

Диффузия экситонов в твердых растворах CdS–Se и ZnSe–Te при высоких уровнях возбуждения

© А.А. Клочихин, С.А. Пермогоров*, А.Н. Резницкий*, Т. Breitkopf**, R. Westphaling**, С. Klingshirn**

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

* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

** Institut für Angewandte Physik, Universität Karlsruhe, 76128 Karlsruhe, Deutschland

Показано, что при сильном импульсном возбуждении интенсивность полосы рекомбинации экситонов флуктуационного хвоста плотности состояний в пределе больших времен в присутствии ловушек описывается асимптотикой решения уравнения диффузии. Критический индекс диффузии соответствует "нормальному" характеру процесса в твердом растворе CdS–Se и "аномальной" диффузии в случае ZnSe–Te.

При слабом возбуждении собственная люминесценция твердых растворов формируется "излучающими" состояниями хвоста плотности состояний, которые образованы в результате локализации экситона на флуктуационных изолированных кластерах атомов узкозонной компоненты или на основных состояниях комплексов (суперкластеров), состоящих из небольшого числа таких кластеров [1,2].

При достаточной мощности возбуждения, когда экситоны в результате импульса межзонной накачки заполняют не только относительно малочисленные изолированные локализованные состояния, но также и состояния, принадлежащие крупным суперкластерам и перколяционному кластеру, в кристалле появятся возбуждения, способные к ограниченному или свободному распространению по объему. Нас будет интересовать интервал времен $\Delta t \gg \tau_{dec}$, где τ_{dec} — время перескока экситона в соседнюю яму. В этих условиях подвижный экситон может совершить много прыжков за время своего существования. Как следствие, можно предположить, что а) спустя некоторый интервал времени после импульса возбуждения в системе экситонов установится квазиравновесное распределение; б) развитие ситуации во времени будет определяться диффузией экситонов к ловушкам, причем в этих условиях можно использовать известную асимптотику решения уравнения диффузии в пределе больших времен [3–7].

Асимптотика решения уравнений "нормальной" диффузии для вероятности выживания экситона в объеме свободной от ловушек сферы радиуса R в течение времени t имеет вид [5]

$$P(R, t) \sim \exp \left\{ -\gamma_d \frac{Dt}{R^2} \right\}, \quad (1)$$

где γ_d — зависящая от размерности пространства d константа, а D — коэффициент диффузии экситонов. Усреднение вероятности выживания подвижных экситонов по всем возможным размерам областей R с использованием

оптимизационной процедуры [5] дает зависимость вида

$$P_{opt} = \exp \left\{ -(1 + 2/d) \gamma_d^{d/(d+2)} \left(\frac{dC_d}{2} \right)^{2/(d+2)} \times N_{tr}^{2/(d+2)} (Dt)^{d/(d+2)} \right\}, \quad (2)$$

где N_{tr} — средняя концентрация ловушек в кристалле, а C_d — зависящая от d безразмерная константа. Как следует из уравнения (2), в случае нормальной диффузии логарифм интенсивности полосы люминесценции линейным образом зависит от дробной степени t

$$\ln(I(t)) \sim t^{d/(d+2)}. \quad (3)$$

Если "оптимальные" размеры областей диффузии R_{opt} , дающих основной вклад в интенсивность полосы, сравнимы с корреляционной длиной ξ перколяционного кластера [7] ($R_{opt} \leq \xi$), то режим диффузии станет аномальным. В этом случае в (3) размерность пространства d следует заменить на "гиперуниверсальную" фрактонную размерность [8,9], т.е. на спектральную размерность перколяционного кластера d_s :

$$\ln(I(t)) \sim t^{(d_s/(d_s+2))}. \quad (4)$$

В (4) $d_s = 2d_f/d_w$, где d_f — фрактальная размерность (для трехмерного пространства $d_f \approx 2.51$ [10]), а d_w — индекс фрактальной размерности случайных блужданий [7] ($d_w \approx 3.8$ для $d = 3$). Как видно из (4), диффузия существенно замедляется по сравнению с "нормальной".

Дальнейшее замедление процесса происходит, если диффузия осуществляется частично по суперкластерам конечного размера. В этом случае следует заменить в (3) d на индекс $2d_f/d'_w$ [7], где

$$d'_w = d_w / (1 - \beta/2\nu), \quad (5)$$

а β и ν — критические индексы параметра порядка и корреляционной длины [10], для $d = 3$ величина $d'_w \approx 5.01$ [7].

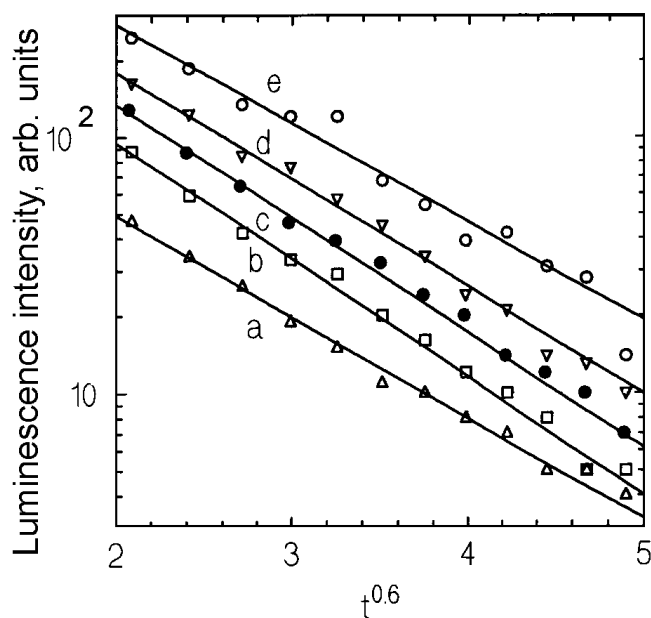


Рис. 1. Кинетика затухания интегральной интенсивности люминесценции CdS_{0.93}Se_{0.07} в интервале 3–16 ns при $T = 8$ K и плотности возбуждения 600, 200, 60, 6 и $2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ (точки на кривых a–e). Сплошные линии — зависимость $I(t) \sim \exp(-t^\nu)$ с показателем ν , равным 0.57, 0.61, 0.61, 0.59 и 0.56 соответственно.

