

УДК 537.37

©1994

ПОЛЯРИЗОВАННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ И КИНЕТИКА РЕЛАКСАЦИИ ЛОКАЛИЗОВАННЫХ ЭКСИТОНОВ В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$

Е.Л.Ивченко, М.И.Караман, Д.К.Нельсон, Б.С.Разбирин, А.Н.Старухин

Исследована поляризованная люминесценция твердых растворов $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ при $T = 4.2$ К. В поперечном магнитном поле $\mathbf{B} \perp c$ (c — оптическая ось кристаллов) наблюдалось возгорание интенсивности компоненты излучения, поляризованной с $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$. Величина эффекта зависит от индукции поля B и спектрального положения детектируемого излучения. Показано, что фотолюминесценция твердых растворов $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ при низких температурах обусловлена излучением триплетных локализованных экситонов. Для количественного описания спектра излучения локализованных экситонов и его изменения в магнитном поле предложена феноменологическая модель релаксации экситонов в твердых растворах полупроводников. Проведено также сравнение экспериментальных данных с теоретическими результатами, полученными в микроскопической модели, учитывающей зависимость вероятности туннельного прыжка экситона от расстояния между центрами локализации. Показано, что для более корректного описания экспериментальных данных необходимо учитывать зависимость времени безызлучательной рекомбинации локализованных экситонов от их энергии.

Твердые растворы замещения представляют собой один из типов неупорядоченных систем, в которых сохраняется геометрический дальний порядок в расположении атомов. Поэтому многие черты энергетического спектра электронов в этих системах могут быть с успехом описаны на языке зонной теории в приближении эффективного или виртуального идеального кристалла [1,2]. Флуктуации состава твердого раствора порождают флуктуационный электронный потенциал, ответственный за наличие границы подвижности для электронов и дырок и формирование хвостов плотности локализованных состояний [3]. При низких температурах эти состояния в значительной степени определяют способности оптических спектров и электрические свойства твердых растворов.

Кулоновское взаимодействие локализованных электронов (или дырок) с носителями заряда противоположного знака приводит к формированию устойчивых двухчастичных состояний — локализованных экситонов [4–6]. Излучение и поглощение света локализованными экситонами дают основной вклад в оптические спектры твердых растворов полупроводников вблизи края фундаментального поглощения. Форма и интенсивность полос излучения локализованных экситонов прямо связаны с кинетикой релаксации электронных возбуждений в твердых растворах, что открывает возможность оптических исследований транспорта энергии в этих системах.

Настоящая работа посвящена исследованию кинетики релаксации локализованных экситонов в твердых растворах слоистых кристаллов GaS и GaSe методом поляризованной люминесценции во внешнем магнитном поле. В нашей ранней работе [7] этот метод уже привлекался для выяснения тонкой структуры экситонных состояний в кристаллах GaSe и твердых растворах $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$, но анализ обнаруженных магнитооптических эффектов проводился без учета возможного влияния туннельной релаксации экситонов на характеристики спектра вторичного излучения.

1. Методика эксперимента

Твердые растворы $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ ($x = 0.1, 0.2$ и 0.3) выращивались методом Бриджмена и специально не легировались. Образцы для исследований получались из слитков путем скальвания вдоль плоскости кристаллических слоев перпендикулярно оптической оси кристаллов c . Фотолюминесценция возбуждалась излучением аргонового лазера с энергией фотонов, превышающей ширину запрещенной зоны исследованных твердых растворов E_g ($\lambda_{exc} = 476.5$ или 488 нм). Вторичное излучение регистрировалось в направлении оси c . Для регистрации спектров использовался дифракционный спектрометр с обратной дисперсией 0.5 нм/мм. При измерениях образцы погружались непосредственно в жидкий гелий при $T = 4.2$ К.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Спектры излучения кристаллов $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ вблизи края фундаментального поглощения состоят из серии широких полос. На рис. 1 приведен спектр излучения кристалла $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$. Анализ спектрального положения полос показывает, что они не связаны с излучением свободных экситонов. Наиболее коротковолновая полоса M_1 обусловлена бесфононными переходами, более длинноволновые полосы являются ее фононными повторениями [7,8]. С увеличением x полоса M_1 и ее фононные повторения монотонно смещаются в коротковолновую сторону спектра.

Приложение поперечного ($\mathbf{B} \perp c$ — геометрия Фойгта) магнитного поля приводит к увеличению интенсивности полос фотолюминесценции. При этом интенсивность компоненты излучения, поляризованной с $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$, в магнитном поле практически не меняется, а интенсивность компоненты, поляризованной с $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, быстро возрастает в интервале полей от 0 до 0.2 Тл и далее практически не меняется до полей 2.5 Тл (рис. 1). Таким образом, приложение поперечного магнитного поля приводит к появлению линейной поляризации излучения, не связанной с термализацией возбуждений между зеэмановскими подуровнями.

