

03,09

## Динамика поляризованной магнитолюминесценции локализованных экситонов в смешанных кристаллах GaSe—GaTe

© А.Н. Старухин, Д.К. Нельсон, Б.С. Разбирин, Д.Л. Федоров, Д.К. Сюняев

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

E-mail: a.starukhin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 23 декабря 2014 г.)

Методом спектроскопии с временным разрешением исследована индуцированная внешним магнитным полем поляризация излучения триплетных локализованных экситонов в одноосных твердых растворах GaSe—GaTe (геометрия Фойгта). Возникающая в магнитном поле линейная поляризация излучения обусловлена различным поведением в поле компонент излучения, поляризованных с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  и  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$  ( $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент соответственно). В стационарных условиях возбуждения неполяризованным светом интенсивность  $\pi$ -компоненты в поле увеличивается, а интенсивность  $\sigma$ -компоненты плавно уменьшается при увеличении поля. Установлено, что зависимости интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент излучения от магнитного поля,  $I_\pi(B, t)$  и  $I_\sigma(B, t)$ , существенно меняются в течение времени жизни возбужденных состояний  $t$ . Различная скорость затухания  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент приводит к сильной зависимости степени индуцированной магнитным полем линейной поляризации экситонного излучения от времени  $t$ . Степень линейной поляризации излучения в максимуме экситонной полосы люминесценции в полях  $B \geq 0.4$  Т при больших  $t$  приближается к 1. Предложено теоретическое описание наблюдаемых зависимостей  $I_\pi(B, t)$  и  $I_\sigma(B, t)$ . Из сравнения теории и эксперимента определены параметры тонкой структуры и времена жизни триплетных экситонов в различных спиновых состояниях.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 13-02-00891).

### 1. Введение

Смешанные кристаллы представляют собой слабо неупорядоченные системы, в которых сохраняется геометрический дальний порядок в расположении атомов. Флуктуации состава смешанного кристалла порождают флуктуационный электронный потенциал, ответственный за наличие границы подвижности для электронов и дырок и формирование хвостов плотности локализованных состояний [1]. Кулоновское взаимодействие локализованных электронов (или дырок) с носителями заряда противоположного знака приводит к формированию двухчастичных состояний — локализованных экситонов [2–6]. Наличие набора экситонных состояний с различной энергией локализации приводит к существенному неоднородному уширению экситонных полос излучения в смешанных кристаллах, что препятствует прямому исследованию энергетической структуры локализованных экситонов методами оптической спектроскопии. В этих условиях эффективным методом получения информации о тонкой энергетической структуре экситонных состояний может явиться метод поляризованной люминесценции [7–9], в том числе, исследования поляризационных характеристик экситонного излучения во внешнем магнитном поле.

При непрерывном возбуждении люминесценции зависимости интенсивностей компонент излучения, поляризованных вдоль осей  $X, Y$ , от магнитного поля,  $I_{x,y}(B)$ , определяются вкладами в излучение элементарных излучателей, возбужденных в различные моменты времени  $t$ ,

предшествующие моменту регистрации излучения

$$I_{x,y}(B) = \text{const} \int_0^\infty I_{x,y}(B, t) dt. \quad (1)$$

Вид зависимостей  $I_{x,y}(B, t)$  (а следовательно, и  $I_{x,y}(B)$ ) определяется оптической активностью состояний тонкой структуры спектра в соответствующей поляризации и эволюцией их заселенностей со временем. Формально, однако, одна и та же зависимость  $I_{x,y}(B)$  может соответствовать различным наборам зависимостей  $I_{x,y}(B, t)$ . В связи с этим точная информация о зависимостях  $I_{x,y}(B, t)$  позволяет заметно повысить достоверность выводов о свойствах излучателей, ответственных за поляризованную люминесценцию (сравнительно с анализом данных, полученных в условиях непрерывного возбуждения). Целью настоящей работы явилось исследование методом спектроскопии с временным разрешением эффекта магнитоиндуцированной линейной поляризации излучения локализованных экситонов в твердых растворах GaSe—GaTe. Наряду с установлением деталей тонкой энергетической структуры локализованных экситонов в смешанных кристаллах, задачей исследования было выяснить влияние особенностей энергетической релаксации локализованных экситонов на проявление изучаемого магнитооптического эффекта.

Эффект магнитоиндуцированной линейной поляризации наблюдался ранее в излучении экситонов, связанных на ионизованных центрах, в чистых кристаллах селенида галлия [10]. При распространении света вдоль оптической оси кристаллов с эффект наиболее ярко проявляется при приложении к кристаллу поперечного ( $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$ )

магнитного поля. Эффект наблюдается в условиях неполяризованной накачки и не связан с термализацией экситонов между различными зеемановскими подуровнями. Появление линейной поляризации обусловлено формированием в магнитном поле новой системы состояний тонкой структуры экситонного спектра, в которой состояния, оптически активные в поляризациях  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  и  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$  (ответственные за  $\pi$ - и  $\sigma$ -компоненты излучения соответственно) имеют существенно разные времена жизни.

