

УДК 535.37

© 1990

РЕЛАКСАЦИЯ $1s$ ЭКСИТОНОВ В КРИСТАЛЛЕ Cu_2O

Ф. И. Крейнгольд, К. Ф. Лидер

Исследуются спектры возбуждения свободных и связанных экситонов в кристалле Cu_2O . В спектре возбуждения $1s$ ортоэкситонов обнаружена линия непрямого перехода, положение которой зависит от длины волны регистрируемого света. Показано, что скорость межзонной релаксации экситонов много больше скорости внутризонного рассеяния на продольных акустических фононах.

В кристалле закиси меди край поглощения определяется $1s$ экситонами желтой серии. Основное состояние расщепляется обменным взаимодействием на триплетное Γ_5^+ (ортоэкситон) и синглетное Γ_3^+ (параэкситон) [1]. Прямой переход на уровень Γ_5^+ разрешен в квадрупольном приближении, он наблюдается в поглощении [2] и люминесценции [3]. Прямой переход на уровень Γ_3^+ запрещен в дипольном и квадрупольном приближении и не влияет на формирование края поглощения.¹ В то же время уровень параэкситона оказывает существенное влияние на кинетику экситонов при низких температурах, так как расположен глубже ортоэкситона ($\Delta E = 96 \text{ см}^{-1}$) [4]. В связи с этим было интересно исследовать зависимость скорости орто—пара релаксации от длины волны возбуждающего света. В спектре возбуждения люминесценции ортоэкситонов рядом с линией $n=1$ обнаружена линия, возникающая при непрямом переходе в зону Γ_5^+ ; положение новой линии зависит от длины волны регистрируемого света. При возбуждении связанных экситонов наблюдалось разгорание линий примесных состояний.

Были исследованы кристаллы Cu_2O чистые и легированные кадмием. Возбуждение люминесценции велось перестраиваемым лазером на красителе. Измерения проводились при $\approx 2 \text{ К}$.

Как было сказано, возбуждение Γ_3^+ экситонов может происходить практически только путем возбуждения Γ_5^+ экситонов с последующей их релаксацией на уровень Γ_3^+ . В результате спектр возбуждения параэкситона определяется спектром поглощения ортоэкситонов (рис. 1). Наблюдаются линия $n=1$, соответствующая прямому возбуждению ортоэкситонов, и две ступеньки, соответствующие возбуждению ортоэкситонов с одновременным рождением фононов Γ_5^- (87 см^{-1}) и Γ_3^- (109 см^{-1}). Для измерений использовались толстые кристаллы ($\sim 1 \text{ мм}$), поэтому в области непрямого перехода с фононом Γ_3^- свет поглощался полностью. Незначительный спад интенсивности люминесценции параэкситонов, возникающий при увеличении частоты возбуждающего света за порогом Γ_3^- , определяется, по-видимому, влиянием поверхностной рекомбинации. Видно, что скорость орто—пара релаксации практически не зависит от кинетической энергии ортоэкситонов. В процессе релаксации $1s$ экситонов наряду с межзонной происходит внутризонная релаксация, поэтому интересно рассмотреть внутризонную релаксацию отдельно.

¹ Разрешен не прямой переход на уровень параэкситона с фононом Γ_5^- , однако вероятность этого перехода чрезвычайно мала и в поглощении он обычно не наблюдается.

Внутризонная релаксация ортоэксионов в Cu_2O рассматривалась ранее [5]. В спектре возбуждения ортоэксионов в отличие от спектра возбуждения параэксионов наблюдается осциллирующая структура (рис. 2). Эта структура объясняется рассеянием экситонов на продольных акустических фононах. Сопоставление спектров возбуждения орто- и параэксионов позволяет утверждать, что скорость орто-пара релаксации существенно больше скорости внутризонного рассеяния экситонов на LA-фононах.

При исследовании релаксации экситонов в заданное состояние $k \neq 0$,

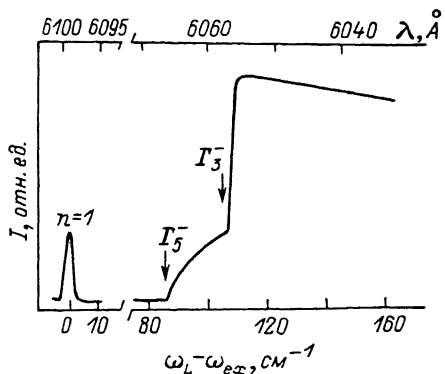


Рис. 1. Спектр возбуждения параэкситона Γ_2^+ (полосы фононного повторения с симметрией Γ_5^- , $\lambda_s \approx 6166 \text{ \AA}$).

