

КИНЕТИКА ОБРАЗОВАНИЯ ЛОКАЛИЗОВАННЫХ ЭКСИТОНОВ В ТВЕРДОМ РАСТВОРЕ $CdS_{1-x}Se_x$

Я. Аавиксоо¹⁾, Я. Липпмаа¹⁾, С. Пермогоров²⁾, А. Резницкий²⁾,
Ф. Лаваллар³⁾, К. Гурдон³⁾

С пикосекундным разрешением по времени исследована кинетика люминесценции локализованных экситонов в твердом растворе $CdS_{1-x}Se_x$ при гелиевых температурах в условиях резонансного и нерезонансного возбуждения. Обнаружена сильная зависимость кинетики от частоты возбуждающего света.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) твердых растворов $CdS_{1-x}Se_x$ при гелиевых температурах, соответствуют высвечиванию экситонов, локализованных на флуктуациях потенциального рельефа^{1,2}. Исследования кинетики свечения в диапазоне нано- и субнаносекундных времен позволили наблюдать дисперсию времени жизни локализованных экситонов и установить существование спектральной диффузии по неоднородно уширенной полосе свечения^{3,4}. Детальное изучение превращений энергии возможно применением пикосекундной спектхронографии⁵, которая позволяет осуществить спектрально-временной анализ вторичного свечения с фурье-предельным разрешением⁶.

В настоящей работе с пикосекундным временным разрешением исследована кинетика различных участков полосы ФЛ образцов $CdS_{1-x}Se_x$ с $x = 5, 14$ и 60% и ее зависимость от частоты возбуждающего света. Пластинчатые монокристаллы помещались в жидкий гелий и возбуждались в поляризации $E \perp c$ цугом импульсов синхронно накачиваемого лазера на красителе кумарин-102. Длительность импульсов составляла 3 пс, частота следования около 80 МГц, энергия в импульсе не превышала 0,1 нДж. Кинетика свечения изучалась через двойной монохроматор с вычитанием дисперсии (разрешение 0,15 нм) с помощью стрик-камеры, развертываемой частотой следования импульсов (динамический диапазон не меньше двух порядков, временная аппаратная функция 10 пс), или методом время-коррелированного счета фотонов (разрешение 300 пс). Свободный интервал развертки ($\cong 12$ нс) позволяет уверенно анализировать форму импульса ФЛ с характерными временами $\tau \leq 2$ нс при использовании стрик-камеры и $\tau \leq 4$ нс в методе счета фотонов.

Основной результат этой работы состоит в том, что кинетика ФЛ в определяющей степени зависит от частоты возбуждающего света. Ниже мы изложим наиболее важные черты этой зависимости.

1. На рис. 1 приведен спектр ФЛ образца твердого раствора $CdS_{1-x}Se_x$ с $x = 0,14$ при $T = 4,2$ К и непрерывном возбуждении в область делокализованных состояний ($\hbar\omega_{\text{возб}} = 2,602$). Использование логарифмического масштаба позволяет отчетливо наблюдать существование горячего хвоста полосы ФЛ, а также слабые линии резонансного комбинационного рассеяния. Эффективные времена затухания свечения $\tau_{\text{эфф}}$, определенные по уровню $1/e$, приведены на рисунке.

Следует отметить, что уменьшение интенсивности стационарной ФЛ и падение эффективного времени затухания в области горячего хвоста происходит практически параллельно. Наблюдение времен в диапазоне 1 – 100 пс указывает, что затухание излучения в коротковолновой области полосы определяется быстрыми процессами релаксации энергии возбуждений вблизи дна зоны свободных экситонов и туннельной миграцией из мелких локализованных состояний.

1) Институт физики АН ЭССР (Тарту).

2) ФТИ им. А.Ф.Иоффе АН СССР (Ленинград).

3) Лаборатория физики твердого тела VII Университета (Париж).

Кинетика свечения различных участков полосы ФЛ при нерезонансном возбуждении имеет, в согласии с результатами работы ⁴, явно выраженный неэкспоненциальный характер. Кривые затухания ФЛ достаточно мелких локализованных состояний могут быть хорошо приближены суммой двух экспонент: $I = I_0(\exp(-t/\tau_1) + \beta \exp(-t/\tau_2))$ (см. в качестве примера вставку на рис. 1). Оказалось, что параметры τ_1 ; τ_2 и β не являются характеристикой только исследуемого состояния и увеличиваются при увеличении частоты возбуждающего света.

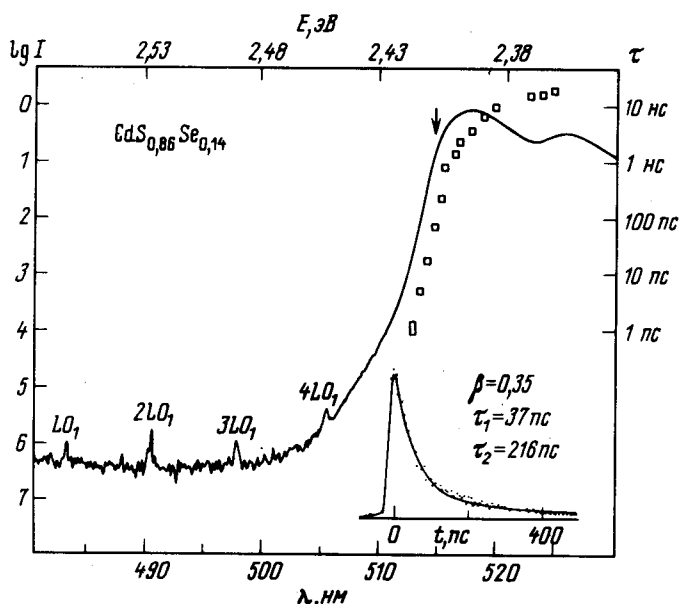


Рис. 1. Спектр ФЛ образца $\text{CdS}_{0,14}\text{Se}_{0,86}$ в логарифмическом масштабе — сплошная кривая, левая шкала. Столбики — эффективное время затухания люминесценции (правая шкала). Вставка — кинетика ФЛ состояния, отмеченного стрелкой, при возбуждении 2,460 эВ. Точки — эксперимент, линия — описание двухэкспоненциальным законом с указанными параметрами