Дальнейший анализ экспериментальных данных мы проведем в три этапа. Вначале, основываясь на результатах работы [7], покажем, что увеличение интенсивности и появление линейной поляризации излучения в магнитном поле являются характерными признаками триплетных экситонных состояний в кристаллах типа GaSe. Затем спектры поляризованной люминесценции будут проанализированы в рамках простейшей модели, учитывающей туннельную релаксацию в системе локализованных экситонов, но в пренебрежении зависимостью вероятности

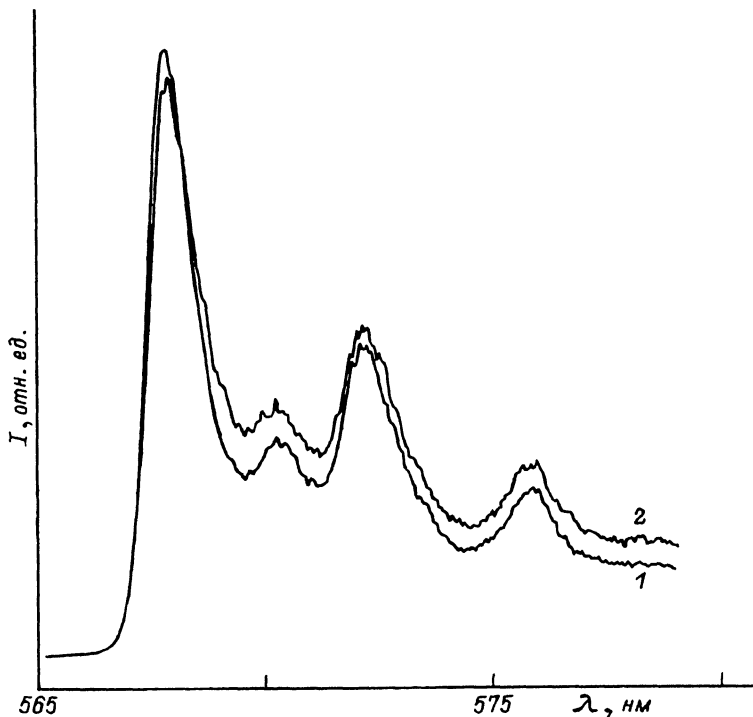


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции кристалла $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ в отсутствие магнитного поля (1) и в магнитном поле 0.3 Тл (2).

$\mathbf{E} \perp c$, $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$. $T = 4.2$ К.

туннельного прыжка от расстояния между центрами локализации экситонов. И в заключение мы примем во внимание экспоненциальную зависимость вероятности прыжка от расстояния до ближайшего центра локализации с большей энергией связи.

В кристалле GaSe основное состояние прямого экситона в результате обменного взаимодействия расщеплено на два (синглетных и триплетных) экситона [9]. В случае свободных экситонов величина расщепления между этими состояниями составляет $\Delta_1 \approx 2$ мэВ. Оптические переходы в синглетные состояния разрешены в поляризации света $\mathbf{E} \parallel c$. Триплетные экситоны характеризуются полным спином $S = 1$ и проекциями спина на оптическую ось кристалла с $S_z = 0, \pm 1$. Переходы в состояния $|\pm 1\rangle$ разрешены в поляризации света $\mathbf{E} \perp c$, состояние $|0\rangle$ в дипольном приближении оптически неактивно. В силу одноосной анизотропии кристалла состояние $|0\rangle$ отщеплено от состояний $|\pm 1\rangle$ на величину $\Delta \ll \Delta_1$ [10]. В дальнейшем для удобства вместо состояний $|\pm 1\rangle$ мы используем их линейные комбинации $|X\rangle$ и $|Y\rangle$, оптически активные при $\mathbf{E} \parallel x$ и $\mathbf{E} \parallel y$ соответственно.

