

## БИЭКСИТОН В КРИСТАЛЛЕ $\text{Cu}_2\text{O}$

О. И. Львов, П. П. Павинский

Недавно сообщалось [1] о наблюдении в спектре люминесценции кристалла  $\text{Cu}_2\text{O}$  аномальной водородоподобной серии, сходящейся не в коротковолновую, как обычно, а в длинноволновую область спектра. Серия была интерпретирована как спектр излучения биэкситона, с превращением его в экситон зеленой серии (см. обзор [2]). Аномальная последовательность линий новой серии объясняется тем, что начальным уровнем при излучении кванта является электронное возбужденное состояние решетки (биэкситон) с энергией возбуждения  $33720 \text{ см}^{-1}$ , приблизительно в два раза превышающей энергию возбуждения основных экситонов желтой или зеленой серии.

В работе [1] предлагается также вариант структуры биэкситона. На основании приведенных экспериментальных сведений авторы заключают, что биэкситон в  $\text{Cu}_2\text{O}$  состоит из двух одинаковых экситонов

зеленой серии с суммой частот, превосходящей указанные выше уровни на  $150 \text{ см}^{-1}$ . Последняя величина интерпретируется как энергия связи биэкситона по отношению к его диссоциации.

Отметим, что с точки зрения соответствия экспериментальным данным [1, 2] предложенная модель обладает тремя существенными недостатками: а) модель не объясняет весьма резкой температурной зависимости наблюдаемого спектра новых линий излучения, т. е. того факта, что линии появляются при  $2^\circ\text{K}$  и исчезают уже при  $4^\circ\text{K}$ . Предположенная энергия связи  $150 \text{ см}^{-1}$  не должна приводить к столь сильному изменению интенсивности на интервале всего только двух градусов Кельвина; б) система из двух одинаковых по симметрии экситонов при медленных столкновениях не допускает оптического перехода в конечное экситонное состояние в дипольном приближении. Как выяснено в работе [3], вероятность такого перехода равна нулю; в) линия "зеленого экситона"  $n = 1$ , не наблюдается в излучении даже при крайне низких температурах. Это указывает на отсутствие накопления их в кристалле, необходимого для образования путем столкновения заметной концентрации биэкситонов.

В настоящей работе мы хотим предположить другую модель, учитывая как энергетические соображения, так и условия возможности излучения биэкситона, упомянутые выше. Анализ энергетического спектра экситонного поглощения света в  $\text{Cu}_2\text{O}$  (желтой и зеленой серий) позволяет сделать выбор двух экситонных состояний, суммарная энергия которых близка к  $32720 \text{ см}^{-1}$ . Одно из этих состояний есть долгоживущий квадрупольный экситон  $n = 1$  желтой серии. Концентрация этих экситонов, даже при очень низких температурах, может быть столь велика, что несмотря на малую силу осциллятора, наблюдается прямой излучательный переход из состояния  $n = 1$  в основное состояние кристалла. Наиболее вероятно, что вторым экситоном, участвующим в образовании биэкситона, является экситон  $n = 2$  той же желтой серии.

Сумма энергии возбуждения экситонов  $n = 1$  и  $n = 2$  желтой серии при  $T = 4,2^\circ\text{K}$  равна  $33733,3 \text{ см}^{-1}$  и равна  $33738,1 \text{ см}^{-1}$  при  $T = 4,2^\circ\text{K}$ . Если принять за уровень биэкситона экспериментальную величину  $33720 \text{ см}^{-1}$ , то энергия связи получается равной  $13,3 \text{ см}^{-1}$  при  $T = 4,2^\circ$  и  $18,1 \text{ см}^{-1}$  при  $T = 1,3^\circ\text{K}$ . Линейная интерполяция между этими двумя значениями дает величину  $\Delta E = 16,9 \text{ см}^{-1}$  для  $T = 2^\circ\text{K}$ .