## 2. Методика эксперимента

Кристаллы селенида и теллурида галлия относятся к группе слоистых кристаллов  $A^{III}B^{VI}$ . Твердые растворы  $\text{GaSe}_{1-x}\text{Te}_x$  ( $x = 0.05; 0.15$ ) выращивались методом Бриджмена и специально не легировались. Образцы для исследований получались из слитков путем скалывания вдоль плоскости кристаллических слоев перпендикулярно оптической оси кристаллов. Возбуждение экситонной люминесценции кристаллов осуществлялось излучением импульсного лазера на парах меди ( $h\nu_{\text{exc}} = 2.428 \text{ eV}$ ) с длительностью импульсов  $\tau_p = 20 \text{ ns}$  и частотой повторения  $10 \text{ kHz}$ . Плотность возбуждения в импульсе составляла около  $100 \text{ W/cm}^2$ . Возбуждающий свет с энергией фотонов  $h\nu_{\text{exc}} > E_g$  ( $E_g$  — ширина запрещенной зоны смешанного кристалла) падал под малым углом к нормали ( $\mathbf{n} \parallel z$ ) к поверхности образца, излучение регистрировалось в направлении нормали, параллельно оптической оси кристалла  $c$  (геометрия „на отражение“). Для регистрации спектров использовался дифракционный спектрометр, снабженный устройством счета фотонов с временным разрешением  $\sim 30 \text{ ns}$ . Средняя величина темного тока в системе счета фотонов составляла менее 1 импульса в секунду. Для исследования излучения в различные моменты жизни возбужденных состояний импульс ворот системы счета фотонов был задержан по отношению к возбуждающему импульсу. В каждом случае проверялась линейность отклика системы регистрации на изменение интенсивности излучения, падающего на входную щель спектрометра. Для получения магнитных полей применялся сверхпроводящий соленоид. Во время эксперимента образцы находились в жидком гелии при температуре  $2 \text{ K}$ . Поскольку экспериментальные результаты, относящиеся к составам с  $x = 0.05$  и  $0.15$  подобны, в дальнейшем будет рассмотрено поведение поляризованной люминесценции в кристалле  $\text{GaSe}_{0.85}\text{Te}_{0.15}$ .

## 3. Экспериментальные результаты

Спектр люминесценции локализованных экситонов в твердом растворе  $\text{GaSe}_{0.85}\text{Te}_{0.15}$  при межзонном возбуждении светом приведен на рис. 1. Спектр состоит из асимметричной полосы шириной  $\sim 0.04 \text{ eV}$ . Форма полосы отражает распределение локализованных экс-

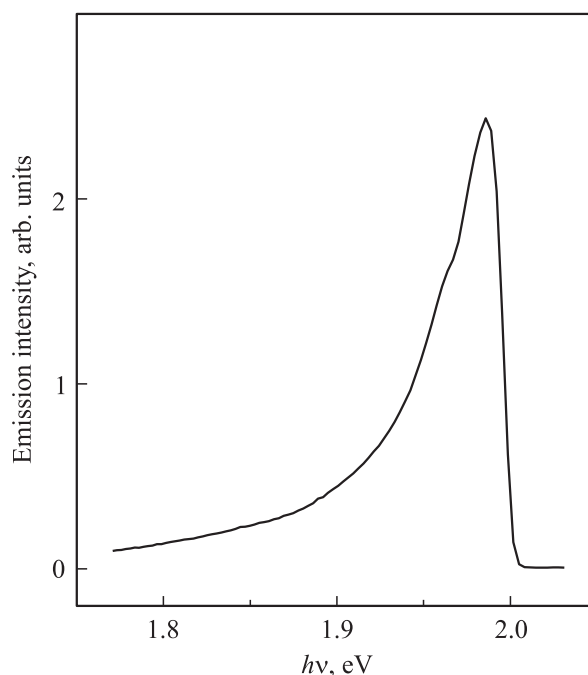
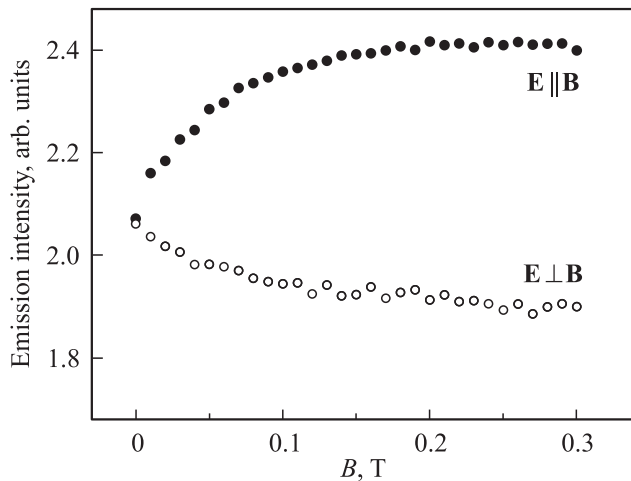