В поперечном магнитном поле состояние триплетного экситона расщепляется на три подуровня с энергиями

$$E_{1,2} = E_0 + \frac{1}{2} \left\{ [\Delta \pm (\Delta^2 + g_{\perp} \mu_0 B)^2]^{1/2} \right\},$$

$$E_3 = E_0, \quad (1)$$

где E_0 — энергия возбуждения экситона $|\pm 1\rangle$ в отсутствие поля, g_{\perp} — поперечная составляющая g -фактора экситона, μ_0 — магнетон Бора. При $\mathbf{B} \parallel x$ волновые функции экситона в состоянии $|j\rangle$ ($j = 1, 2, 3$) с энергией E_j можно представить в виде

$$|1\rangle = C_1|X\rangle + C_2|0\rangle, \quad |2\rangle = C_2|X\rangle - C_1|0\rangle, \quad |3\rangle = |Y\rangle. \quad (2)$$

Здесь вещественные коэффициенты C_1, C_2 описывают смешивание состояний $|X\rangle, |0\rangle$ в магнитном поле и удовлетворяют соотношениям $C_1^2 + C_2^2 = 1$ и $4C_1^2C_2^2 = \Omega^2/(\Delta^2 + \Omega^2)$, где $\Omega = g_{\perp}\mu_0 B$. Крайние компоненты триплета поляризованы с $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, центральная компонента — с $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$.

Если время жизни экситонов $|X\rangle, |Y\rangle$ отличается от времени жизни экситона в состоянии $|0\rangle$, то магнитоиндуцированное смешивание экситонов $|X\rangle$ и $|0\rangle$ приводит к изменению времен жизни гибридных состояний $|1\rangle$ и $|2\rangle$. Действительно, введем излучательное время жизни τ_r экситонов $|X\rangle, |Y\rangle$ и предположим, что безызлучательное время жизни τ_0 одинаково для всех исходных состояний триплета и не меняется при включении поля. Тогда из (2) следует, что время жизни экситонов в j -м состоянии $\tau_j(B)$ ($j = 1, 2$) удовлетворяет соотношению

$$\tau_j(B) = (\tau_{r1}^{-1} + \tau_0^{-1})^{-1} = \tau_0\tau_{rj}/(\tau_0 + \tau_{r0}), \quad (3)$$

при этом

$$\tau_{r1}^{-1} = C_1^2\tau_r^{-1} \quad \text{и} \quad \tau_{r2}^{-1} = C_2^2\tau_r^{-1},$$

так как C_1^2 и C_2^2 описывают в состояниях $|1\rangle$ и $|2\rangle$ долю излучательного состояния $|X\rangle$. Время жизни экситона в состоянии $|3\rangle$ равно $\tau_3 = (\tau_r^{-1} + \tau_0^{-1})^{-1} = \tau_2(0)$ и в поле не меняется. Очевидно, что при $B \neq 0$ выполнены неравенства $\tau_1, \tau_2 > \tau_3$.

При возбуждении кристалла неполяризованным светом с $\hbar\omega > E_g$ и в пренебрежении спиновой релаксацией экситонов интенсивности компонент излучения I_{\parallel}, I_{\perp} в поляризациях $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ и $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ соответственно можно записать в виде

$$I_{\parallel} = I_1 + I_2 = I_0 \left(\frac{\tau_1}{\tau_{r1}} + \frac{\tau_2}{\tau_{r2}} \right),$$

$$I_1 = I_3 = I_0 \frac{\tau_3}{\tau_{r3}}, \quad (4)$$

где величина I_0 пропорциональна скорости генерации экситонов в состояниях с $j = 1, 2, 3$. При выводе учтено, что в рассматриваемом случае интенсивность света, излучаемого экситоном в состоянии $|j\rangle$, пропорциональна полному времени жизни τ_j и обратно пропорциональна его излучательному времени жизни в этом состоянии τ_{rj} . В отсутствие магнитного поля поля I_{\parallel} и I_{\perp} одинаковы. В сильном поле, таком, что $g_{\perp}\mu_0 B \gg \Delta$, получаем

$$I_{\parallel}(B) = I_0 \frac{2\tau_0}{2\tau_r + \tau_0} = I_{\perp}(0) \frac{2(\tau_r + \tau_0)}{2\tau_r + \tau_0} > I_{\perp}(0) = I_{\perp}(B). \quad (5)$$

