

БИЭКСИТОН В КРИСТАЛЛЕ Cu_2O ¹⁾

Е.Ф.Гросс, Ф.Н.Крейнгольд

Исходя из намерения подвергнуть тщательному исследованию процессы образования и распада биекситонов и явления, связанные с конденсацией экситонов в кристаллах, если таковые существуют, мы предприняли опыты по исследованию спектра излучения кристалла Cu_2O при низких температурах в жидком гелии при $T = 2^\circ\text{K}$ и оптическом возбуждении (ртутная лампа ДРШ - 500), когда можно ожидать накопления до больших концентраций квадрупольных экситонов на уровне $n = 1$ желтой [1] серии Cu_2O .

Мы выбрали для наших опытов Cu_2O потому, что экситоны в этом кристалле обладают большой энергией связи и поэтому позволяют проводить более детально и дифференцировано те исследования, которые мы наметили. В самом деле, если энергия связи непрямого экситона в германии: $W_{\text{непрям}}^{\text{Ge}} = 4 \text{ мэв}$, а прямого $W_{\text{прям}}^{\text{Ge}} = 1,2 \text{ мэв}$, то в Cu_2O энергия связи $W^{\text{Cu}_2\text{O}}$ "желтого" [1] и "зеленого" [2] экситонов на два порядка больше, чем в Ge: $W_{\text{желт}}^{\text{Cu}_2\text{O}} = 140 \text{ мэв}$; $W_{\text{зел}}^{\text{Cu}_2\text{O}} = 200 \text{ мэв}$. Отсюда следует, что и высшие уровни экситонов в Cu_2O ($n = 2, 3, 4, 5, 6, \dots$) энергетически расставлены гораздо шире, чем, например, у Ge, что дает возможности для более детальных исследований.

В уже опубликованной работе [3] мы исследовали спектр люминесценции Cu_2O при $T = 4,2^\circ\text{K}$.

В спектре излучения Cu_2O при $T = 2^\circ\text{K}$ мы обнаружили в красной части спектра серию из пяти новых размытых, относительно слабых, линий, сходящихся в длинноволновую (красную) часть спектра и сильно зависящих от температуры: новые линии видны при $T = 2^\circ\text{K}$ и исчезают при $T = 4,2^\circ\text{K}$. Первый член $n = 2$ серии наблюдается отчетливо; высшие члены $n = 3, 4, 5$, и 6 серии видны не так отчетливо потому, что они затемнены в спектре налагающейся на них сплошной полосой люминесценции Cu_2O , примесного, или дефектного происхождения.

Частоты ν'_n линий новой, красной серии излучения Cu_2O хорошо удовлетворяют серийной водородоподобной зависимости:

$$\nu'_n = \nu'_\infty + \frac{R'}{n^2} = 15135 + \frac{1200}{n^2} \text{ см}^{-1} \dots\dots\dots (1)$$

$$n = 2, 3, 4, 5, 6.$$

где постоянная Ридберга $R' = 1200 \text{ см}^{-1} = R$ - постоянной Ридберга "зеленой"

¹⁾ Результаты этого исследования были доложены 2 декабря 1969г. в Институте полупроводников АН СССР в Ленинграде и 28 мая 1970г. в Институте твердого тела на Всесоюзном семинаре "Экситоны в кристаллах" в Черноголовке (Москва).

серии экситона в поглощении Cu_2O [2] :

$$\nu_n = \nu_\infty - \frac{R}{n^2} = 18587 - \frac{1200}{n^2} \text{ см}^{-1} \dots\dots\dots (2)$$

$$n = 2, 3, 4, 5 \dots$$

Таблица 1

Наблюденные и вычисленные по формуле (1) значения частот ν'_n линий "красной" серии излучения биэкситона Cu_2O

квантовые числа n	Наблюденные $\nu'_n, \text{см}^{-1}$	Вычисленные $\nu'_n, \text{см}^{-1}$
2	15434	15435
3	15252	15268
4	15210 ¹⁾	15210
5	15183 ¹⁾	15183
6	15164	15168

1) Экспериментальные значения частот ν'_4 и ν'_5 были использованы для вычисления постоянных сериальной формулы (1).