Так как продолжительность жизни состояния с энергией связи  $\Delta E$  по отношению к тепловому распаду в основном определяется множителем  $\exp[\Delta E/kT]$ , мы приходим к выводу, что время жизни биэкситона ( $n = 1$ ,  $n = 2$  желтой серии) по отношению к тепловому распаду при  $T = 2^\circ\text{K}$  будет примерно в 3000 раз больше, чем при  $T = 4,2^\circ\text{K}$ . Это соответствует наблюдению, т. е. тому факту, что серия появляется лишь при температуре  $2^\circ\text{K}$  [1]. Как видно отсюда, наблюдаемая температурная зависимость свидетельствует об очень малой энергии связи биэкситона в кристалле  $\text{Cu}_2\text{O}$ , примерно на порядок величины ниже той, которую можно ожидать на основании теории типа II армь [4], рассматривающей биэкситон как систему четырех легких квазичастиц, подобную бипозитронию. Как показал Шмидт [5], энергия связи экс-

тонов в биэкситоне существенным образом зависит от поляризующего действия легких частиц на решетку кристалла. Корректный учет поляризации должен приводить к значительному понижению энергии связи биэкситона.

Одним из свидетельств в пользу биэкситонного механизма люминесценции новой серии могло бы быть установление зависимости квантового выхода люминесценции от интенсивности  $I$  возбуждающего излучения. Естественно считать, что интенсивность люминесценции пропорциональна стационарной концентрации биэкситонов  $N_b$ :

$$N_b = A \tau N_1 N_2, \quad (1)$$

где  $\tau$  — время жизни биэкситона,  $N_1$  и  $N_2$  — стационарные концентрации экситонов  $n = 1$  и  $n = 2$  желтой серии.  $A$  — константа реакции образования биэкситона.

Мы предположили выше, что концентрация экситонов  $n = 1$  велика. Поэтому в кинетическом уравнении для  $N_1$  следует учесть как мономолекулярную реакцию с характерным временем  $\tau_1$ , так и бимолекулярную реакцию с константой  $\gamma_1$ . Для  $N_2$  мы ограничиваемся мономолекулярной реакцией со временем жизни  $\tau_2$ . При этих предположениях концентрации  $N_1$  и  $N_2$  легко выражаются через вышеупомянутые коэффициенты. Используя формулы работы [6], получаем следующее выражение для зависимости  $N_b$  от  $I$ :

$$N_b = \frac{A a_2 \tau \tau_2}{2 \gamma_1 \tau_1} (\sqrt{1 + 4 a_1 \gamma_1 \tau_1^2 I} - 1) I. \quad (2)$$

При малых интенсивностях света  $I$ , когда подкоренное выражение в (2) близко к единице, получается квадратичная зависимость  $N_b$  от интенсивности света  $I$ . С ростом  $I$  эта зависимость переходит в соотношение.

Коэффициенты  $a_i$  в кинетическом уравнении определяют скорость возбуждения экситонов сорта  $i$

$$N_b = \text{const } I^{3/2}. \quad (3)$$

Как показано в [7] интенсивность люминесценции биэкситона в  $\text{CuCl}$  при малой мощности возбуждающего излучения пропорциональна квадрату интенсивности света. При высоких интенсивностях возбуждения нарастание квантового выхода люминесценции уменьшается. Данные работы [7] для кристалла  $\text{CuCl}$  согласуются с зависимостью люминесценции от интенсивности света, предсказываемой формулой (2).

## Литература

- [ 1 ] Е.Ф.Гросс, Ф.И.Крейнгольд 'Письма в ЖЭТФ, 12, 98, 1970.
  - [ 2 ] Е.Ф.Гросс. УФН, 63, 575, 1957.
  - [ 3 ] F. Culic. Чехосл. физ. ж., 3, 16, 194, 1966.
  - [ 4 ] R.Sharma. Phys. Rev., 170, 770; 171, 36, 1968.
  - [ 5 ] P.P.Schmidt. J. Phys. C. (Solid State Physics), Ser. 2, 2, 785, 1969.
  - [ 6 ] О.И.Львов, П.П.Павинский. Вестник ЛГУ, №22, 23, 1962.
  - [ 7 ] A.Musyrowicz, J.B.Grun, R.Levy, A.Bivas, S.Nikitine, Phys. Lett., 26A, 12, 615, 1968.
-