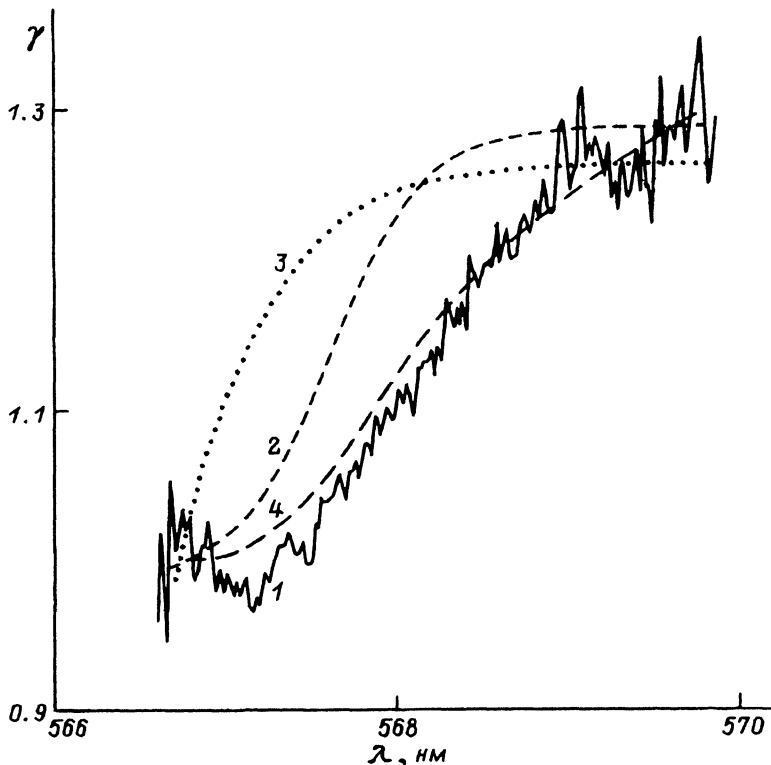


Рис. 2. Зависимость отношения $\gamma(B, \lambda) = I_{\parallel}(B, \lambda)/I_{\perp}(B, \lambda)$ для полосы M_{\perp} от волны излучения в поле 0.3 Тл.

1 — экспериментальная зависимость; 2-4 — теоретические зависимости, вычисленные на основе феноменологической модели при $\tau_{nr} = \text{const}$ (2), микроскопической модели при $\tau_{nr} = \text{const}$ (3), феноменологической модели при $\tau_{nr} = \tau_{nr}(\epsilon)$ (4).

При $\tau_0 \gg \tau_r$ суммарная интенсивность излучения в сильном поле $I_{\parallel} + I_{\perp}$ увеличивается в 1.5 раза, а степень линейной поляризации $(I_{\parallel} - I_{\perp})/(I_{\parallel} + I_{\perp})$ достигает значения 1/3. При $\tau_0 \ll \tau_r$, что характерно для свободных экситонов в GaSe, оба магнитооптических эффекта малы и практически не наблюдаются. Ни величина этих эффектов (рис. 1), ни спектральное положение полос не позволяют отнести их к излучению свободных триплетных экситонов. Другими состояниями с аналогичной тонкой структурой являются экситоны, связанные на ионизированных центрах или изоэлектронных ловушках, как предположено в [7], или экситоны, локализованные флуктуациями потенциала в твердых растворах. Учитывая, однако, что плотность излучательных состояний в $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ составляет по меньшей мере $\approx 10^{19} \text{ см}^{-3}$ [8], что существенно превышает концентрацию примесей в исследованных кристаллах, можно прийти к выводу, что спектр излучения твердых растворов $\text{GaSe}_{1-x}\text{S}_x$ обусловлен излучением локализованных экситонов.

Уже предварительный анализ экспериментальных данных на основе простых формул (4), (5) показывает необходимость учета туннельной энергетической релаксации экситонов. На рис. 2 приведена спектраль-

$$\gamma(B, \lambda) \equiv I_{\parallel}(B, \lambda)/I_{\perp}(B, \lambda) = I_{\parallel}(B, \lambda)/I_{\parallel}(0, \lambda)$$

для полосы M_{\perp} в смешанных кристаллах $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$, измеренная в магнитном поле $B = 0.3$ Тл. В области полей $B \geq 0.2$ Тл интенсивность излучения локализованных экситонов практически не зависит от B , т.е. выполняется условие $\Omega \gg \Delta$ или $C_1^2 \cong C_2^2 \cong 0.5$. Аналогичные зависимости для твердых растворов с $x = 0.1$ и 0.3 в основных чертах подобны зависимости, изображенной на рис. 2. Видно, что величина $\gamma(B, \lambda)$ минимальна на коротковолновом краю полосы M_{\perp} и максимальна на ее длинноволновом краю. Заметим, что при $B = 0.3$ Тл расщепление триплетных состояний по-прежнему чрезвычайно мало по сравнению с шириной полосы M_{\perp} , спектрально не разрешается и не вносит дополнительного вклада в поляризацию излучения.

