

Собственная люминесценция аморфных и неупорядоченных кристаллических систем

© А.А. Клочихин

Институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук, 188350 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

Развит единый метод описания спектров стационарной люминесценции флукуационных состояний экситонов при слабом возбуждении в различных неупорядоченных системах. Показано, что бесфононная полоса люминесценции формируется "излучающими" состояниями флукуационного хвоста плотности состояний, т.е. такими состояниями, для которых отсутствуют или маловероятны безызлучательные переходы. Рассчитанная с учетом взаимодействия с фононами форма спектров излучения хорошо согласуется с экспериментальными спектрами люминесценции α -Si:H и твердых растворов $\text{ZnSe}_{(1-c)}\text{Te}_c$ и $\text{CdS}_{(1-c)}\text{Se}_c$.

Собственная люминесценция многих неупорядоченных систем [1], и, в частности, твердых растворов $\text{A}^{\text{II}}\text{B}^{\text{VI}}$ [2–4] обусловлена рекомбинацией экситонов, локализованных в ямах потенциального рельефа. Теоретическое описание этого процесса включает в себя:

1) Вычисление плотности флукуационных состояний в области энергий локализации $\omega \geq \omega_0$ (энергия отсчитывается от дна зоны виртуального кристалла и нарастает по мере углубления в запрещенную зону). Величина ω_0 представляет собой верхнюю границу области энергий, где состояния хвоста в нулевом приближении можно считать локализованными и изолированными друг от друга. Интегральная плотность состояний $N(\omega_0)$, т.е. полное число состояний с энергией локализации превышающей ω_0 , удовлетворяет неравенству $N(\omega_0)a^3 \ll 1$, где a — радиус волновой функции с энергией локализации порядка ω_0 . При подсчете числа состояний считается, что локализованные состояния экситонов возникают во флукуациях (кластерах), имеющих характер односвязных потенциальных ям.

2) Определение формы бесфононной полосы экситонного поглощения, на основании данных по плотности состояний. В случае аморфного кремния предполагалось, что форма края поглощения определяется плотностью состояний хвоста валентных зон.

3) Нахождение формы бесфононной полосы люминесценции при условии, что оптическая рекомбинация ограничивается временем жизни экситона по отношению к безызлучательному переходу в нижележащие состояния хвоста. Предполагается, что для любого локализованного состояния с энергией $\omega_1 \geq \omega_0$ можно указать сферу такого радиуса R_{int} , что если в пределах объема сферы $4\pi R_{\text{int}}^3/3$ находится по крайней мере еще одна потенциальная яма содержащая состояние с энергией локализации $\omega_2 \geq \omega_1$, то такие ямы образуют комплекс (суперкластер), между состояниями которого возможен переход с участием фононов. Интересующее нас распределение состояний хвоста по их принадлежности к суперкластерам приводится с использованием теории протекания по перекрывающимся сферам. Такой подход позволяет установить положение бесфононной полосы люминесценции относительно максимума бесфононной

полосы поглощения экситона и порога протекания в системе.

4) Учет взаимодействия флукуационных состояний с фононами. Стационарная концентрация заселенных состояний при непрерывном слабом межзонном возбуждении пропорциональна плотности состояний при данной энергии и времени их жизни. Вероятность излучения заселенных состояний описывается той же оптической