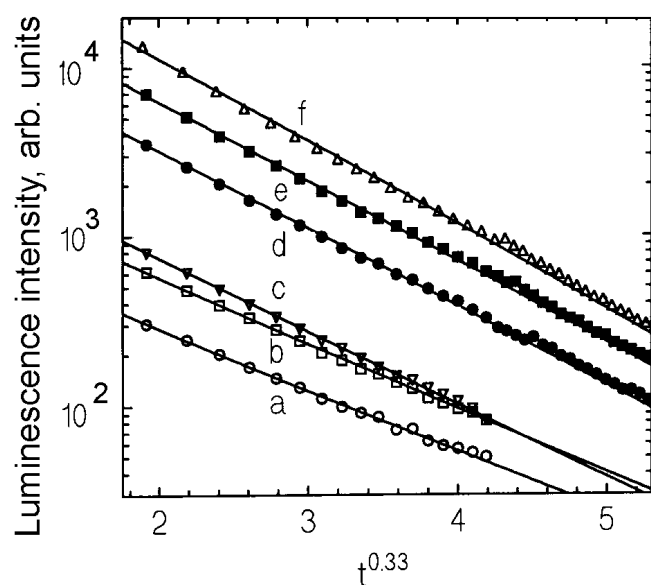


Рис. 2. То же, что на рис. 1, для образца ZnSe_{0.93}Te_{0.07} в интервале 10–160 ns и плотности возбуждения 1000, 300, 100, 30, 10 и $3 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ (точки на кривых a–f). Для сплошных линий показатель степени t равен 0.35, 0.34, 0.34, 0.33, 0.31 и 0.30 соответственно.

Мы исследовали кинетику затухания люминесценции твердых растворов CdS–Se и ZnSe–Te при высоких интенсивностях межзонного возбуждения импульсами субнаносекундной длительности. Условия экспериментов можно найти, например, в [11].

На рис. 1 представлены зависимости интегральной интенсивности полосы люминесценции CdS–Se от времени $I(t)$ при различных уровнях накачки. Из рисунка видно, что во всех случаях $I(t)$ описывается зависимостью вида (3), при этом индекс асимптотики близок к его величине для нормальной диффузии $\ln(I(t)) \sim t^{-0.6}$.

На рис. 2 приведены аналогичные зависимости для спектра твердого раствора ZnSe–Te. В отличие от предыдущего случая здесь критический индекс примерно равен 0.33, что хорошо согласуется со значением показателя $d_f/(d_f + d'_w)$, как это следует из (3) после замены d на $2d_f/d'_w$.

Наиболее вероятной причиной, приводящей к различной асимптотике диффузии, является различное содержание ловушек в этих двух твердых растворах. Как показывает прямое измерение величины квантового выхода люминесценции при слабых уровнях возбуждения, в исследованных образцах эта величина составляет примерно 0.7 в CdS–Se и 0.03 в ZnSe–Te. Следовательно условие, при котором фрактальная структура протекающего кластера станет существенной для процесса диффузии $R_{opt} \leq \xi$, будет выполнено раньше для кристалла с большим содержанием ловушек. Систематическое исследование взаимосвязи скорости затухания и величины квантового выхода люминесценции является целью ближайших экспериментов.

Работа выполнена при содействии Deutschen Forschungsgemeinschaft (раздел SFB 195) и поддержана фондами INTAS (грант 94-324) и РФФИ (гранты 96-02-16933 и 97-02-18138).

Список литературы

- [1] А.А. Клочихин, С.А. Пермогоров, А.Н. Резницкий. Письма в ЖЭТФ **65**, 274 (1997).
- [2] А.А. Клочихин, С.А. Пермогоров, А.Н. Резницкий. ФТТ **39**, 7, 1170 (1997).
- [3] Б.Я. Балагуров, В.Г. Вакс. ЖЭТФ **65**, 1939 (1973).
- [4] N.D. Donsker, S.R. Varadhan. Commun. Pure Appl. Math. **32**, 721 (1979).
- [5] P. Grassberger, I. Procaccia. J. Chem. Phys. **77**, 6281 (1982).
- [6] V. Kuzovkov, E. Kotomin. Rep. Prog. Phys. **51**, 1479 (1988).
- [7] S. Havlin, A. Bunde. Percolation II in *Fractals and Disordered Systems* / Ed. A. Bunde and S. Havlin. Springer-Verlag, Berlin (1991). P. 97.
- [8] S. Alexander, R. Orbach. J. Physique Lett. **43**, L625 (1982).
- [9] T. Nakayama, K. Yakubo, R. Orbach. Rev. Mod. Phys. **66**, 381 (1994).
- [10] A. Bunde, S. Havlin. Percolation I in *Fractals and Disordered Systems* / Ed. A. Bunde and S. Havlin. Springer-Verlag, Berlin (1991). P. 51.
- [11] T. Breitkopf, H. Kalt, C. Lkingshirn, A. Reznitsky. J. Opt. Soc. Am. **B13**, 1251 (1996).