Согласно (5), зависимость $I_{\parallel}(B, \lambda)/I_{\perp}(B, \lambda)$ (рис. 2) может быть описана соотношением $\gamma(\lambda) = 2(\tau_r + \tau_0)/(2\tau_r + \tau_0)$ в предположении, что отношение безызлучательного времени жизни к излучательному τ_0/τ_r в системе локализованных экситонов увеличивается с увеличением энергии локализации экситона $\varepsilon = E_0 - E$, т.е. разности энергии границы подвижности в системе локализованных экситонов E_0 и энергии локализованного экситона E . Именно такого поведения и следует ожидать для отношения безызлучательного и излучательного времен жизни, учитывая туннелирование локализованных экситонов в состояния с более низкой энергией. Представим время τ_0 в виде $\tau_0^{-1} = \tau_{hop}^{-1} + \tau_{nr}^{-1}$, введя собственно время безызлучательной рекомбинации экситона τ_{nr} и время его туннельного прыжка τ_{hop} . Функция $\tau_{hop}(\varepsilon)$ быстро растет с увеличением ε из-за быстрого (экспоненциального) уменьшения плотности нижележащих локализованных состояний и увеличения среднего расстояния между ними. Имеются основания предполагать, что с увеличением глубины локализации возрастает и время безызлучательной рекомбинации локализованных экситонов $\tau_{nr}(\varepsilon)$, хотя вид зависимостей $\tau_{nr}(\varepsilon)$ и $\tau_{hop}(\varepsilon)$ может сильно различаться. Нужно, однако, напомнить, что соотношения (4), (5) могут претендовать лишь на качественное описание спектра поляризованной люминесценции локализованных экситонов, так как при их выводе энергетический транспорт в системе экситонов не учитывался.

В качестве первого приближения мы учтем этот транспорт в предположении, что вероятность туннельного прыжка экситона из состояния с энергией ε пропорциональна лишь числу нижележащих локализованных состояний, т.е. положив

$$\frac{1}{\tau_{hop}(\varepsilon)} = \frac{1}{\tau_{b0}} \frac{\rho(\varepsilon)}{\rho(0)}, \quad (6)$$

где $\tau_{b0}^{-1} \equiv \tau_{hop}^{-1}(0)$ — константа, имеющая смысл вероятности туннелирования локализованного экситона из состояния на границе подвижности с энергией $E = E_0$ во все нижележащие состояния локализованных экситонов; $\rho(\varepsilon)$ — концентрация локализованных состояний с энергией локализации, большей ε .

В этом случае кинетическое уравнение для энергетической функции распределения экситонов $n_j(\varepsilon)$ имеет вид

$$\left[\frac{1}{\tau_{aj}} + \frac{1}{\tau_{hop}(\varepsilon)} \right] n_j(\varepsilon) = G_0(\varepsilon) + \int_0^\varepsilon n_j(\varepsilon') \frac{1}{\tau_{hop}(\varepsilon')} \frac{g(\varepsilon)}{\rho(\varepsilon')} d\varepsilon'. \quad (7)$$

Здесь $\tau_{aj}^{-1} \equiv \tau_{rj}^{-1} + \tau_{nr}^{-1}$, индекс j пробегает значения 1, 2, 3; $G_0(\varepsilon)$ — скорость генерации экситонов в состояниях с энергией ε ; $g(\varepsilon)$ — энергетическая плотность состояний $g(\varepsilon) = -d\rho(\varepsilon)/d\varepsilon$. Второе слагаемое в правой части (7) описывает приход в состояние $\{\varepsilon, j\}$ из вышерасположенных состояний в результате туннельной релаксации. Как и ранее, спиновой релаксацией пренебрегается. Далее предполагается, что времена τ_{rj} , τ_{nr} и скорость генерации локализованных экситонов на конкретном уровне I_0 не зависят от ε , при этом $G_0(\varepsilon) = I_0 g(\varepsilon)$. Вклад экситонов $\{\varepsilon, j\}$ в спектральную интенсивность фотолюминесценции связан с $n_j(\varepsilon)$ соотношением

$$I_j(E) \propto \frac{1}{\tau_{rj}} n_j(\varepsilon = E_0 - E). \quad (8)$$

В полной аналогии с (4) имеем

$$I_{\parallel}(E) = I_1(E) + I_2(E), \quad I_{\perp}(E) = I_3(E).$$

Уравнение (7) легко решается

$$n_j(\varepsilon) = I_0 g(\varepsilon) \frac{\tau_j^2(\varepsilon)}{\tau_j(0)}, \quad (9)$$

где

$$\frac{1}{\tau_j(\varepsilon)} = \frac{1}{\tau_{aj}} + \frac{1}{\tau_{hop}(\varepsilon)}.$$