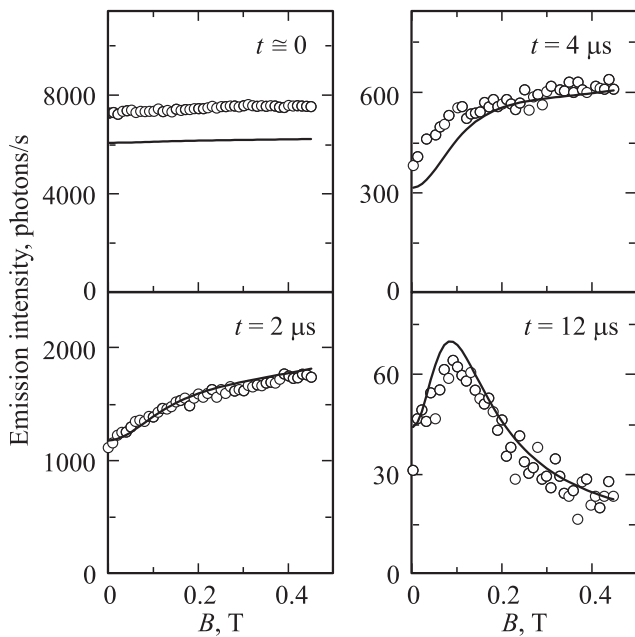
Рис. 1. Спектр люминесценции твердого раствора  $\text{GaSe}_{0.85}\text{Te}_{0.15}$  при межзонном возбуждении.  $T = 2 \text{ K}$ .

тонов по состояниям с различной энергией локализации [5,11], при этом положение коротковолнового края соответствует энергии образования локализованных экситонов на границе подвижности [11] с энергией локализации  $\varepsilon \approx 0$ . При увеличении температуры кристалла интенсивность люминесценции быстро уменьшается. Форма полосы люминесценции, ее спектральное положение и температурная зависимость типичны для локализованных экситонов.

Приложение магнитного поля, ортогонального оптической оси кристалла и направлению распространения света ( $\mathbf{B} \perp c \parallel \mathbf{k}_{\text{photon}}$  — геометрия Фойгта) приводит к изменению интенсивности экситонного излучения. Рис. 2 иллюстрирует изменение интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент излучения твердого раствора  $I_{\pi,\sigma}(B)$  в максимуме полосы излучения ( $h\nu_{\text{det}} = 1.986 \text{ eV}$ ) в условиях непрерывного возбуждения кристалла. Интенсивность компоненты экситонного излучения, поляризованной с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ ,  $I_{\pi}(B)$ , монотонно увеличивается в интервале полей  $0-0.2 \text{ T}$ , в то время как интенсивность другой компоненты, поляризованной с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ ,  $I_{\sigma}(B)$ , уменьшается (при этом полная интенсивность экситонного излучения в поле возрастает). При дальнейшем увеличении поля ( $B > 0.2 \text{ T}$ ) интенсивность излучения практически не меняется (рис. 2). Такое поведение интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент приводит к появлению в поле преимущественной линейной поляризации излучения с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ . При  $B = 0.2 \text{ T}$  величина степени линейной поляризации минимальна на коротковолновом краю полосы излучения, увеличивается по мере увеличения длины волны, достигает наибольшего значения в максимуме полосы



**Рис. 2.** Экспериментальные зависимости интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент излучения триплетных локализованных экситонов при  $h\nu_{\text{det}} = 1.986 \text{ eV}$  от магнитного поля,  $I_{\pi}(B)$  и  $I_{\sigma}(B)$ , в условиях стационарного возбуждения.  $T = 2 \text{ K}$ .



**Рис. 3.** Зависимость интенсивности  $\pi$ -компоненты излучения триплетных локализованных экситонов при  $h\nu_{\text{det}} = 1.986 \text{ eV}$  от магнитного поля в различные моменты жизни  $t$  экситонов. Время  $t$  указано на рисунке. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчетная зависимость.  $T = 2 \text{ K}$ .