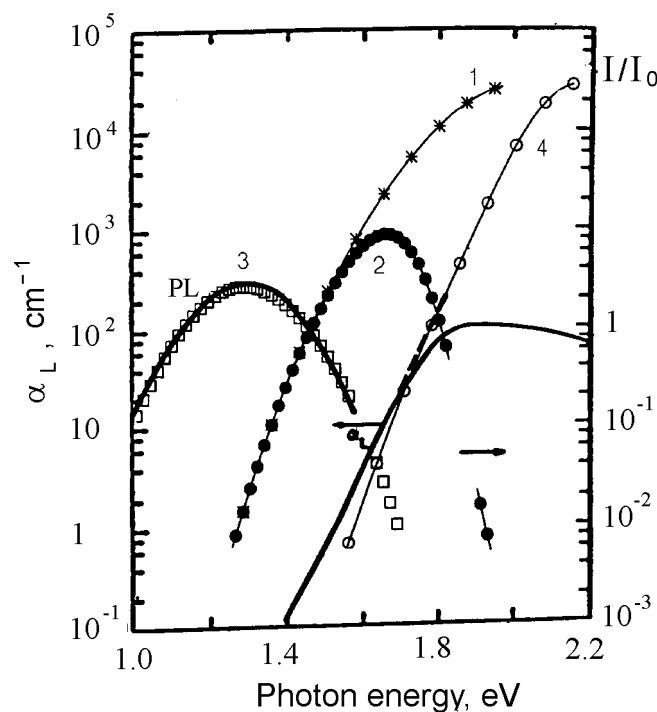


Рис. 1. Сравнение экспериментальных оптических спектров из работы [1] с результатами расчета. 1 — рассчитанная в [6] плотность состояний валентных зон, принятая в данном расчете за бесформенную оптическую плотность состояний, 2 — контур полосы "излучающих" состояний, найденный по формуле (1), 3 — форма полосы люминесценции, квадратики — расчет, сплошная кривая — экспериментальный спектр в относительных единицах, 4 — форма края фундаментального поглощения, жирный пунктир — экспериментальный спектр поглощения (левая шкала), тонкая линия с пустыми кружочками — расчет с учетом взаимодействия с фононами.

плотностью, что и коэффициент бесфононного поглощения $\alpha^0(\omega)$, поэтому бесфононную полосу люминесценции можно представить в виде

$$I^0(\omega) \sim \alpha^0(\omega)P(\omega)\tau_{\text{rad}}, \quad (1)$$

где $P(\omega)$ — суммарная относительная доля излучающих состояний с энергией локализации ω принадлежащих суперкластерам различного размера. Вклад в $P(\omega)$ от изолированных ям и основных состояний пар может быть представлен как

$$P(\omega) \sim \left[\exp\{-2\mathcal{P}(\omega)\} + \mathcal{P}(\omega) \exp\{-3.073\mathcal{P}(\omega)\} \right], \quad (2)$$

где $\mathcal{P}(\omega) = (1/2) [R_{\text{int}}/\overline{r(\omega)}]^3$, и $\overline{r(\omega)} = (N^{-1}(\omega)3/4\pi)^{1/3}$. Здесь $N(\omega)$ интегральная плотность состояний, а $\mathcal{P}(\omega)$ представляет собой плотность локализованных экситонов в единицах первого вириального коэффициента. В расчетах для плотности экситонных состояний на пороге протекания ω_{ME} использовано значение $\mathcal{P}(\omega_{\text{ME}}) = 1.40$ [5]. Изолированные потенциальные ямы и суперкластеры минимальных размеров обеспечивают во всех случаях основные вклады, в то время как старшие члены дают лишь малые поправки.

