие экситонных уровней, подчиняющееся правилу непересечения Вигнера – Неймана.

В последние годы физика экситонов в ионных кристаллах получила новое интересное развитие в связи с эффектами автолокализации экситонов^{1, 2}. Автолокализация обусловлена взаимодействием экситонов с акустическими фононами и ее характер существенно зависит от особенностей зонной структуры кристалла и величин деформационных потенциалов^{1, 3, 4}. Поэтому аккуратное определение деформационных потенциалов, равно как и принципиальная возможность изменять положение актуальных экстремумов зон внешним давлением имеют важное значение для исследования процессов автолокализации.

В этой связи особый интерес представляют кристаллы йодида цезия CsI (O_h^1). Согласно расчетам^{5, 6} нижний край зоны проводимости CsI сформирован состояниями s -типа (представление Γ_6^+). Выше них на $\sim 0,1$ эВ расположены состояния d -типа (Γ_8^+). Изучаемые в данной работе первые три экситонных перехода связаны с межзонными переходами $\Gamma_8^- \rightarrow \Gamma_6^+$ и $\Gamma_8^- \rightarrow \Gamma_8^{+1}$. Этим переходам отвечают полосы в спектре отражения (рис. 1, кривая 1) при $5,76 \pm 0,02$; $5,90 \pm 0,01$ и $5,97 \pm 0,02$ эВ (с учетом разброса для разных кристаллов). Первый и третий пики соответствуют синглетным состояниям, а пик при 5,90 эВ – триплетному состоянию, переход в которое становится оптически разрешенным благодаря смешиванию с синглетными состояниями из-за неаналитичности d -зоны в Γ -точке⁵.

¹⁾ В произведении $\Gamma_8^- \times \Gamma_8^+ \times \Gamma_1$, где Γ_1 – симметрия огибающей волновой функции экситона, представление Γ_{15} , описывающее симметрию разрешенных в дипольном приближении экситонов, содержится дважды.

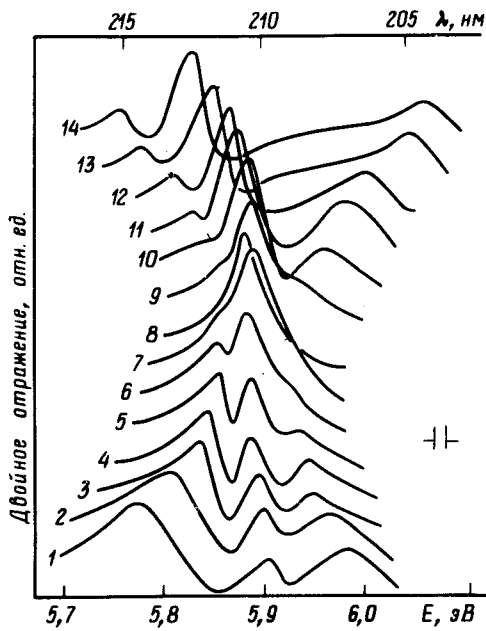


Рис. 1

Рис. 1. Спектры двойного отражения кристаллов CsI при 80К при давлениях: 1 – 1 атм; 2 – 0,9; 3 – 1,8; 4 – 2,4; 5 – 3,4; 6 – 4,0; 7 – 5,0; 8 – 5,5; 9 – 6,0; 10 – 7,1; 11 – 7,8; 12 – 9,7; 13 – 10,6; 14 – 12,3 кбар

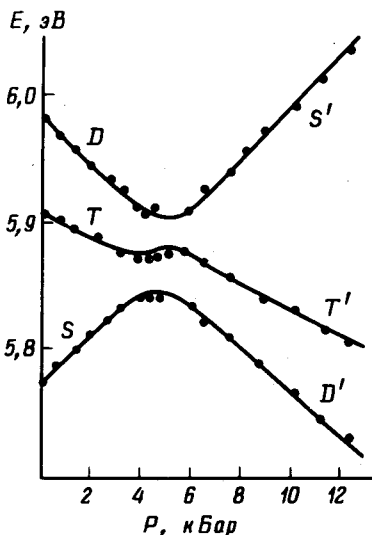


Рис. 2. Экспериментальные (точки) и расчетные зависимости энергии экситонных переходов в CsI от давления

Кристаллы CsI и CsI – Tl (0,5%) сжимались с помощью установки высокого газового давления ⁷, состоящей из гелиевого компрессора на 15 кбар, оптической камеры с окнами из лейкосапфира и азотного криостата. Измерялись спектры двухкратного отражения света под углом 10° от двух полированных кристаллов, установленных в специальном держателе. Использовались дейтериевая лампа ЛД (Л), дифракционный монохроматор (дисперсия $\sim 13 \text{ \AA}/\text{мм}$) и ФЭУ-142 с системой счета фотонов.

На рис. 1 представлены спектры отражения CsI при 80К, измеренные при различных давлениях в диапазоне 0 – 12,5 кбар, а на рис. 2 точками показана зависимость энергии экситонных переходов от давления. Эту зависимость можно разделить на три области: $P = 0 \div 3,5$ кбар – область сближения экситонных полос; $P = 3,5 \div 6,0$ кбар – область сильного взаимодействия экситонов; $P > 6,0$ кбар – область расхождения полос и появления дополнительной структуры. Следует отметить, что согласно рис. 2 барические коэффициенты для экситонных переходов, связанных с s -зоной (линии S, S') и d -зоной проводимости (линии T, T' и D, D') имеют противоположные знаки. Кроме сдвигов полос, наблюдается существенное изменение их интенсивностей (рис. 1): при возрастании давления до 5,5 кбар интенсивность "запрещенной" T -полосы существенно растет, а затем снова убывает. При $P \approx 5,5$ кбар в спектре наблюдается только одна эта полоса.