Соотношение (9) позволяет оценить влияние эффекта туннелирования на заселенность состояний экситонов. В отсутствие туннельных прыжков ($\tau_{hop}^{-1} = 0$), согласно (9), имеем

$$n_0(\varepsilon) = I_0 g(\varepsilon) \tau_j = I_0 g(\varepsilon) \tau_{aj}.$$

Для экспоненциальной формы хвоста плотности состояний

$$\rho(\varepsilon) = \rho_0 \exp(-\varepsilon/\varepsilon_0) \quad (10)$$

получаем из (8), (9) при $g_{\perp} \mu_0 B \gg \Delta$

$$I_j(E) \propto \frac{n_j(\varepsilon)}{\tau_{rj}} = G_0 \frac{\alpha_j [1 + \alpha_j (1 + \beta_j)]}{[\exp(-\varepsilon/\varepsilon_0) + \alpha_j (1 + \beta_j)]^2},$$

$$\gamma(B, \lambda) = \frac{I_{\parallel}(B, \lambda)}{I_{\perp}(B, \lambda)} = 2 \frac{2 + \alpha(1 + 2\beta)}{1 + \alpha(1 + \beta)} \left[\frac{\exp(-\varepsilon/\varepsilon_0) + \alpha(1 + \beta)}{2 \exp(-\varepsilon/\varepsilon_0) + \alpha(1 + 2\beta)} \right]^2. \quad (11)$$

где $\varepsilon = E_0 \approx (2\pi\hbar c/\lambda)$, c — скорость света в вакууме,

$$\alpha_j = \tau_{b0}/\tau_{rj}, \quad \beta_j = \tau_{rj}/\tau_{nr}, \quad \alpha = \tau_{b0}/\tau_r, \quad \beta = \tau_r/\tau_{nr}.$$

Заметим, что, согласно (11), в максимуме полосы излучения ($\hbar\omega_{\max} = E_{\max}$) выполняется условие $\tau_a = \tau_{hop}(E_{\max})$, т.е. для состояний, излучающих свет в области максимума полосы излучения, вероятность прыжка сравнивается с вероятностью рекомбинировать. В пренебрежении процессами безызлучательной рекомбинации в системе локализованных экситонов ($\beta = 0$) $\gamma(B, \lambda)$ в соответствии с (11) достигает максимума на длинноволновом краю полосы излучения

$$\gamma_{\max}(B, \lambda) \geq 2 \quad \text{при} \quad \lambda \rightarrow \infty.$$

Это заметно больше экспериментального значения γ_{\max} , что указывает на существенное влияние безызлучательной рекомбинации на кинетику локализованных экситонов в исследованных твердых растворах. Вычисленные на основе формул (11) зависимости $\gamma(B, \lambda)$ и $I(\lambda)$ представлены на рис. 2,3 соответственно. Приведенные зависимости соответствуют значениям параметров: $E_0 = 2.186$ эВ, $\alpha = 0.03$, $\beta = 3$ и $\varepsilon_0 = 1.1 \cdot 10^{-3}$ эВ. Как видно, изложенная выше простая модель энергетической релаксации локализованных экситонов позволяет в основных чертах описать спектр их излучательной рекомбинации и его изменение во внешнем магнитном поле.

В [11] развита кинетическая теория энергетической релаксации локализованных экситонов с учетом зависимости времени прыжка τ_{hop} от длины прыжка. В этой теории состояние экситона характеризуется энергией локализации ε и расстоянием r до ближайшего центра локализации с энергией связи $\varepsilon' > \varepsilon$. В рассматриваемой здесь задаче к двум параметрам экситонов ε и r нужно добавить спиновый индекс j . Кроме того, мы учтем безызлучательную рекомбинацию локализованных экситонов, введя в модель [11] время безызлучательной рекомбинации τ_{nr} . Степень заселенности $f_j(\varepsilon, r)$ состояния $\{\varepsilon, r\}$ удовлетворяет уравнению кинетики

$$\left[\frac{1}{\tau_{aj}} + \frac{1}{\tau_{hop}(r)} \right] f_j(\varepsilon, r) = I_j(\varepsilon), \quad (12)$$

$$I_j(\varepsilon) = I_0 + \int_0^{\varepsilon} I_j(\varepsilon') \omega_{hop}^{(j)}(\varepsilon') \frac{g(\varepsilon')}{\rho(\varepsilon')} d\varepsilon', \quad (13)$$

где $\omega_{hop}^{(j)}(\varepsilon)$ — вероятность экситону в состоянии j с энергией связи ε прыгнуть вниз, а не рекомбинировать

$$\omega_{hop}^{(j)}(\varepsilon) = \int_0^{\infty} \frac{\tau_j(r)}{\tau_{hop}(r)} P_{\varepsilon}(r) dr, \quad (14)$$

