

ДИПОЛЬНЫЕ И КВАДРУПОЛЬНЫЕ СВЯЗАННЫЕ ЭКСИТОНЫ В КРИСТАЛЛАХ Cu_2O , ЛЕГИРОВАННЫХ КАДМИЕМ

Ф.И.Крейнгольд, В.И.Цуриков

В спектре поглощения кристаллов Cu_2O : Cd вблизи 1S-экситонов наблюдаются новые узкие линии. Показано, что наблюдаемые линии обусловлены дипольным и квадрупольным переходами на уровни связанных экситонов.

Спектры поглощения и люминесценции экситонов чистых кристаллов Cu_2O исследованы очень подробно [1, 2]. В то же время влияние примесей на оптические свойства этих кристаллов почти не изучено. Одним из авторов [3] было установлено, что легирование кристаллов Cu_2O кадмием приводит к появлению в спектре люминесценции ряда узких линий, обусловленных, по-видимому, аннигиляцией связанных экситонов. Однако, в спектре поглощения связанные экситоны не наблюдались.

В данной работе мы рассматриваем влияние примесей кадмия на спектр поглощения экситонов в кристаллах Cu_2O . Исследовались поликристаллические образцы, приготовленные окислением медно-кадмиевого сплава, и монокристаллы закиси меди, легированные прогретым кадмием.

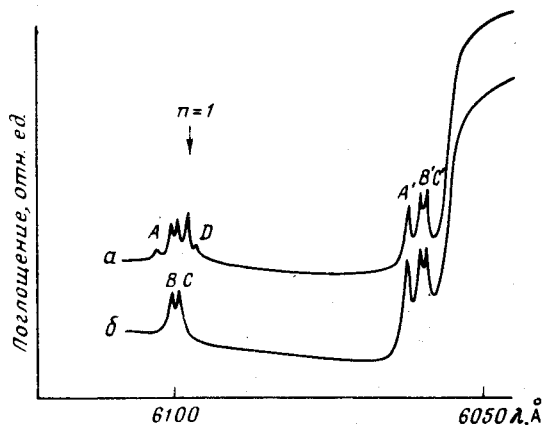
При легировании кадмием высшие члены желтой и зеленой экситонных серий ($n \geq 2$) смещаются в длинноволновую сторону. При этом величина спин-орбитального расщепления валентной зоны сохраняется. Смещение уровней пропорционально концентрации¹⁾ кадмия и при концентрации 1% составляет $\Delta\epsilon \approx -15 \text{ см}^{-1}$. Смещение уровней голубой и синей экситонных серий мы не обнаружили.

Качественные изменения претерпевает спектр поглощения вблизи края зоны экситонов 1S-состояния желтой серии. При внедрении кадмия линия $n = 1$ становится намного слабее, а рядом с ней появляются новые узкие линии поглощения A, B, C, D . Узкие линии поглощения появляются и перед краем (A', B' и C'), обусловленным непрямым переходом в 1S-состояние с рождением Γ_{12}^- -фонона. Особенно отчетливо видны новые линии при $T = 4,2\text{K}$ (рисунок).

Расстояния между линиями, расположенными вблизи $n = 1$ и соответствующими линиями перед краем, совпадают с энергией фонона Γ_{12}^- . Поэтому естественно предположить, что линии A', B', C' являются фоннными повторениями линий A, B и C . Такая интерпретация подтверждается поведением новых линий при одноосном сжатии. Подробные результаты исследования будут опубликованы позже, а здесь отметим следующее. 1) При одной деформации отщепившиеся компоненты линий A, B и C смещаются так, что расстояния между ними и соответствующими компонентами $n = 1$ сохраняются. 2) Характер расщепления линий A, B и C аналогичен характеру расщепления линий A', B' и C' . При этом

¹⁾ Концентрация определялась по содержанию кадмия в сплаве.

расстояния между соответствующими компонентами всегда остаются равными энергии Γ_{12}^- -фонона ($\hbar\omega = 109 \text{ см}^{-1}$). Так как расщепление линии $n = 1$ происходит благодаря снятию вырождения $1S$ -экситонного состояния, а не вследствие расщепления зон, то пункт 1) указывает на генетическую связь линий A, B, C с $1S$ -экситоном. Проявление фононных повторений в виде линий (A', B', C'), а не ступенек, указывает на локализованность этих состояний. Таким образом, в результате легирования закиси меди кадмием образуются связанные экситоны с чрезвычайно малыми энергиями связи, $E_{\text{св}} = 3,5; 6,5; 12 \text{ см}^{-1}$; для линий C, B и A соответственно.



Микрофотограмма спектра поглощения кристалла $\text{Cu}_2\text{O}:\text{Cd}$. $k \parallel C_2$, $T = 4,2 \text{ К}$.
 $a - E \parallel C_4$, $b - E \perp C_4$

Относительно интенсивный дублет B, C оптически изотропен и, по-видимому, имеет дипольную природу. Линии A и D в поглощении ведут себя подобно квадрупольной линии экситона $n = 1$. Они также полностью поляризованы (вектор поляризации $E \parallel C_4$) при наблюдении вдоль оси второго порядка и неполяризованы при наблюдении вдоль других кристаллографических осей Cu_2O . Так как электрические и магнитные дипольные переходы в анизотропных центрах, возможных в кубическом кристалле, приводят к полной оптической изотропии [4], то анизотропию поглощения можно объяснить только квадрупольным характером перехода в эти состояния. По-видимому, это первое наблюдение квадрупольного поглощения связанными экситонами в кубическом кристалле.

Заслуживает внимания тот факт, что энергия связи образующихся локализованных экситонов намного меньше, чем следовало бы ожидать. Для экситонов, связанных на примесных центрах, должно выполняться соотношение $E_{\text{св}} > 0,055E_D$ [6]. В нашем случае энергия связи не превышает одной сотой от энергии диссоциации примеси¹⁾. Чтобы объяснить такое расхождение, мы должны предположить возможность образования связанных экситонов малого радиуса. Тогда местное изменение параметров решетки (например, деформация) может сопровождаться отщеплением от зоны $1S$ -экситонов локальных состояний. Линию поглощения

¹⁾ Очень мелкие связанные экситоны наблюдались также в кристаллах SnO_2 [5].

D , расположенную с коротковолновой стороны от $n = 1$, можно объяснить возникновением псевдолокального экситонного состояния. Если учесть, что радиус $1S$ -экситонов желтой серии в Cu_2O сравним с размером элементарной ячейки, такое предположение кажется правдоподобным.

В рамках такой модели понятно наблюдаемое уменьшение интенсивности линии поглощения $1S$ -экситона. Заметим, что анизотропия поглощения связанного экситона, аналогичная анизотропии поглощения $1S$ -экситона, может возникнуть как при локализации экситона в области с кубической симметрией, так и в области с пониженной (например, тетрагональной) симметрией.

Ленинградский
государственный университет
им. А.А.Жданова

Поступила в редакцию
15 июня 1978 г.

Литература

- [1] Е.Ф.Гросс. УФН, **76**, 443, 1962.
 - [2] Ф.И.Крейнгольд, Б.С.Кулинкин. Оптика и спектроскопия, **33**, 706, 1972.
 - [3] Ф.И.Крейнгольд. Оптика и спектроскопия, **30**, 286, 1971.
 - [4] А.А.Каплянский, П.П.Феофилов. УФН; **76**, 201, 1962.
 - [5] В.Т.Агемян. Письма в ЖЭТФ, **27**, 574, 1976.
 - [6] J. J. Hoffield. Proc. Internat. Conf. Phys. Semicond, Paris, 1964. Paris, 1964, p. 725.
-