Поведение трех экситонных полос можно объяснить в рамках модели, учитывающей наряду со сдвигами экситонных уровней под действием давления также и их взаимодействие (смешивание). Если пронумеровать экситонные уровни в порядке возрастания их энергий, то гамильтониан системы в экситонном представлении можно записать в виде

$$H_{mn} = (E_{0n} + \alpha_n P) \delta_{mn} + \beta_{mn} (1 - \delta_{mn}) P \quad (m, n = 1, 2, 3),$$

где E_{0n} – энергии экситонных уровней при нулевом давлении, $\alpha_n = dE_n/dP = -\kappa \mathcal{E}_d^{(n)}$ – барические коэффициенты (κ – сжимаемость, $\mathcal{E}_d^{(n)}$ – гидростатический (полносимметричный)

деформационный потенциал), β_{mn} — коэффициенты смешивания уровней под давлением (смешивание при $P = 0$ считается включенным в E_{0n}). Коэффициенты α_n и β_{mn} были определены из условий наилучшего согласия с экспериментом и оказались равными для полос S , T и D , соответственно: $\alpha_1 = +21$; $\alpha_2 = -8,5$; $\alpha_3 = -19$; $\beta_{12} = 4,6$; $\beta_{13} = 0$; $\beta_{23} = 3,3$ мэВ/кбар. Максимальная ошибка для α_n составляла ± 2 мэВ/кбар. Рассчитанные с этими параметрами положения экситонных уровней приведены на рис. 2 сплошными кривыми. Взаимодействие уровней осуществляется через триплетное состояние. После максимального сближения при $P \approx 5,5$ кбар уровень S' отделяется от двух других уровней и приобретает свойства уровня S . Состояния T и D остаются смешанными при всех давлениях.

Отметим, что длинноволновый барический сдвиг полосы D' при $P > 6$ кбар согласуется по знаку со сдвигом края поглощения CsI при сверхвысоких давлениях до 0,6 Мбар^{8,9}.

Используя значение k для CsI при 77К¹⁰, получаем $\mathcal{E}_d^{(1)} = -2,9 \pm 0,3$; $\mathcal{E}_d^{(2)} = +1,2 \pm 0,2$ и $\mathcal{E}_d^{(3)} = +2,7 \pm 0,3$ эВ. Отметим, что для Γ -экситонов, связанных с s -зоной проводимости в KI и RbI, нами получены приближенные значения $\mathcal{E}_d - 2,3$ и $-2,7$ эВ, соответственно. Значения $\mathcal{E}_d^{(1)}$ и $\mathcal{E}_d^{(3)}$ для CsI близки к расчетным деформационным потенциалам для межзонных переходов $\Gamma_8^- \rightarrow \Gamma_6^+$ ($-2,36$ эВ) и $\Gamma_8^- \rightarrow \Gamma_8^+$ (2,74 эВ)⁶. Это позволяет считать, что сдвиг экситонных уровней, в основном, следует сдвигу краев зон. Из этого следует, что в области давлений $\sim 5,5$ кбар происходит пересечение $s(\Gamma_6^+)$ и $d(\Gamma_8^+)$ зон проводимости²⁾. В то же время экситонные состояния принадлежат одной и той же симметрии Γ_{15} и поэтому в соответствии с известным правилом Вигнера — Неймана о непересечении уровней одинаковой симметрии экситонные уровни не пересекаются. Насколько нам известно, такой эффект для экситонов под гидростатическим давлением наблюдается впервые.

Благодарим Ч.Б.Луцика за интерес и поддержку в работе.

Литература

1. *Rashba E.I.*, In: Excitons, ed. E.I.Rashba, M.D.Sturge, North-Holland, Amsterdam, 1982, p. 543.
2. *Lushchik Ch.B.* In: Excitons, ed E.Rashba, M.D.Sturge, North-Holland, Amsterdam, 1982, p. 505.
3. *Sumi A. J.* Phys. Soc. Japan, 1977, 43, 1286.
4. *Toyozawa Y.* Physica, 1983, 117-118 В + С, Part 1, 23.
5. *Onodera Y. J.* Phys. Soc. Japan, 1968, 25, 469.
6. *Rössler U.* Phys. Stat. Sol., 1969, 34, 207.
7. *Буйновски В., Поровски С., Лайсаар А.И.* ПТЭ, 1973, №1, 224.
8. *Asaumi K., Kondo Y.* Solid State Comm., 1981, 40, 715; *Asaumi K.* Phys. Rev. B, 1984, 29, 1118.
9. *Макаренко И.Н., Гончаров А.Ф., Стишов С.М.* Письма в ЖЭТФ, 1983, 38, 449.
10. *Vallin J., Beckman O., Salama K. J.* Appl. Phys., 1964, 35, 1222.
11. *Lynch D.W., Brothers A.D.* Phys. Rev. Lett., 1968, 21, 689.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
12 июля 1984г.

²⁾ Ранее в работе¹¹ на основе исследования CsI при давлениях до 3,4 кбар было сделано предположение о пересечении указанных зон при ~ 7 кбар. В этой работе дублетная структура 5,90 и 5,97 эВ не была разрешена, и \mathcal{E}_d для двух наблюдавшихся полос 5,78 и 6,01 эВ были оценены в $-2,1$ и $2,1$ эВ, соответственно.