

ОБМЕННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ В ВОЗБУЖДЕННЫХ S-СОСТОЯНИЯХ ЭКСИТОНА

В. Т. Агекян, Д. А. Степанов

Одновременное воздействие электрического поля и одноосного сжатия позволило наблюдать обменно-деформационное расщепление возбужденных S -состоиний в спектре поглощения закиси меди. Установлено, что обменное расщепление возбужденных состояний велико и его отношение к расщеплению основного состояния отличается от теоретического.

Короткодействующее обменное взаимодействие впервые изучалось экспериментально и теоретически на основном состоянии ($1S$) экситона желтой серии в закиси меди [1–3]. В дальнейшем подобные исследования были проведены на других полупроводниковых кристаллах [4–8], однако все они ограничивались основным состоянием, поскольку самые общие соображения указывают на быстрое ослабление обменных эффектов с ростом радиуса экситона.

Валентная зона закиси меди расщеплена спин-орбитальным взаимодействием на орбитально невырожденную зону $^4\Gamma_7^+$ и дважды вырожденную $^4\Gamma_8^+$. S -экситоны желтой серии связаны с возбуждением электрона из верхней валентной зоны $^2\Gamma_7^+$ в зону проводимости $^2\Gamma_6^+$ (обе зоны обладают лишь крамерсовым вырождением). Обменное взаимодействие вызывает расщепление уровней S -экситонов на невырожденный уровень $^1\Gamma_2^+$ (параэкситон) и трижды вырожденный уровень $^3\Gamma_5^+$ (ортогоэкситон). Величина обменного расщепления nS -состояний

$$\Delta_0^n \sim I_0 | \Phi^{(n)}(0) |^2 \Omega$$

где I_0 – обменный интеграл, построенный из блоховских функций обеих зон, $| \Phi^{(n)}(0) |$ – модуль экситонной волновой функции, nS – состояния в точке $r_0 = 0$ (r_0 – экситонный радиус), Ω – объем элементарной ячейки.

Квадрупольный уровень $^3\Gamma_5^+$ $1S$ -состояния легко наблюдается в спектре поглощения, тогда как уровень $^1\Gamma_2^+$, соответствующий более высокой мультипольности, проявляется лишь в люминесценции [9], вследствие того, что он лежит на 100 см^{-1} ниже уровня $^3\Gamma_5^+$ ($\Delta_0^{(1)} = 100 \text{ см}^{-1}$).

Для экситонов nS с $n > 1$ положение уровней $^3\Gamma_5^+$ можно определить по дипольному возгоранию в электрическом поле, тогда как уровни $^1\Gamma_2^+$ экспериментально не наблюдаются вообще. Таким образом, величина обменного расщепления известна только для $n = 1$.

Возникающая при одноосном сжатии кристалла анизотропия обменного взаимодействия вызывает дальнейшее снятие вырождения – расщепление уровня $^3\Gamma_5^+$, главным образом, из-за появления энергетического члена, линейно зависящего от деформации и обмена. Согласно [10]

это расщепление

$$\Delta_{\text{од}}^{(n)} = \frac{\Delta_{\text{co}}^{(n)} l \epsilon}{\Delta_{\text{co}}},$$

где l – комбинация деформационных констант валентных зон, ϵ – tensor деформации, Δ_{co} – спин-орбитальное расщепление валентной зоны. Второй энергетический член $\Delta_{\text{co}}^{(n)} \epsilon$, учитывающий анизотропию собственно обменного взаимодействия из-за деформационного изменения зонных функций, на порядок меньше, чем $\Delta_{\text{од}}^{(n)}$.

Из (2) видно, что измерение обменно-деформационного расщепления возбужденных S -состояний позволяет экспериментально определить зависимость $\Delta_{\text{од}}^{(n)}$ от главного квантового числа экситона.

К монокристаллу закиси меди одновременно прикладывались электрическое поле и одноосное сжатие до 20 кН/mm^2 . Первое возмущение приводит к возгоранию¹⁾ в спектре поглощения nS -линий экситона с симметрией ${}^3\Gamma_s^+$, второе вызывает их обменно-деформационное расщепление, величина которого практически не зависит от напряженности электрического поля.

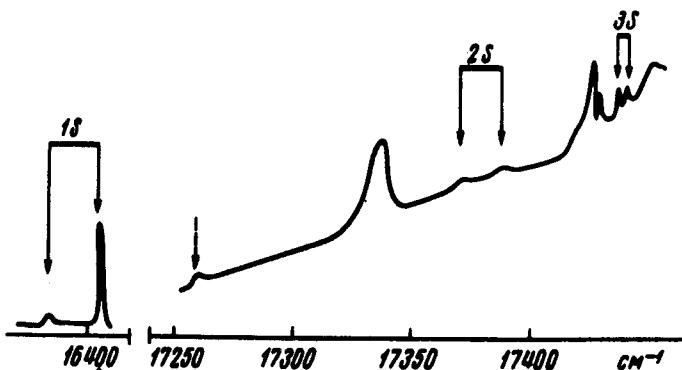


Рис.1. Спектр поглощения одноосно сжатого кристалла Cu_2O в электрическом поле. $p = 8 \text{ кН/mm}^2$, $E = 3 \text{ кВ/см}$. Пунктирная стрелка – слабо расщепляющееся состояние ${}^3\Gamma_s^+$ 1S-экситона зеленой серии ($T = 4,2 \text{ К}$)

Установлено, что отношение энергий обменно-деформационного расщепления $\Delta_{\text{од}}^{(n)}$ уровней, классифицированных Хакеном и Никитиным [12, 13] как 1S, 3S, 4S, равно $1 : 0,8 : 0,2$ (рис.1), при этом $\Delta_{\text{од}}^{(1)}$ составляет около $2,5 \text{ см}^{-1}$ при давлении $p = 1 \text{ кН/mm}^2$. Что же касается уровня, классифицированного в [13] как 2S (линия 17260 см^{-1}), то его расщепление очень слабо и проявляется лишь как уширение линии. При сильно расщепленных уровнях 1S и 3S уровень 2S не может оставаться нерасщепленным, поэтому классифицировать S -уровни следует иначе – на рис.2 мы даем новую классификацию.