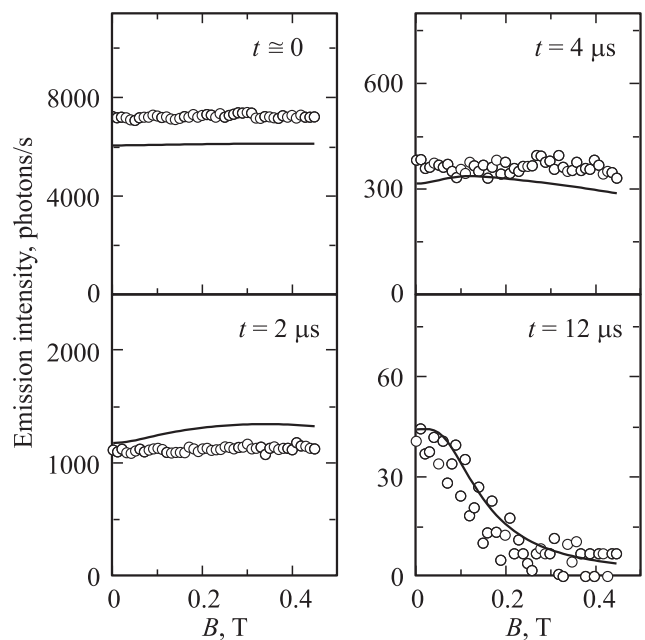
и при дальнейшем увеличении длины волны излучения практически не меняется.

Рассмотрим теперь временную эволюцию зависимостей интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент излучения от магнитного поля. На рис. 3 представлены зависимости интенсивности  $\pi$ -компоненты излучения ( $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ ) в максимуме экситонной полосы от магнитного поля в различные моменты времени  $t$  после окончания возбуж-

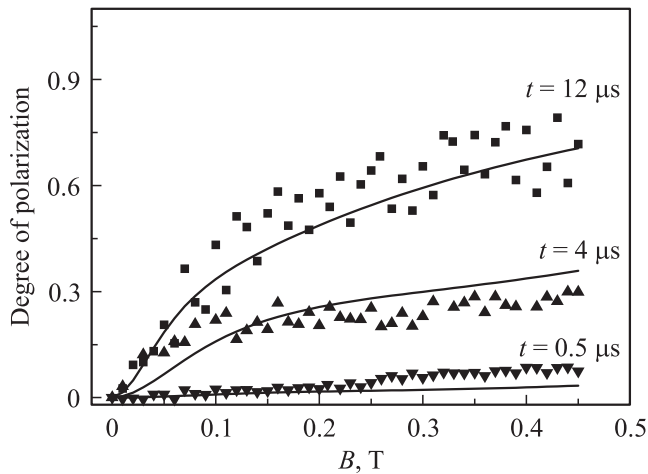
дающего импульса  $I_{\pi}(B, t)$ . Интервал времени, в течение которого проводилась регистрация (ширина импульса ворот), составлял  $\Delta t = 150 \text{ ns}$ . Временная эволюция зависимости от магнитного поля компоненты излучения, поляризованной с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ ,  $I_{\sigma}(B, t)$ , показана на рис. 4. Поскольку при  $t > 0$  зависимости  $I_{\pi}(B, t)$  и  $I_{\sigma}(B, t)$  различны, они будут описаны по отдельности.

Поляризация  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  ( $\pi$ -компонента излучения). При  $t \approx 0$  интенсивность компоненты, поляризованной с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ , практически не зависит от магнитного поля (рис. 3). По мере увеличения времени задержки поведение  $\pi$ -компоненты в магнитном поле меняется: ее интенсивность монотонно растет с увеличением магнитного поля во всем интервале полей (рис. 3,  $t = 2 \mu\text{s}$ ). В этом отношении вид зависимости  $I_{\pi}(B, t)$  в интервале  $0 < t \leq 4 \mu\text{s}$  подобен зависимости интенсивности излучения  $\pi$ -компоненты от магнитного поля  $I_{\pi}(B)$  в случае непрерывного возбуждения люминесценции (рис. 2). При  $t > 4 \mu\text{s}$  в зависимости интенсивности  $\pi$ -компоненты от магнитного поля (при фиксированном  $t$ ) формируется максимум (рис. 3,  $t = 12 \mu\text{s}$ ), который по мере увеличения  $t$  смещается в область меньших магнитных полей.

Поляризация  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$  ( $\sigma$ -компонента излучения). Временное поведение зависимости  $I_{\sigma}(B, t)$  оказывается иным, чем  $I_{\pi}(B, t)$ . Кроме того, в целом компонента излучения, поляризованная с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ , затухает в магнитном поле быстрее, чем компонента, поляризованная с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ . При  $t \approx 0$  интенсивность  $\sigma$ -компоненты, как и компоненты, поляризованной с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ , практически



**Рис. 4.** Зависимость интенсивности  $\sigma$ -компоненты излучения триплетных локализованных экситонов при  $h\nu_{\text{det}} = 1.986 \text{ eV}$  от магнитного поля в различные моменты жизни  $t$  экситонов. Время  $t$  указано на рисунке. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчетная зависимость.



**Рис. 5.** Зависимость степени линейной поляризации излучения триплетных локализованных экситонов при  $h\nu_{det} = 1.986 \text{ eV}$  от магнитного поля,  $P_{lin}(B, t)$ , в различные моменты жизни  $t$  экситонов. Время  $t$  указано на рисунке. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчетная зависимость.