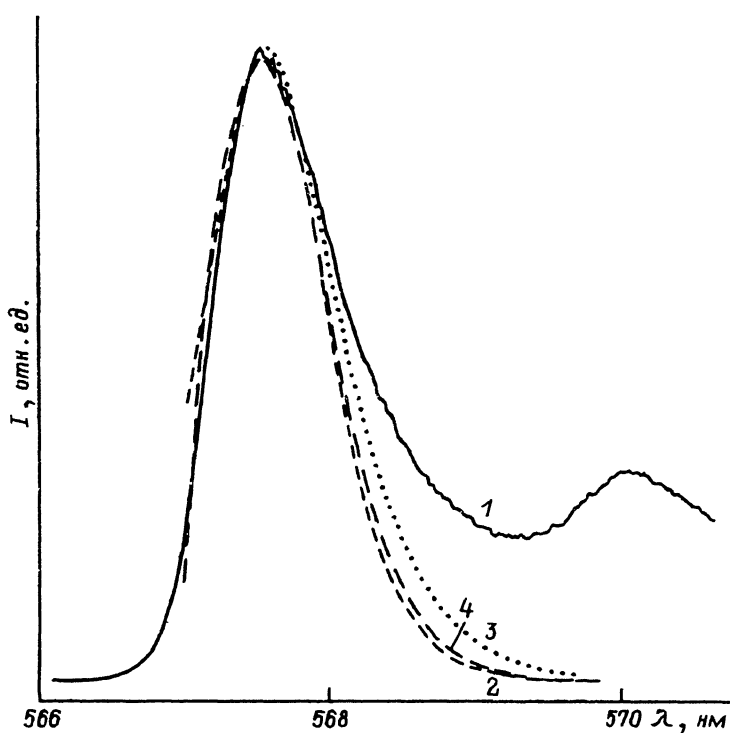


Рис. 3. Спектр фотолюминесценции кристалла $\text{GaSe}_{0.8}\text{S}_{0.2}$ в отсутствие магнитного поля.

1 — экспериментальная зависимость; 2-4 — теоретические зависимости, вычисленные на основе феноменологической модели при $\tau_{nr} = \text{const}$ (2), микроскопической модели при $\tau_{nr} = \text{const}$ (3), феноменологической модели при $\tau_{nr} = \tau_{nr}(\varepsilon)$ (4).

$\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$. $T = 4.2$ К.

$$P_{\varepsilon}(r) = 4\pi\rho(\varepsilon)r^2 \exp\left(-\frac{4\pi\rho(\varepsilon)r^3}{3}\right),$$

$$\frac{1}{\tau_j(r)} = \frac{1}{\tau_{aj}} + \frac{1}{\tau_{hop}(r)}.$$

Второе слагаемое в правой части (13) описывает приход в состояние $\{\varepsilon, j\}$ из вышележащих состояний j . Спектральная интенсивность $I(E)$ по-прежнему определяется формулой (8), в которой в качестве энергетической функции распределения нужно подставить функцию

$$\mathfrak{N}_j(\varepsilon) = \int f_j(\varepsilon, r)P_{\varepsilon}(r)dr. \quad (15)$$

В данной модели пренебрегается зависимостью $\tau_{hop}(r)$ от энергии локализации экситонов. Однако в уравнении (13) автоматически учитывается, что с увеличением ε концентрация нижерасположенных локализованных состояний убывает, среднее расстояние между ними возрастает, а значит, возрастает и характерное время очередного прыжка.

Уравнение (13) решается, и при экспоненциальных зависимостях

$$\tau_{hop}(r) = \omega_0^{-1} \exp(2r/a), \quad \rho(\varepsilon) = \rho_0 \exp(-\varepsilon/\varepsilon_0)$$

получаем для формы полосы излучения

$$I(E) \propto \frac{\tau_{aj}}{\tau_{rj}} \exp[X + \text{Ei}(-X)], \quad (16)$$

где $\text{Ei}(-X)$ — интегральная показательная функция,

$$X_j = \frac{4\pi}{3} \tilde{r}^3 \rho(\varepsilon), \quad \tilde{r} = \frac{a}{2} \ln(\omega_0 \tau_{aj}),$$

a — величина, близкая к боровскому радиусу экситона. При выводе (16) учтен вклад только так называемых долгоживущих состояний. Точный ответ, содержащий также малый вклад короткоживущих состояний, приведен в [11]. Вычисленные на основе формулы (16) зависимости $\gamma(B, \lambda)$ (при $g_{\perp} \mu_0 B \gg \Delta$) и $I(\lambda)$ приведены на рис. 2,3 пунктиром (кривые 3).

