

УДК 537.37

©1995

МАГНИТОЦИРКУЛЯРНАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ И ТУННЕЛЬНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ЭКСИТОНОВ В ТВЕРДОМ РАСТВОРЕ $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$

*А.Н.Резницкий, С.Ю.Вербин, С.А.Пермогоров,
А.Г.Цекун, А.Ю.Каминский*

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021, Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 6 января 1995 г.)

При $T = 2$ К исследована спектральная зависимость степени циркулярной поляризации люминесценции локализованных экситонов в монокристаллах твердого раствора $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ в магнитном поле до 7 Т при межзонном возбуждении линейно поляризованным светом. Циркулярная поляризация люминесценции в продольном магнитном поле возникает вследствие термического распределения экситонов между расщепленными спиновыми подуровнями экситонов. В спектрах люминесценции обнаружено изменение знака циркулярной поляризации на коротковолновом краю полосы излучения локализованных экситонов. Показано, что этот эффект отражает детали релаксации энергии и излучательной рекомбинации экситонов, локализованных на флуктуациях состава твердого раствора.

Если собственное или связанное с примесями электронное возбуждение в полупроводнике образуется четным числом квазичастиц, то в результате обменного взаимодействия его энергетические уровни оказываются расщепленными. Такого рода расщепление для свободных и связанных на ионизированном доноре экситонов было обнаружено еще в [1], а для нейтральных электрон-дырочных пар — в [2].

В нижайших экситонных состояниях, образованных электронами со спином $s_z = \pm 1/2$ и тяжелыми дырками с проекцией углового момента $J_z = \pm 3/2$, спиновые подуровни обладают проекциями полного углового момента $m_z = J_z + s_z = -2, -1, +1, +2$. В состояния с $m_z = \pm 2$ оптические переходы запрещены, однако внешнее магнитное поле, смешивая их с состояниями $m_z = \pm 1$, частично разрешает переход. Спиновая структура экситонных состояний исследуется в основном магнитооптическими методами.

Исследование эффекта Зеемана в его традиционном виде связано с точным измерением сдвигов и расщеплений спектральных линий в магнитных полях и может быть осуществлено только для совершенных кристаллов с достаточно узкими линиями экситонных переходов. Неоднородное уширение линий в спектрах неупорядоченных систем часто оказывается больше, чем характерная величина расщепления линий $\Delta = \pm g\mu_0 B$ при достижимых значениях магнитных полей B . Тем

не менее, как было показано в [3], при исследовании влияния магнитного поля на экситоны, связанные на изоэлектронных примесях в GaP, расщепление, обусловленное обменным взаимодействием, проявляется в изменении интенсивности циркулярно поляризованного излучения в области полей, при которых происходит пересечение оптически активных ($m_z = \pm 1$) и оптически неактивных ($m_z = \pm 2$) подуровней.

Недавно этот метод был применен для изучения спиновой структуры экситонов, локализованных дефектами короткопериодических сверхрешеток типа II [14], а также экситонов, локализованных флуктуациями состава в объемных твердых растворах $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ [5].

Настоящая работа посвящена изучению другой особенности циркулярной поляризации излучения, проявляющейся в изменении величины и даже знака степени поляризации на коротковолновом краю полосы излучения локализованных экситонов. Эта особенность может быть связана с наличием в энергетическом спектре твердых растворов области эффективной туннельной миграции экситонов по хвосту локализованных состояний.

1. Методика эксперимента

В работе исследовалась циркулярная поляризация люминесценции объемных одноосных кристаллов $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ во внешнем магнитном поле при температуре жидкого гелия. Образцы вырезались из монокристаллических блоков, выращенных из газовой фазы, и полировались сначала механически, а затем в полирующем травителе. Люминесценция изучалась в геометрии Фарадея $\mathbf{k} \parallel \mathbf{B}$ в магнитных полях до $B = 7T$. Образцы помещались в сверхпроводящий магнит в квазизотропной геометрии, при которой волновой вектор света был параллелен гексагональной оси кристалла. Люминесценция возбуждалась линейно поляризованным излучением Ag^+ -лазера. Регистрирующая система позволяла одновременно записывать в память ЭВМ спектры люминесценции, поляризованной по правому (I_+) и левому (I_-) кругу, и вычислять в реальном времени спектр степени циркулярной поляризации