не зависит магнитного поля (рис. 4). Такое поведение интенсивности  $\sigma$ -компоненты наблюдается в широком интервале времен задержки (рис. 4,  $t = 4 \mu\text{s}$ ). Начиная с  $t \approx 6 \mu\text{s}$ , приложение магнитного поля приводит к слабому уменьшению интенсивности  $\sigma$ -компоненты. По мере увеличения времени задержки спад интенсивности  $\sigma$ -компоненты в поле становится хорошо выраженным (рис. 4,  $t = 12 \mu\text{s}$ ).

Поляризационные характеристики излучения. Затухание компонент экситонного излучения, поляризованных с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  и  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ , происходит с различными скоростями, что приводит к появлению индуцированной магнитным полем линейной поляризации излучения. Степень линейной поляризации можно определить как

$$P_{lin}(B, t) = \frac{I_{\pi}(B, t) - I_{\sigma}(B, t)}{I_{\pi}(B, t) + I_{\sigma}(B, t)}. \quad (2)$$

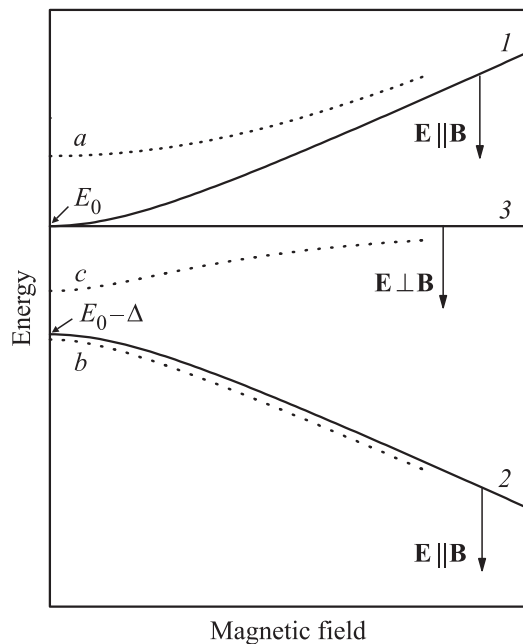
При  $B = 0$  экситонное излучение неполяризовано  $P_{lin}(0, t) = 0$ . Приложение магнитного поля приводит к появлению преимущественной линейной поляризации излучения с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  (рис. 5). По мере увеличения времени задержки вид зависимости  $P_{lin}(B, t)$  меняется: скорость нарастания степени поляризации в магнитном поле резко увеличивается. При этом, достигнув практически максимального значения в области малых полей  $B \approx 0.2 \text{ T}$ , при дальнейшем увеличении поля величина  $P_{lin}(B, t)$  почти не меняется (рис. 5,  $t = 0.5 \mu\text{s}$ ,  $t = 4 \mu\text{s}$ ), либо слабо увеличивается (рис. 5,  $t = 12 \mu\text{s}$ ). Максимальное значение степени линейной поляризации, достигаемое в магнитном поле, с увеличением времени задержки монотонно растет от  $P_{lin}(B, t) \approx 0.1$  при  $t = 0.5 \mu\text{s}$  до  $P_{lin}(B, t) \approx 0.7$  при  $t = 12 \mu\text{s}$  (рис. 5). Таким образом, максимальное значение  $P_{lin}(B, t)$  увеличивается по мере увеличения времени пребывания

локализованных экситонов в магнитном поле, достигая при больших  $t$  практически 100%.

#### 4. Обсуждение результатов

Наблюдаемое поведение  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент излучения в магнитном поле отражает свойства состояний тонкой структуры экситонного спектра. Эксперименты по селективному лазерному возбуждению локализованных экситонов в смешанных кристаллах GaSe–GaTe показывают, что в больших магнитных полях эффект Зеемана на локализованных экситонах аналогичен эффекту Зеемана на триплетных экситонах, связанных на ионизованных центрах в GaSe [12]. В кристаллах GaSe орбитально-невырожденное состояние  $\Gamma_4$  экситона, связанного на ионизованном центре (или изоэлектронной ловушке), как и основное состояние прямого свободного экситона, при учете обменного взаимодействия расщепляется на два состояния — синглетное и триплетное [13,14]. Синглетные экситоны оптически активны в поляризации света  $\mathbf{E} \parallel c$  и в условиях нашего эксперимента ( $\mathbf{E} \perp c$ ) не проявляются.

Триплетные экситоны характеризуются полным спином  $S = 1$  и проекциями спина на оптическую ось  $c$ :  $S_z = 0, \pm 1$ . Переходы в состояния с  $S_z = \pm 1$  разрешены в поляризации света  $\mathbf{E} \perp c$ , состояние с  $S_z = 0$  оптически неактивно [13]. В силу анизотропии кристалла состояние с  $S_z = 0$  отщеплено от состояний с  $S_z = \pm 1$  на величину  $\Delta$  (рис. 6) [14]. Поперечное магнитное поле  $\mathbf{B} \perp c$  вызывает смешивание состояний с  $S_z = \pm 1$  и  $S_z = 0$ , что приводит к возгоранию оптически неактивного состояния с  $S_z = 0$ . В результате линия излучения



**Рис. 6.** Схема энергетических уровней триплетного экситона в магнитном поле  $\mathbf{B} \perp c$  при  $V = 0$  (сплошные линии) и  $V \neq 0$  (пунктир) (см. текст).