В таблице 1 сопоставлены частоты ν'_n наблюдаемых нами линий "красной" серии излучения Cu_2O и вычисленных по формуле (1). Вычисленные и наблюдаемые значения частот (за исключением члена $n = 3$) хорошо совпадают.

Как видно, линии зеленой серии поглощения экситона Cu_2O и новой красной серии в излучении Cu_2O сходятся в спектре в противоположных направлениях и поэтому эти серии хвостами направлены в разные стороны.

На основании вышеизложенных экспериментальных фактов мы рассматриваем наблюдаемый нами спектр (красную серию) как спектр излучения биэкситона в кристалле Cu_2O при его рекомбинационном распаде, в процессе которого один экситон биэкситона аннигилирует, и при рекомбинационном взаимодействии типа так называемого Оже-процесса за счет этой энергии другой экситон возбуждается на высшие энергетические уровни и в возбужденном состоянии делается свободным. В рекомбинационном излучении биэкситона этот процесс должен проявиться в много линейчатой серии линий излучения в длинноволновой области спектра.

В результате такого внутри-серийного процесса возбуждения одного из экситонов биэкситона, как легко понять, в спектре излучения Cu_2O должна появиться водородоподобная серия линий, сходящихся в длинноволновую сторону спектра по выше приведенной формуле (1), что и наблюдается на опыте.

Как показывают соотношения (1) и (2), сумма частот $(\nu_n + \nu'_n)$

$$\nu_n + \nu'_n = \nu_\infty + \nu'_\infty = 33722 = \text{const} \dots\dots\dots (3)$$

независимо от квантового числа n и, как показывает таблица 2, действительно подтверждается опытом. Соотношение (3), а также равенство постоянных Ридберга зеленой серии экситона Cu_2O формула (2) и красной серии биэкситона Cu_2O формула (1) показывают, что биэкситон в Cu_2O , давший спектр излучения, наблюдаемый нами, состоял из одинаковых "зеленых" экситонов и, таким образом, был "зеленый" биэкситон.

Таблица 2

Постоянство суммы частот

$$\nu_n + \nu'_n = \nu_\infty + \nu'_\infty = 33722 \text{ см}^{-1} = \text{const}$$

Квантовые числа n	Частота ν_n линий зеленой серии экситона Cu_2O в поглощении в см^{-1}	Частоты ν'_n линий серии биэкситона Cu_2O в излучении, в см^{-1}	Сумма $(\nu_n + \nu'_n)$, см^{-1}
2	18295	15434	33719
3	18454	15252	33706
4	18512	15210	33722
5	18539	15183	33722
6	18554	15164	33718
			Среднее (без $n = 3$) 33720

Спектр излучения биэкситона, наблюдаемый нами, позволяет определить энергию связи Δ зеленого биэкситона: $\Delta = 150 \text{ см}^{-1}$ и это значение удовлетворительно согласуется с величиной связи для зеленого биэкситона $w_{\text{зел}}^{\text{Cu}_2\text{O}} = 93 \text{ см}^{-1}$, полученной нами по теоретическим оценкам на основании работы [4].

Резкая температурная зависимость спектра излучения Cu_2O , наблюдаемого нами и описанного здесь, позволяет относить его к связанному состоянию экситонов — биэкситону, а не к явлениям, которые могут наблюдаться при столкновении экситонов без образования устойчивых связанных состояний.

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

Ленинградский государственный университет
им. А.А.Лоданова

Поступила в редакцию
17 июня 1970 г.

Литература

- [1] Е.Ф.Гросс, Н.А.Каррыев. ДАН СССР, 84, 471, 1952.
- [2] Е.Ф.Гросс, Б.П.Захарченя. ДАН СССР, 90, 745, 1953; Е.Ф.Гросс, Б.П.Захарченя, Н.М.Рейнов. ДАН СССР, 99, 231, 1954.
- [3] Е.Ф.Гросс, Ф.И.Крейнгольд. Письма в ЖЭТФ, 7, 281, 1968.
- [4] R.R.Sharma. Phys. Rev., 170, 770, 1958; 171, 36, 1968.