$$\rho_{\text{circ}} = (I_+ - I_-)/(I_+ + I_-). \quad (1)$$

Были изучены спектры образцов твердого раствора $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ с x от 0.02 до 0.15. Поскольку качественные результаты для образцов всех составов хорошо согласуются, ниже мы рассмотрим только результаты, полученные для образца $\text{CdS}_{0.85}\text{Se}_{0.15}$.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1 сплошной линией показан спектр фотолюминесценции (ФЛ) при $T = 2\text{K}$ образца $\text{CdS}_{0.85}\text{Se}_{0.15}$ при межзонном возбуждении светом Ag^+ -лазера с энергией кванта 2.540 eV. Как известно [6], спектр ФЛ исследованного твердого раствора в отмеченном выше интервале составов создается излучательной рекомбинацией экситонов, локализованных флуктуациями состава, и состоит из интенсивной коротковолновой полосы и ее повторений, возникающих при рекомбинации с одновременным испусканием LO -фононов.

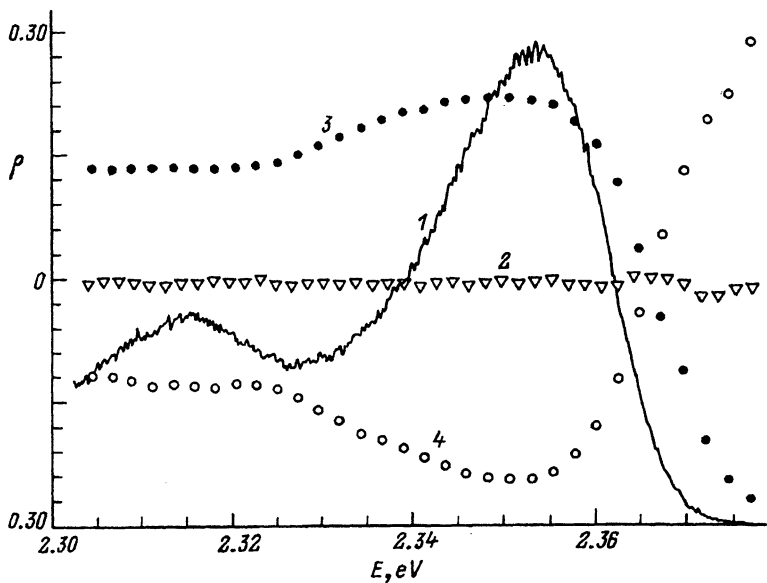


Рис. 1. Спектр люминесценции образца $\text{CdS}_{0.85}\text{Se}_{0.15}$ при $T = 2\text{ K}$ (1) и степень циркулярной поляризации в отсутствие магнитного поля (2) и в поле $B = 5.2\text{ T}$ двух направлений (3, 4).

На рис. 1 представлен спектр степени циркулярной поляризации ФЛ в нулевом поле и в поле $B = 5.2\text{ T}$ при двух противоположных направлениях магнитного поля. Как и следует ожидать, при $B = 0$ люминесценция не поляризована. При приложении магнитного поля возникает циркулярная поляризация, причем степень поляризации зависит от длины волны.

Вблизи максимума полосы ФЛ степень поляризации ρ_{circ} достигает значения 0.25, а знак ее зависит от направления магнитного поля. Максимальное значение ρ_{circ} увеличивается с ростом магнитного поля. В коротковолновой части спектра ρ_{circ} уменьшается по абсолютной величине и в некоторой спектральной точке изменяет знак. В этой области спектральная зависимость ρ_{circ} практически линейна. В целом, при неполяризованном или линейно поляризованном межзонном возбуждении спектр ρ_{circ} симметричен относительно смены направления магнитного поля.

Как уже отмечалось выше, циркулярная поляризация ФЛ в магнитном поле возникает в результате термического перераспределения заселенностей спиновых подуровней, расщепленных внешним магнитным полем. Кулоновское взаимодействие электронов со спином $s_z = \pm 1/2$ и тяжелых дырок с проекцией углового момента $J_z = \pm 3/2$ ведет к образованию оптически активных (радиационных) и неактивных (нерадиационных) Γ_5 - и Γ_6 -состояний с полным моментом $m_z = \pm 1$ и ± 2 соответственно. В отсутствие магнитного поля состояния Γ_5 и Γ_6 расщеплены в результате обменного взаимодействия. Приложение магнитного поля ведет к дальнейшему расщеплению Δ каждого из состояний Γ_5 и Γ_6 , которое линейно зависит от поля $\Delta = (g_e s_z + g_h J_z) B$.