экситона расщепляется в триплет (рис. 6). Энергии состояний 1–3 триплетного экситона в поперечном магнитном поле описываются выражением [15]

$$E_{1,2} = E_0 - 0.5[\Delta \mp (\Delta^2 + \Omega^2)^{0.5}], \quad E_3 = E_0, \quad (3)$$

где  $\Omega = g_{\perp} \mu_0 B$ ,  $g_{\perp} \equiv g_{xx} = g_{yy}$  — поперечная компонента  $g$ -фактора экситона,  $\mu_0$  — магнетон Бора. Схема расщепления уровней энергии триплетного экситона в поперечном магнитном поле приведена на рис. 6.

Для анализа излучательных переходов в поперечном магнитном поле удобно перейти от базисных волновых функций  $|\pm 1\rangle$  и  $|0\rangle$  к системе функций  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$ ,  $|0\rangle$ . Волновые функции  $|X\rangle = i(|1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$  и  $|Y\rangle = (|1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$  описывают состояния экситона при  $B = 0$ , оптически активные в поляризациях света  $\mathbf{E} \parallel x$  и  $\mathbf{E} \parallel y$  соответственно. Магнитное поле  $\mathbf{B} \parallel x$  смешивает состояния  $|X\rangle$  и  $|0\rangle$ , приводя к формированию состояний 1 и 2, энергии которых определены (3). Учитывая, что состояние  $|0\rangle$  оптически неактивно, излучательные переходы из состояний 1 и 2 поляризованы так же, как и переходы из состояния  $|X\rangle$ , то есть с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B} \parallel x$  (рис. 6). Доля оптически активного состояния  $|X\rangle$  в волновых функциях состояний 1 и 2 определяет излучательные времена жизни экситонов в этих состояниях. Свойства третьего состояния,  $|Y\rangle$  в поле  $\mathbf{B} \parallel x$  не меняются. В соответствии с (3) его энергия в поле неизменна  $E_3 = E_0 = \text{const}$ , а излучение экситона в состоянии 3 поляризовано с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ . Однако вытекающая из рассмотренной выше модели зависимость  $I_{\sigma}(B)$  находится в противоречии с экспериментальными данными. Действительно, в рамках описанного выше изменения свойств различных спиновых состояний триплетного экситона в магнитном поле интенсивность компоненты экситонного излучения, поляризованной с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ , не должна зависеть от магнитного поля, то есть  $I_{\sigma}(B) = \text{const}$ , что противоречит экспериментальным результатам, приведенным на рис. 2. В принципе, незначительное изменение интенсивности излучательных переходов из состояния 3, которые определяют интенсивность компоненты излучения, поляризованной с  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ , возможно вследствие процессов спиновой релаксации экситонов, приводящих к их термализации. Однако ни величина обусловленного термализацией эффекта, ни характер вычисленных зависимостей  $I_{\pi}(B)$  и  $I_{\sigma}(B)$  не соответствуют экспериментально наблюдающимся особенностям магнитолюминесценции. Оставаясь в рамках модели триплетных экситонов, особенности поведения компоненты  $I_{\sigma}(B, t)$  следует отнести к возмущению энергетического спектра триплетных локализованных экситонов под влиянием локальных полей. На наличие статического возмущения  $V$ , смешивающего различные спиновые состояния экситонов, локализованных на дефектах, указывают наблюдение эффекта антипересечения спиновых подуровней триплетных связанных экситонов в магнитном поле [16–18], а также эксперименты по магнитному резонансу [19,20]. Смешивание состояний  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$  и  $|0\rangle$  может быть обусловлено сверхтонким взаимодействием экситонного спина со спином ядер кристаллической решетки в области дефекта [16,19–21].

К аналогичному эффекту может приводить и локальное электрическое поле [10].

В отсутствие внешних полей возмущение  $V$  формирует в кристалле вместо состояний  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$  и  $|0\rangle$  новые состояния  $a$ ,  $b$  и  $c$ , представляющие собой суперпозицию исходных состояний. Степень смешивания исходных состояний зависит от матричных элементов  $V_{mn} = \langle m|V|n\rangle$ , ( $m, n = X, Y, 0$ ). Волновые функции  $\Psi_{a,b,c}$  состояний  $a$ ,  $b$  и  $c$  могут быть записаны в виде

$$\Psi_k = C_{1k}|X\rangle + C_{2k}|Y\rangle + C_{3k}|0\rangle \quad (k = a, b, c). \quad (4)$$