$T = 2 \text{ K}$. ω_L, ω_{ex} — частоты возбуждения и бесфононного излучения ($n = 1$).

когда регистрировались спектры возбуждения различных участков полосы фононного повторения Γ_3^- , с коротковолновой стороны от $n=1$ была обнаружена дополнительная линия (рис. 2). Положение новой линии зависит от длины волны регистрируемого света λ_s . Появление этой линии вызвано непрямыми переходами в зону ортоэксионов, а возможность наблюдения ее обусловлена постановкой эксперимента (см. схему переходов на рис. 2, a). Действительно, вероятность непрямого перехода экситонов из $k=0$ ($n=1$)

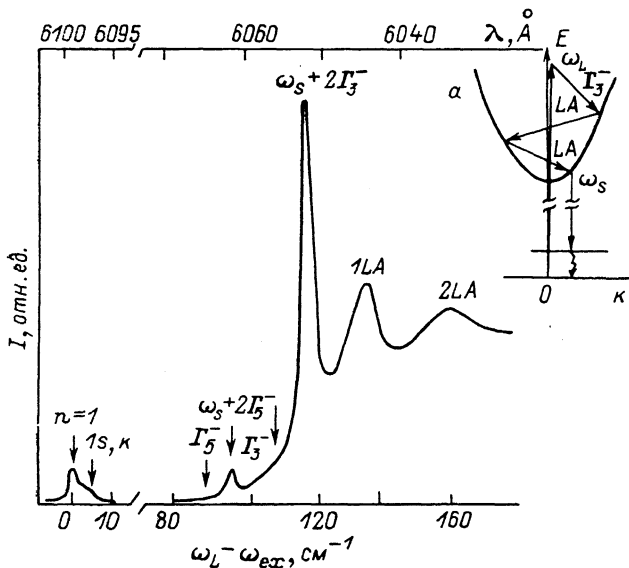


Рис. 2. Зависимость интенсивности излучения ортоэксионов с $k=3.3 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$ от энергии падающего света.

$T=2 \text{ K}$. Обозначения те же, что и на рис. 1, ω_s — частота излучения.

в $k \neq 0$ при 2 К мала, поэтому становятся заметными конкурирующие процессы с нарушением правил отбора по волновому вектору. Легирование кристаллов кадмием увеличивает относительную интенсивность линий непрямого перехода. Зависимость положения линии непрямого перехода от λ_s приведена на рис. 3.

В кристаллах $\text{Cu}_2\text{O} : \text{Cd}$ при гелиевых температурах наблюдается богатый спектр связанных экситонов [6, 7]. Спектр возбуждения одной из систем связанных экситонов с энергией связи $E_{cb} \approx 70 \text{ см}^{-1}$ ($\lambda_0 \approx 6161 \text{ \AA}$)

приведен на рис. 4. Отличительная особенность этого спектра — появление триплета A, B, C с длинноволновой стороны от $n=1$ на расстоянии около 10 см^{-1} . В спектре поглощения исследуемых кристаллов дополни-

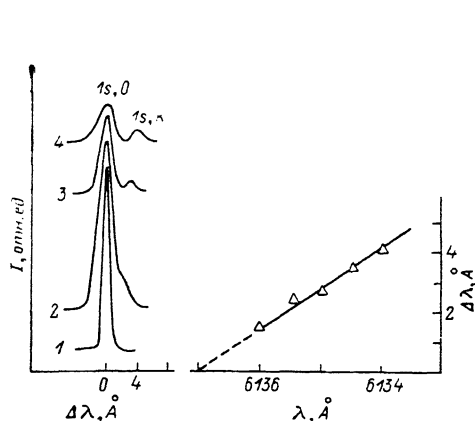


Рис. 3. Зависимость положения линии непрямого перехода ($1s, k$) в зону ортоэкситона от длины волны регистрируемого света λ_s . $T=2 \text{ К}$.

$\Delta\lambda$ (Å) — расстояние между $n=1$ и линией непрямого перехода. λ_s (Å): 1 — 6137, 2 — 6136, 3 — 6135, 4 — 6134.