По нашему мнению, линия 17260 см^{-1} – переход на уровень ${}^3\Gamma_s^+$ 1S-экситона зеленой серии. Находящаяся поблизости линия 17150 см^{-1} уже

¹⁾ В [11] установлено, что все возгорающиеся линии, интерпретируемые как состояния экситона, имеют симметрию ${}^3\Gamma_s^+$.

ранее была определена как переход на уровень ${}^3\Gamma_4^+ + {}^2\Gamma_3^+$ 1S-экситона зеленой серии. Этими тремя состояниями исчерпывается набор уровней экситона 1S зеленой серии [14, 15]. Более слабое по сравнению с желтой серией обменно-деформационное расщепление зеленой серии должно следовать из конкретной комбинации деформационных констант l в (2).

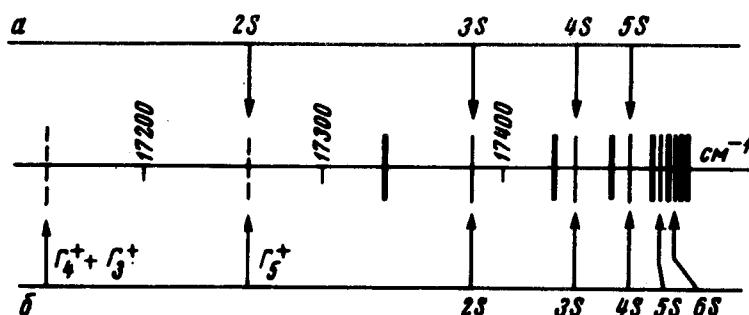


Рис 2 Классификация nS -состояний экситона желтой серии:
а – согласно [12, 13], б – согласно настоящей работе. Жирные линии – nR -состояния экситона с $n > 2$, пунктирные – 1S-экситон зеленой серии

Обратимся к сравнению обменных расщеплений $\Delta_0^{(n)}$ уровней, которые мы классифицируем как 1S, 2S, 3S. Во-первых, согласно (2) величины $\Delta_{\text{од}}^{(n)}$ должны относиться друг к другу как $\Delta_0^{(n)}$, во-вторых,

$\Phi^{(n)}(0)|^2$ в (1) равно $(\pi n^3 a_3)^{-1}$ где a_3 – боровский радиус экситона. Экспериментально полученные соотношения величин $\Delta_0^{(n)} - 1 : 0,8 : 0,2$ расходятся с теоретической зависимостью n^{-3} , объяснение чему следует искать в неприменимости приближения экситона большого радиуса к 1S-экситону желтой серии. На это указывает и сильное отличие энергии связи 1S-экситона от расчетной, причем новая классификация nS -уровней усугубляет это расхождение. В то же время отношение $\Delta_0^{(2)} / \Delta_0^{(3)}$ совпадает с теоретическим, хотя сами величины $\Delta_0^{(2)}$ и $\Delta_0^{(3)}$ больше, чем предсказывает теория.

Ленинградский государственный
университет им. А.А.Жданова

Поступила в редакцию
16 января 1975 г.

Литература

- [1] Е.Ф.Гросс, А.А.Каплянский. ФТТ, 2, 2968, 1960
- [2] Е.Ф.Гросс, А.А.Каплянский, В.Т.Агекян. ФТТ, 4, 1009, 1961.
- [3] R.J.Elliott. Phys.Rev., 124, 340, 1961.
- [4] O.Akimoto, H.Hasegawa. Phys.Rev. Lett., 20, 17, 1968
- [5] J.E.Rowe, F.H.Polac, M.Gardona. Phys.Rev. Lett., 20, 18, 1969.
- [6] T.Koda, D.W.Langer. Phys. Rev. Lett., 20, 2, 1969.
- [7] Г.Л.Бир, Г.Е.Пикус, Л.Г.Суслина, Д.Л.Федоров. ФТТ, 12, 1187, 1970.

- [8] Л.А.Агеев, В.К.Милюславский, Т.И. Максименко ФТТ, 16, 2894, 1974.
- [9] Ф.И.Крейнгольд , В.Л.Макаров. ИАН СССР, 37 , 714, 1973.
- [10] В.А.Киселев , Ф.Г.Жилич. ФТТ , 13, 2398 , 1971.
- [11] V.T.Agekyan, B.S.Monoson, I.P.Shiriapov. Phys. Stat.Solidi (b) 66, 359, 1974.
- [12] J.L.Deiss, J.B.Grun, S.Nikitine. J.de Phys ., 23, 159, 1962.
- [13] H.Haken. Proc. Int. Conf. Semicond. Phys. Exeter, 1962.
- [14] В.Т.Агекян, ФТП, 6, 398, 1972.
- [15] J.L.Deiss, A.Danois. Surface Science, 37, 804, 1973.
-