Чтобы понять изменение величины и знака степени циркулярной поляризации в коротковолновой части спектра люминесценции, необхо-

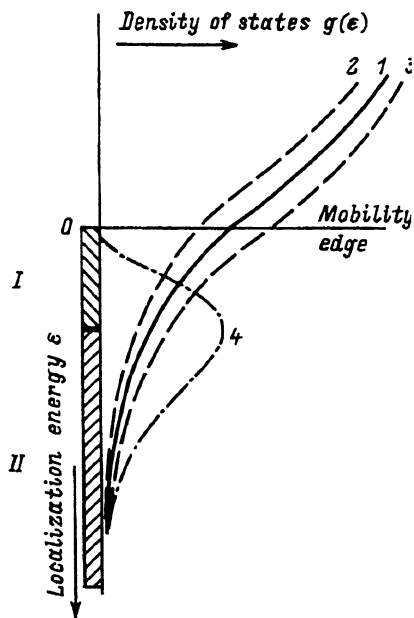


Рис. 2. Схематическое изображение плотности экситонных состояний в твердом растворе в отсутствие магнитного поля (1) и при приложении поля (2, 3), а также стационарного распределения экситонов по хвосту локализованных состояний (4). I и II соответствуют областям быстрого и медленного туннелирования экситонов.

димом рассмотрим процессы релаксации экситонов, имеющих различную энергию локализации. На рис. 2 схематически показан ход плотности радиационных состояний Γ_5 локализованных экситонов вблизи дна зоны в отсутствие поля (сплошная линия) и при приложении магнитного поля (штриховые линии). Вследствие расщепления в поле этих состояний при каждом значении энергии плотность состояний оказывается суперпозицией двух ветвей, соответствующих экситонным подуровням с $m_z = \pm 1$.

Интенсивности поляризованных компонент ФЛ I_+ и I_- на данной энергии ϵ , отсчитываемой от порога подвижности локализованных экситонов, могут быть записаны в виде

$$I_{\pm}(\epsilon) = n_{\pm}(\epsilon)/\tau_{\text{rad}}, \quad (2)$$

где τ_{rad} — характерное время излучательной рекомбинации, которое считается не зависящим от ϵ ; $n_{\pm}(\epsilon) = f_{\pm}(\epsilon)g_{\pm}(\epsilon)$ — стационарное распределение экситонов по хвосту локализованных состояний; $f_{\pm}(\epsilon)$ и $g_{\pm}(\epsilon)$ — зависящие от энергии степень заполнения и плотность локализованных состояний соответственно. Как показано в [7], в твердых растворах вблизи края собственного поглощения $g(\epsilon)$ может быть описана простой экспоненциальной функцией

$$g(\epsilon) = (N_0/\epsilon_0) \exp(-\epsilon/\epsilon_0). \quad (3)$$

Величина $n(\epsilon)$ определяется системой уравнений баланса [8] и в простейшем случае может быть найдена из условия

$$dn(\epsilon)/dt = G(\epsilon) - n(\epsilon)/\tau(\epsilon), \quad (4)$$

где $G(\varepsilon)$ — скорость прихода экситонов в локализованные состояния, $\tau(\varepsilon) = [\tau_0^{-1} + \tau_{\text{hop}}^{-1}(\varepsilon)]^{-1}$ — полное время жизни состояния с энергией связи ε , определяемое межзонной рекомбинацией и туннельными прыжками в более глубокие состояния со скоростями τ_0^{-1} и $\tau_{\text{hop}}^{-1}(\varepsilon)$.

В зависимости от соотношения времен τ_{hop} и τ_0 можно выделить две области (обозначенные на рис. 2 цифрами I и II), отличающиеся характером формирования заселенности спиновых подуровней.