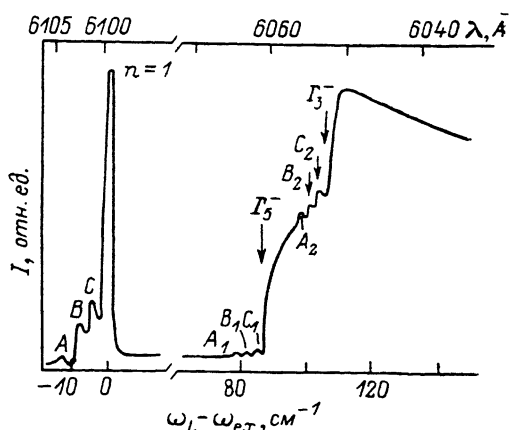


Рис. 4. Спектр возбуждения связанного параэкситона ($E_{св} \approx 70 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_s = 6161 \text{ Å}$). $T=2 \text{ К}$.

A, B, C — бесфононные линии локализованного ортоэкситона; A_1, B_1, C_1 и A_2, B_2, C_2 — фононные повторения локализованного ортоэкситона.

тельных линий поглощения вблизи $n=1$ обнаружить не удалось. Ранее соответствующие линии наблюдались в спектре поглощения $\text{Cu}_2\text{O} : \text{Cd}$ при больших концентрациях кадмия и были интерпретированы как линии локализованного ортоэкситона [6]. Появление линий локализованного ортоэкситона в спектре возбуждения экситонов с $E_{св} \approx 70 \text{ см}^{-1}$ свидетельствует о том, что обе системы связаны на одном центре. Более того, прямое возбуждение связанных экситонов эффективнее, чем в процессе релакса-

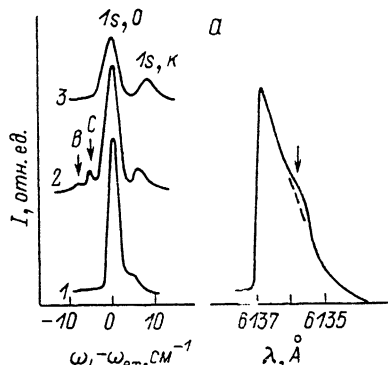


Рис. 5. Резонансное возбуждение связанного параэкситона ($E_{св} \approx 7 \text{ см}^{-1}$).

λ_s (Å): 1 — 6136, 2 — 6135,5, 3 — 6135,а — спектр люминесценции того же образца. Стрелкой указано положение линии излучения связанного параэкситона.

ции свободных экситонов. Перед каждой из ступенек отчетливо видны узкие линии, соответствующие повторениям локализованного ортоэкситона с фонами 87 и 109 см^{-1} . Надо отметить закономерное увеличение интенсивности фонной ступеньки Γ_3^- в ряду ортоэкситон—параэкситон—связанный экситон (рис. 2, 1, 4), что отражает увеличение времени жизни соответствующих состояний ($\sim 10^{-7}$, 10^{-5} и 10^{-3} с). При исследовании зависимости спектра возбуждения ортоэкситонов от λ_s в кристаллах $\text{Cu}_2\text{O} : \text{Cd}$ нами было обнаружено резонансное разгорание линий локализованного ортоэкситона, когда $\lambda_s = 6135,5 \text{ Å}$. На рис. 5 приведены спектры возбуждения для трех значений λ_s вблизи резонанса. Разгорание объясняется возбуждением мелкого связанного параэкситона [7] с энергией связи около 7 см^{-1} . Соответствующая линия излучения связанного параэкситона обнаружена в исследованных образцах (рис. 5, а).

Таким образом, можно утверждать, что все исследованные нами системы связанных экситонов в $\text{Cu}_2\text{O} : \text{Cd}$ локализованы на одном и том же центре.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Elliott R. J. // Phys. Rev. 1961. V. 124. N 2. P. 340—345.
- [2] Гросс Е. Ф., Каплянский А. А. // ДАН СССР. 1960. Т. 132. № 1. С. 98—101.
- [3] Гросс Е. Ф., Крейнгольд Ф. И. // Письма в ЖЭТФ, 1968. Т. 7. № 8. С. 281—283.
- [4] Крейнгольд Ф. И., Макаров В. Л. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 4. С. 1307—1309.
- [5] Крейнгольд Ф. И., Лидер К. Ф. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 3. С. 749—752.
- [6] Крейнгольд Ф. И., Цуриков В. И. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 11. С. 3275—3281.
- [7] Крейнгольд Ф. И., Цуриков В. И. // ФТТ. 1986. Т. 28. С. 2534—2536.

Ленинградский государственный университет
Ленинград

Поступило в Редакцию
12 октября 1989 г.