2. Наиболее простую форму кривые затухания ФЛ имеют при резонансном возбуждении. Форма импульса ФЛ при минимальной расстройке возбуждения относительно регистрации (2 мэВ в наших условиях) может быть описана практически одной экспонентой в пределах двух порядков изменения интенсивности. Характерные времена затухания, измеренные в условиях почти резонансного возбуждения, монотонно увеличиваются с ростом энергии локализации экситона (представлены треугольниками на рис. 2). Здесь же для сравнения приведены эффективные времена затухания $\tau_{\text{эфф}}$ импульса ФЛ при межзонном возбуждении 2,460 эВ. Эти времена также увеличиваются с ростом энергии локализации и достигают значений порядка 10 нс, т.е. в два — три раза превышают времена затухания при резонансном возбуждении. Кроме того, при нерезонансном возбуждении в форме импульса люминесценции отчетливо проявляются участки нарастания с характерными временами до 1 — 2 нс. Кинетика затухания ФЛ на частоте 2,396 эВ при практически резонансном и нерезонансном возбуждении сопоставлена в левой части рис. 2 (кривые А и Б, соответственно). Следует отметить, что указанные изменения кривых затухания при увеличении частоты возбуждающего света происходят постепенно, т.е. ни порог подвижности экситонов, ни порог межзонных переходов в кинетике прямо не проявляются.

3. Наличие участков нарастания, продолжительность которых существенно превышает длительность возбуждающего импульса, является отражением процесса заселения глубоких состояний за счет туннельной миграции из более мелких локализованных состояний. Удлинение кинетики затухания при увеличении частоты возбуждающего света, по-видимому,

отражает сложную кинетику образования локализованных экситонов из свободных электронов и дырок. Возможно также, что при межзонном возбуждении в излучении проявляются рекомбинационные процессы, не возбуждаемые резонансным способом. К таким процессам относится, например, туннельная излучательная рекомбинация дырок, локализованных потенциальными флуктуациями твердого раствора, с примесными (донорными) состояниями электронов.

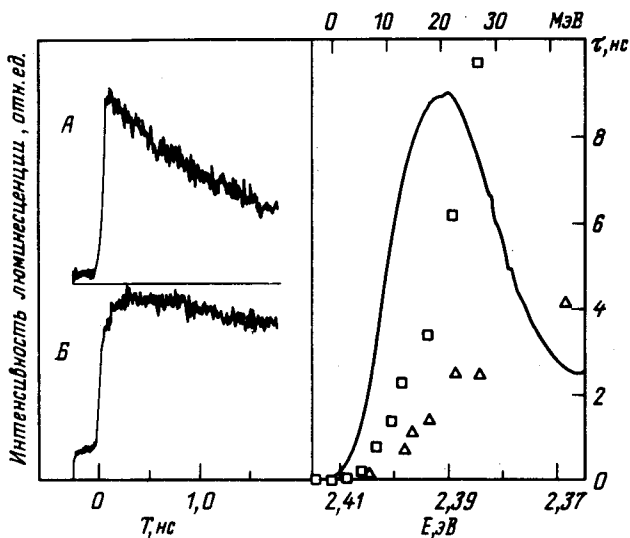


Рис. 2. Времена жизни экситонов с различной энергией локализации в образце $\text{CdS}_{0,14}\text{Se}_{0,86}$ при почти резонансном (треугольники) и эффективные времена затухания ФЛ при нерезонансном (2,460 эВ, квадратики) возбуждении. Сплошная кривая – стационарный спектр ФЛ. Верхняя шкала – энергия локализации экситонов. Слева – кинетика ФЛ состояния с энергией 2,396 эВ при возбуждении фотонами 2,398 эВ (А) и 2,460 эВ (Б)

Аналогичная зависимость кинетики ФЛ от частоты возбуждающего света наблюдалась и в образцах других составов, изученных в настоящей работе. Очевидно, что наблюдавшиеся нами закономерности могут быть общими для более широкого круга неупорядоченных веществ.

Выражаем благодарность П.М.Саари за поддержку и интерес к работе.

Литература

1. Permogorov S., Reznitsky A., Verbin S., Müller G.O., Flögel P., Nikiforova M. Phys. Stat. Sol.(b), 1982, 113, 589.
2. Cohen E., Sturge M.D. Phys. Rev. B, 1982, 25, 3828.
3. Пермогоров С.А., Резницкий А.Н., Вербин С.Ю., Бонч-Бруевич В.А. Письма в ЖЭТФ, 1983, 38, 22.
4. Kash J.A., Ron A., Cohen E. Phys. Rev. B, 1983, 28, 6147.
5. Saari P., Freiberg A. IEEE J. Quant. Electr., 1983, 22, 622.
6. Aaviksoo J., Freiberg A., Reinot T., Savikhin S. J. Lumin., 1986, 35, 267.

Поступила в редакцию

27 ноября 1986 г.

11 марта 1987 г.