Как показано в [9], в области мелких локализованных состояний, время жизни которых определяется скоростью туннелирования в более глубокие, спектр люминесценции I_{PL} имеет вид

$$I_{PL}(\varepsilon) \propto \exp(\varepsilon/\varepsilon_{PL}), \quad (5)$$

где параметр ε_{PL} прямо пропорционален параметру Урбаха ε_0 .

В магнитном поле каждый уровень с энергией ε расщепляется на два подуровня $\varepsilon \pm \Delta/2$, образуя таким образом два хвоста плотности излучательных состояний, сдвинутые друг относительно друга на величину $\Delta = (g_e s_z + g_h J_z) B$. В пренебрежении спиновой релаксацией туннелирование между состояниями двух ветвей с $m_z = \pm 1$ идет независимо. В этом случае для мелких локализованных состояний, как это следует из (5), $I_{\pm} \propto \exp(\varepsilon \pm \Delta/2)/\varepsilon_{PL}$ и, следовательно,

$$\rho_{\text{circ}}(\varepsilon \Rightarrow 0, \Delta \ll 2\varepsilon_{PL}) = \Delta/2\varepsilon_{PL}. \quad (6)$$

Время жизни глубоких состояний определяется межзонной рекомбинацией, и интенсивность излучения пропорциональна числу таких состояний $I_{\pm}(\varepsilon) \propto n_{\pm}(\varepsilon) \propto g_{\pm}(\varepsilon)$. Учитывая, что

$$g_{\pm}(\varepsilon) = N_0/\varepsilon_0 \exp\{-(\varepsilon \pm \Delta/2)/\varepsilon_0\}, \quad (7)$$

для таких состояний можно получить

$$\rho_{\text{circ}}(\varepsilon \Rightarrow, \Delta \ll 2\varepsilon_0) = -\Delta/2\varepsilon_0. \quad (8)$$

Таким образом, различный знак циркулярной поляризации на коротковолновом и длинноволновом краях полосы ФЛ является характерной особенностью систем с непрерывным экспоненциальным спектром локализованных состояний. Представленные выражения для ρ_{circ} не учитывают спиновой релаксации между оптически активными состояниями. В другом предельном случае, когда каждое рассеяние на фоне ведет к изменению полного момента экситона, величина и знак поляризации при достаточно низкой температуре не должны зависеть от энергии локализации рекомбинирующего состояния и будут определяться характером нижнего состояния. В более реалистическом случае конечного значения температуры и отношения времен жизни и спиновой релаксации экситонов величина и даже знак циркулярной поляризации могут меняться в спектральной области, где туннелирование между состояниями играет существенную роль. При этом характер спектральной зависимости $\rho_{\text{circ}}(\varepsilon)$ содержит информацию о соотношении скоростей процессов релаксации и рекомбинации и их зависимости от энергии локализации экситонов.

Авторам приятно поблагодарить Е.Л.Ивченко за полезное обсуждение затронутых в статье вопросов.

Работа выполнена при частичной поддержке Международного научного фонда (грант R41000).

Список литературы

- [1] Thomas D.G., Hopfield J.J. Phys. Rev. **128**, 5, 2135 (1962).
- [2] Cox R.T., Davies J.J. Phys. Rev. **B34**, 12, 8591 (1986).
- [3] Chen W.M., Godlevski M., Monemar B., Bergman J.P. Phys. Rev. **B41**, 9, 5746 (1990).
- [4] Baranov P.G., Mashkov I.V., Romanov N.G., Lavallard P., Planel R. Solid State Commun. **87**, 7, 649 (1993).
- [5] Reznitsky A., Tsekoun A., Verbin S., Permogorov S., Ivchenko E.L., Kaminskii A.Yu. In Abstracts of Europ. Workshop on II-VI Semiconductors. Linz, Austria (1994). P. 118.
- [6] Permogorov S., Reznitsky A. J. Lumin. **52**, 1-4, 201 (1992).
- [7] Klochikhin A.A., Ogloblin S.G. Phys. Rev. **B48**, 5, 3100 (1993).
- [8] Абдукадыров А.Г., Барановский С.Д., Вербин С.Ю., Ивченко Е.Л., Наумов А.Ю., Резницкий А.Н. ЖЭТФ **98**, 6(12), 2056 (1990).
- [9] Reznitsky A., Baranovskii S.D., Tsekoun A., Klingshirn C. Phys. Stat. Sol. (b) **184**, 1, 159 (1994).