

ИНТЕНСИВНОСТЬ ФОТОВОЗБУЖДЕНИЯ И КИНЕТИКА ЭКСИТОНОВ

В.В.Травников, В.В.Криволапчук

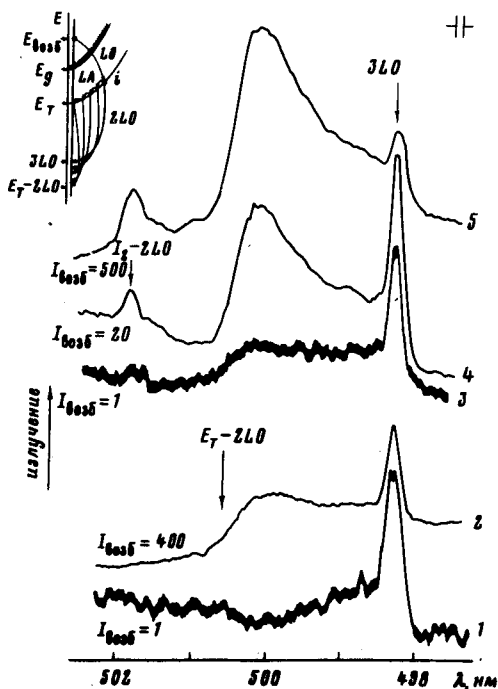
Впервые обнаружено влияние интенсивности возбуждающего света на кинетику установления стационарного распределения экситонов по энергии в зоне. Показано, что время жизни свободных экситонов увеличивается с ростом интенсивности возбуждения. Сделаны оценки изменения времени жизни.

Изменение интенсивности возбуждающего света ($I_{\text{возб}}$) в области больших значений ($> 10^3$ Вт/см²) широко используется при исследовании эффектов большой плотности, когда природа и кинетика явлений, возникающих в кристалле, в значительной степени определяются коллективными свойствами экситонов. Оказывается, что и при "обычных" $I_{\text{возб}}$, когда концентрация экситонов мала, величина $I_{\text{возб}}$ является фактором, существенно влияющим на свойства экситонов. В работе [1] было показано влияние $I_{\text{возб}}$ на кинетику пространственного распределения экситонов по кристаллу. В данной работе впервые показано воздействие $I_{\text{возб}}$ на кинетику установления энергетического распределения экситонов по зоне.

В работе исследованы кристаллы CdS, выращенные из газовой фазы. Эксперименты проводились при $T = 2$ К. Возбуждение осуществлялось линией 476,5 нм аргонового лазера. Максимальная интенсивность возбуждающего света не превышала 10^3 Вт/см².

На рисунке представлены спектры излучения двух из исследованных в работе объемных образцов при различных значениях $I_{\text{возб}}$. Процессы, формирующие наблюдаемый спектр излучения, схематически представлены на вставке к рисунку [2]. Возбуждающий свет в результате рассеяния на LO-фононе создает экситоны в точке i экситонной зоны $n = 1$ А. Последующее рассеяние экситонов на LA-фононах приводит к заселению других точек зоны. Представленные на рисунке спектры соответствуют излучению экситонов из разных точек зоны с отдачей в решетку энергии двух LO-фононов (в дальнейшем это излучение будем называть двухфононным). Линия 3LO обусловлена двухфононным излучением экситонов из точки i . Стрелка $E_T - 2LO$ указывает длинноволновую границу двухфононного излучения экситонов. Форма спектра двухфононного излучения, как известно [3], воспроизводит стационарное распределение экситонов по энергии в зоне. Рисунок демонстрирует существенную зависимость этого распределения от $I_{\text{возб}}$. Форма энергетического распределения экситонов по зоне зависит от числа актов рассеяния на LA-фононах, которые экситоны успевают совершить за время жизни в зоне τ . Характер изменения распределения экситонов по зоне свидетельствует о том, что τ с ростом $I_{\text{возб}}$ увеличивается. В образце 1 при малой $I_{\text{возб}}$ время жизни настолько мало, что экситоны успевают провзаимодействовать с очень небольшим

числом LA -фононов и высвечиваются, в основном, из точки i и ее ближайшей длинноволновой окрестности (спектр 1, рисунок). С увеличением $I_{\text{возб}}$ τ возрастает, число актов рассеяния на LA -фононах увеличивается и при максимальной $I_{\text{возб}}$ экситоны заселяют уже все точки зоны, причем большая часть экситонов находится ближе к дну зоны (спектр 2). При одинаковой интенсивности возбуждения форма распределения, а следовательно, и τ в разных образцах отличаются [2]. Например, в образце 2 "начальное" время жизни при минимальной $I_{\text{возб}}$ больше, чем в образце 1, и распределение экситонов по энергии (спектр 3) примерно такое же, как в образце 1 при большой $I_{\text{возб}}$.