При наличии внешнего магнитного поля коэффициенты  $C_{ik}$  ( $i = 1, 2, 3, k = a, b, c$ ) зависят от магнитного поля  $C_{ik} = C_{ik}(B)$ . Энергии состояний  $a$ ,  $b$  и  $c$  во внешнем магнитном поле, а также значения коэффициентов могут быть вычислены методом теории возмущений. Доля оптически активных состояний  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$  в волновых функциях (4) определяет излучательные времена жизни экситонов в состояниях  $a$ ,  $b$  и  $c$   $\tau_{ir}(B) = [C_{1i}^2(B) + C_{2i}^2(B)]^{-1} \tau_r$ , а также полные времена жизни экситонов в этих состояниях  $\tau_i(B) = [\tau_{ir}^{-1}(B) + \tau_0^{-1}]^{-1}$  ( $i = a, b, c$ ), где  $\tau_r$  — излучательное время жизни состояний  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$ ,  $\tau_0$  — безызлучательное время жизни экситонов. Интенсивности излучения экситонов из состояний  $a$ ,  $b$ ,  $c$  можно записать в виде

$$I_{\pi}^i(B, t) = C_{1i}^2(B) \tau_r^{-1} n_i(t, B), \quad (5a)$$

$$I_{\sigma}^i(B, t) = C_{2i}^2(B) \tau_r^{-1} n_i(t, B), \quad (5b)$$

где  $I_{\pi}^i(B, t)$  и  $I_{\sigma}^i(B, t)$  — интенсивности излучения экситона из состояния  $i$  ( $i = a, b, c$ ) в поляризациях света  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$  и  $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$  соответственно,  $n_i(t, B)$  — заселенность  $i$ -того состояния.

Как следует из экспериментальных данных по кинетике послесвечения локализованных экситонов в исследованных кристаллах GaSe–GaTe, зависимость заселенности состояний экситонов с определенной энергией локализации от времени  $n_i(t, 0)$  носит неэкспоненциальный характер, что согласуется с данными по кинетике излучения локализованных экситонов в других системах [22,23]. В частности, в максимуме экситонной полосы излучения в GaSe<sub>0.85</sub>Te<sub>0.15</sub> интенсивность после окончания возбуждения вначале увеличивается, достигая максимума при  $t \approx 0.2 \mu\text{s}$ , и затем плавно спадает. Зависимость заселенности состояния экситона с определенной энергией от времени определяется рядом факторов. К ним обычно относят аннигиляцию экситонов, их безызлучательный распад и туннельные прыжки локализованных экситонов между состояниями с различной энергией локализации [3–5,11]. При низких температурах доминируют переходы экситонов из состояний с меньшей энергией локализации в нижележащие состояния с большей энергией локализации. Кинетическое уравнение, описывающее изменение заселенностей различных энергетических состояний локализованных экситонов от времени (без учета тонкой структуры экситонных состояний) в рамках этой модели релаксации рассмотрено, например, в работах [3,22].

С целью интерпретации магнитооптического эффекта в излучении локализованных экситонов в настоящей работе используется упрощенная трехуровневая модель энергетической релаксации экситонов. В этой модели уровень I соответствует энергии экситонных состояний, излучение которых анализируется (в рассматриваемом случае — энергии экситонов, определяющих излучение в максимуме полосы на рис. 1). Аннигиляция экситонов на уровне I соответствует излучательному переходу экситона с уровня I на нижний уровень 0:  $I \rightarrow 0$ . Уровень II эффективно представляет все вышележащие состояния локализованных экситонов с энергией  $E_{II} > E_I$ . В рамках описанной трехуровневой модели предполагается, что в момент возбуждения кристалла происходит быстрый процесс захвата фоторожденных электронно-дырочных пар в состояния, отвечающие уровням I и II (этот процесс определяет заселенность этих состояний сразу после окончания возбуждающего импульса, то есть в момент  $t = 0$ ), а затем осуществляется более медленная энергетическая релаксация в системе локализованных экситонов, сопровождаемая переходами  $II \rightarrow I$ . Заселенность уровня I,  $n(t)$ , определяющая интенсивность люминесценции, в этом случае определяется выражением

$$n(t) = n_{II} \frac{\tau_I \tau_{II}}{\tau_I - \tau_{II}} \left[ \exp\left(-\frac{t}{\tau_I}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{II}}\right) \right] + n_I \exp\left(-\frac{t}{\tau_I}\right), \quad (6)$$

где  $\tau_I, \tau_{II}$  — времена жизни экситонов в состояниях I и II, определяемые излучательными и безызлучательными временами жизни экситонов в этих состояниях;  $n_I$  — начальная заселенность уровня I при  $t = 0$ ;  $n_{II}$  определяется начальной заселенностью уровня II и вероятностью перехода экситона с уровня II на уровень I.