Сравнение экспериментальных и теоретических данных (рис. 2,3, кривые 1-3) показывает, что в рамках обеих моделей удается достаточно успешно описать форму полосы фотолюминесценции локализованных экситонов (рис. 3), в то время как в описании зависимости $\gamma(\varepsilon)$ (рис. 2) намечается лишь качественное согласие теории и эксперимента. Мы полагаем, что это может быть связано с заложенным в обеих моделях упрощающим предположением о независимости времени безызлучательной рекомбинации локализованных экситонов τ_{nr} от энергии. Однако скорее всего время безызлучательной рекомбинации должно меняться, увеличиваясь по мере уменьшения «подвижности» локализованных экситонов, т.е. с увеличением энергии локализации экситонов.

В предположении, что вероятность рекомбинации локализованных экситонов зависит от энергии $\tau_{aj}^{-1}(\varepsilon) \equiv \tau_{rj}^{-1}(\varepsilon) + \tau_{nr}^{-1}(\varepsilon)$, решение уравнения (7) можно записать в виде

$$n_j(\varepsilon) = g(\varepsilon) \frac{S_j(\varepsilon) \tau_{aj}(\varepsilon) \tau_h(\varepsilon)}{\tau_{aj}(\varepsilon) + \tau_h(\varepsilon)}, \quad (17)$$

где

$$S_j(\varepsilon) = I_0 \exp \left\{ \int_0^{\varepsilon} \frac{g(\varepsilon)}{\rho(\varepsilon)} \frac{\tau_{aj}(\varepsilon)}{\tau_{aj}(\varepsilon) + \tau_h(\varepsilon)} d\varepsilon \right\}, \quad (18)$$

откуда по аналогии с (11) сразу получают выражения для $I(\lambda)$ и $\gamma(B, \lambda)$. Аппроксимация экспериментальных зависимостей $I(\lambda)$ и $\gamma(B, \lambda)$ в рамках этого более общего подхода включала в себя, таким образом, и подбор оптимальной функции $\tau_{nr}(\varepsilon)$. Время излучательной рекомбинации локализованных экситонов по-прежнему предполагалось не зависящим от энергии. При выборе между показательной и

степенной функциями лучше согласие между экспериментом и теорией было получено для линейной зависимости

$$\tau_{nr}(\varepsilon) = \tau_{nr0} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_1} + 1 \right), \quad (19)$$

где $\tau_{nr0} \equiv \tau_{nr}(0)$; ε_1 — параметр, введенный из соображений размерности. Вычисленные на основе соотношения (17) зависимости $\gamma(B, \lambda)$ и $I(\lambda)$ с учетом (19) и (10) приведены на рис. 2,3 (кривые 4) при значениях параметров: $E_0 = 2.186$ эВ, $\alpha = \tau_{b0}/\tau_r = 0.02$, $\beta = \tau_r/\tau_{nr0} = 18.6$, $\varepsilon_0 = 1 \cdot 10^{-3}$ эВ, $\varepsilon_1 = 5 \cdot 10^{-4}$ эВ. Видно, что при учете зависимости $\tau_{nr}(\varepsilon)$ достигается не только качественное, но и удовлетворительное количественное согласие теории и эксперимента. К аналогичному результату приводит и учет зависимости $\tau_a(\varepsilon)$ в микроскопической модели.

Данная работа была частично поддержана грантом Фонда Сороса, присужденным Американским Физическим обществом.

Список литературы

- [1] Wei S.-H., Ferreira L.G., Bernard J.E., Zunger A. // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. P. 9622–9649.
- [2] Schlüter M., Camassel J., Kohn S. et al. // Phys. Rev. B. 1976. V. 13. P. 3534–3547.
- [3] Алферов Ж.И., Портной Е.Л., Рогачев А.А. // ФТП. 1968. Т. 2. С. 1194–1197.
- [4] Lai S., Klein M.V. // Phys. Rev. Lett. 1980. V. 44. P. 1087–1090.
- [5] Oueslati M., Benoit a la Guillaume C., Zouaghi M. // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. P. 3037–3041.
- [6] Permogorov S., Reznitsky A. // J. Luminescence. 1992. V. 52. P. 201–223.
- [7] Гамарц Е.М., Ивченко Е.Л., Пикус Г.Е. и др. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 12. С. 3620–3627.
- [8] Mercier A., Voitchovsky J.P. // J. Phys. Chem. Sol. 1975. V. 36. P. 1411–1416.
- [9] Mooser E., Schlüter M. // Nuovo Cimento. 1973. V. 18B. P. 164–207.
- [10] Гамарц Е.М., Ивченко Е.Л., Караман М.И. и др. // ЖЭТФ. 1977. Т. 73. С. 1113–1127.
- [11] Абдукадыров А.Г., Барановский С.Д., Вербин С.Ю. и др. // ЖЭТФ. 1990. Т. 98. С. 2056–2066.

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
29 июля 1993 г.