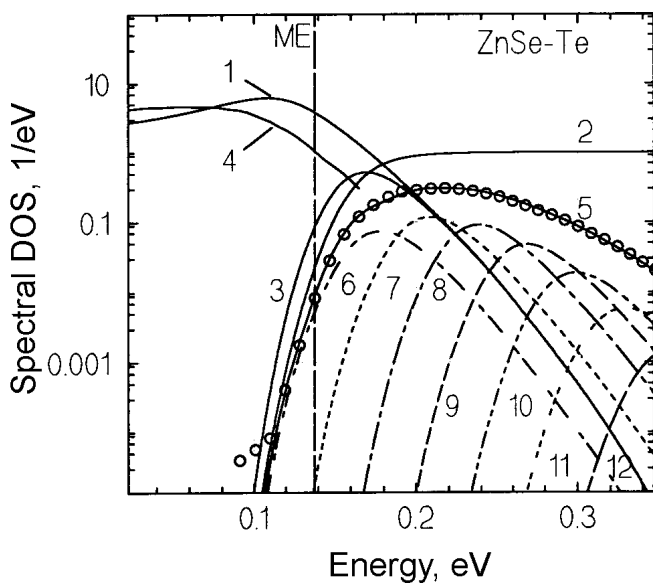


Рис. 2. Спектр люминесценции $\text{ZnSe}_{0.85}\text{Te}_{0.15}$ (кружки). 1 — бесфононная полоса оптической плотности основного состояния экситона, 2 — относительная доля "излучающих" состояний $P(\omega)$, 3 — бесфононная полоса люминесценции ("излучающие" состояния), 4 — полоса поглощения основного состояния экситона с учетом взаимодействия с акустическими и оптическими фононами, 5 — вычисленный контур полосы люминесценции, 6–12 — контур полосы люминесценции с учетом взаимодействия с акустическими фононами и его повторения с частотой продольного оптического фонона. Вертикальная прямая отмечает положение порога протекания.

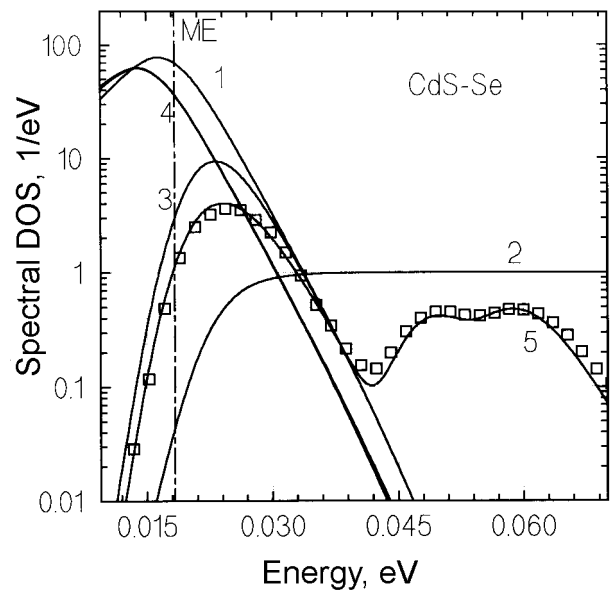


Рис. 3. Спектр люминесценции $\text{CdS}_{0.50}\text{Se}_{0.50}$ (квадратики). 1–5 — то же самое, что и на рис. 2.

На рис. 1 представлены теоретический и экспериментальный [1] спектры люминесценции $\alpha\text{-Si:H}$. Плотность состояний валентных зон рассчитана с использованием параметров, найденных ранее в [6]. Взаимодействие с фононами описывалось в модели Эйнштейна причем энергия фонона была взята равной 18 meV.

На рис. 2 и 3 приведены спектры люминесценции твердых растворов $\text{ZnSe}_{0.85}\text{Te}_{0.15}$ и $\text{CdS}_{0.50}\text{Se}_{0.50}$. Для достижения согласия с экспериментальными данными учитывалось взаимодействие экситонов как с оптически так и с акустическими фононами [4].

Сравнение экспериментальных и теоретических данных показывает, что предложенный подход оправдывает себя для широкого круга неупорядоченных систем.

Работа поддержана фондами INTAS (грант 94-324) и РФФИ (гранты 96-02-16933 и 97-02-18138).

Список литературы

- [1] R.A. Street. *Adv. Phys.* **30**, 593 (1981).
- [2] S. Permogorov, A. Reznitsky. *J. Lumin.* **52**, 201 (1992).
- [3] E. Cohen, M. Sturge. *Phys. Rev.* **B25**, 3828 (1982).
- [4] A.A. Клочихин, С.А. Пермогоров, А.Н. Резницкий. *ФТТ* **39**, 7, 1170 (1997).
- [5] S.W. Haan, R. Zwanzig. *J. Phys. A: Math. Gen.* **10**, 1547 (1977).
- [6] A.A. Klochikhin. *Phys. Rev.* **B53**, 10979 (1995).