Спектры двухфононного излучения экситонов в объемных образцах CdS при различных значениях интенсивности возбуждения ($T = 2$ К). Значения $I_{\text{возб}}$ указаны в произвольных единицах. Спектры 1, 2 соответствуют образцу 1, а спектры 3 – 5 – образцу 2. Линия $I_2 - 2LO$ соответствует двухфононному излучению, связанного экситона I_2 . На вставке: E_g – край собственного поглощения, E_T – энергия дна зоны экситонного состояния $n = 1$ А, $E_{\text{возб}}$ – энергия возбуждающего света

Полное время жизни экситонов в зоне определяется временами излучательной (τ_R) и безызлучательной (τ_{nR}) гибели экситонов:

$$1/\tau = 1/\tau_R + 1/\tau_{nR}. \quad (1)$$

Излучательное время характеризуется большими величинами порядка $10^{-8} + 10^{-9}$ сек [4]. В исследованных объемных образцах вероятность безызлучательной гибели велика $\tau_R \gg \tau_{nR}$ и поэтому $\tau \approx \tau_{nR}$ [2]. Безызлучательное время определяется суммой вероятностей захвата экситонов на различные типы центров:

$$1/\tau_{nR} = \sum_m \bar{v} \sigma_m N_m, \quad (2)$$

где \bar{v} – средняя скорость экситонов, σ_m и N_m – сечение захвата и число центров m -типа. При увеличении $I_{\text{возб}}$ некоторая часть центров на-

чинает насыщаться, концентрация их уменьшается, что и приводит, очевидно, к увеличению τ . При разных значениях $I_{\text{возб}}$ время жизни может определяться разными типами центров.

В наиболее совершенных (пластинчатых) образцах при всех использованных в данной работе $I_{\text{возб}}$ двухфононное излучение имело равновесный характер. В этих образцах концентрация центров захвата гораздо меньше, чем в объемных и время жизни превышает время установления равновесия. Вместе с тем и в этом случае возможно изменение τ , на что указывает рост длины диффузии экситонов с увеличением $I_{\text{возб}}$, наблюдаемый в некоторых из таких образцов при $T = 77 \text{ K}$ [1]. Связано это с тем, что при малых $I_{\text{возб}}$ время жизни хотя и больше времени установления равновесия, но все еще меньше τ_R . Время τ_R является, очевидно, верхней границей времени жизни экситонов в зоне.

Изменение времени в объемных образцах можно оценить, измерив отношение полной интегральной интенсивности полосы двухфононного излучения экситонов I_{Σ} к интенсивности $3LO$ линии I_{3LO} [2]. Интенсивность I_{Σ} пропорциональна полному времени жизни экситона в зоне τ , а I_{3LO} — времени жизни экситонов в точке i : $1/\tau_i = 1/\tau_a + 1/\tau_{nR}$, где τ_a определяется временем ухода экситона из точки i в другие точки зоны за счет рассеяния на LA -фононах). Таким образом,

$$\frac{I_{\Sigma}}{I_{3LO}} = \frac{\tau}{\tau_i} = 1 + \frac{\tau_{nR}}{\tau_a}; \quad \text{или} \quad \frac{\tau}{\tau_a} = \frac{I_{\Sigma}}{I_{3LO}} - 1, \quad (3)$$

Используя значение τ_a , полученное в работе [2], мы оценили времена жизни в исследованных образцах. Например, в образце 1 время жизни меняется от $\sim 4 \cdot 10^{-12}$ сек при минимальной $I_{\text{возб}}$ до $\sim 1,3 \times 10^{-11}$ сек при максимальной $I_{\text{возб}}$, а в образце 2 — от $\sim 1 \cdot 10^{-11}$ сек до $\sim 6 \cdot 10^{-11}$ сек.

Таким образом, проведенные эксперименты показали существенное влияние $I_{\text{возб}}$ на кинетические свойства экситонов. При использовании монохроматического возбуждающего света и соответствующем подборе образцов $I_{\text{возб}}$ может быть использована как своеобразный инструмент воздействия, позволяющий при стационарных условиях возбуждения исследовать кинетические явления на разных стадиях развития во времени, вплоть до пикосекундного диапазона.

Описанные выше спектральные проявления влияния $I_{\text{возб}}$ наблюдались нами и в кристаллах $ZnSe$ при возбуждении линией $441,6 \text{ нм}$ кадмиевого лазера. Очевидно, зависимость кинетики экситонов от $I_{\text{возб}}$ характерна для всех кристаллов, в которых существенна роль безызлучательной гибели экситонов. В кристаллах с хорошо отработанной технологией и регулируемым составом дефектов исследование зависимости спектров излучения от $I_{\text{возб}}$ может быть использовано для изучения природы безызлучательных переходов.

Литература

- [1] *Криволапчук В.В., Пермогоров С.А., Травников В.В.* ФТТ, 1981, 23, 606.
- [2] *Пермогоров С.А., Травников В.В.* ФТТ, 1980, 20, 2651.
- [3] *Гросс Е.Ф., Пермогоров С.А., Разбирин Б.С.* ФТТ, 1966, 8, 1483.
- [4] *Toyozawa Y.* Progr. Theor. Phys. (Kyoto) Suppl., 1959, 12, 111.
-