С учетом тонкой структуры экситонов в гексагональных кристаллах GaSe–GaTe каждый из уровней I и II расщеплен на три спиновых подуровня. В пренебрежении спиновой релаксацией экситонов и полагая, что локальные поля, действующие на экситоны, и их  $g$ -факторы в состояниях I и II одинаковы, на основе (6) легко получить выражение, описывающее зависимость заселенности  $i$ -того зеемановского состояния уровня I от времени,  $n_i(t, B)$  ( $i = a, b, c$ ). При выводе выражения для  $n_i(t, B)$  также предполагалось, что спиновое состояние локализованных экситонов при переходе  $II \rightarrow I$  не сохраняется, то есть экситоны с равной вероятностью переходят из зеемановских состояний уровня II в любое из зеемановских состояний уровня I.

Зная зависимости  $n_i(t, B)$ , на основе соотношений (5) можно вычислить величины  $I_{\pi}^i(B, t)$  и  $I_{\sigma}^i(B, t)$ . Поскольку оптические переходы из состояний  $a, b, c$  спектрально не разрешаются, экспериментально наблюдается суммарное излучение

$$I_{\pi}(B, t) = \sum_i I_{\pi}^i(B, t),$$

$$I_{\sigma}(B, t) = \sum_i I_{\sigma}^i(B, t) \quad (i = a, b, c). \quad (7)$$

Расчетные зависимости  $I_{\sigma}(B, t)$ ,  $I_{\pi}(B, t)$  и  $P_{lin}(B, t)$  в различные моменты времени  $t$  изображены на рис. 3–5 сплошными линиями. При вычислении учитывалась конечная ширина импульса ворот регистрирующей системы. В ходе вычислений предполагалось, что излучательные времена жизни  $\tau_r$  и величина  $\Delta$ , характеризующая расщепление спиновых состояний триплетных экситонов в отсутствие локальных и внешних полей, одинаковы для экситонов на уровнях I и II. Теоретические кривые на рис. 3–5 получены при значениях параметров  $g_{\perp} \approx g_{\parallel} = 3.7$  [12],  $\tau_r = 1 \mu s$ ,  $\Delta = 0.05 \text{ meV}$ ,  $|V_{xy}| = 0.03 \text{ meV}$ ,  $|V_{x0}| = |V_{y0}| = 0.01 \text{ meV}$ ,  $|V_{xx}| = |V_{yy}| = |V_{00}| = 0$ . Безызлучательные времена жизни экситонов на уровнях I и II существенно отличаются:  $\tau_{0I} = 30 \mu s$  и  $\tau_{0II} = 0.04 \mu s$  соответственно. Отметим, что в рамках модели безызлучательные времена жизни локализованных экситонов определяются не только вероятностями их безызлучательного распада, но и вероятностями их переходов в нижележащие экситонные состояния. Поэтому значительно меньшее безызлучательное время жизни экситонов на уровне II, который представляет экситонные состояния, формирующие коротковолновое крыло полосы излучения на рис. 1, понятно. Действительно, плотность соответствующих локализованных состояний (особенно формирующих коротковолновый край полосы) выше, чем состояний формирующих максимум полосы, а интенсивность излучения меньше. Найденные параметры позволяют определить излучательные и полные времена жизни экситонов в состояниях  $a, b$  и  $c$ , определяющих излучение в максимуме полосы, при  $B = 0$ :  $\tau_{ar} \approx 1 \mu s$ ,  $\tau_a \approx 1 \mu s$ ,  $\tau_{br} = 35 \mu s$ ,  $\tau_b = 16 \mu s$ ,  $\tau_{cr} \approx 1 \mu s$ ,  $\tau_c \approx 1 \mu s$ . Большие излучательные времена жизни экситонов характерны для триплетных состояний (напомним, что аннигиляция триплетных экситонов разрешена только в меру слабого спин-орбитального взаимодействия). Расчет теоретических зависимостей  $I_{\pi, \sigma}(B, t)$  выполнен в предположении, что возмущение  $V$  обусловлено локальным магнитным полем (ассоциируемым с эффективным сверхтонким магнитным полем  $\mathbf{B}_N$ ), при этом полученные результаты усреднены в соответствии с условием, что среднее по ансамблю локализованных экситонов значение  $V_{mn}$  равно нулю (т.е. среднее значение  $\mathbf{B}_N$  для системы локализованных экситонов  $\langle \mathbf{B}_N \rangle = 0$ ). Аналогичный вид теоретических зависимостей  $I_{\pi, \sigma}(B, t)$  может быть получен и при вещественных значениях матричных элементов  $V_{mn}$  (локальное электрическое поле).

Сравнение теоретических и экспериментальных зависимостей (рис. 3–5) показывает, что результаты, полученные на основе использованной модели, находятся в хорошем качественном и удовлетворительном количественном согласии с экспериментальными данными. Это позволяет сделать вывод о том, что краевое излучение исследованных кристаллов действительно обусловлено аннигиляцией триплетных локализованных экситонов. Сравнение теории и эксперимента позволяет также получить оценку величин излучательных и безыз-

лучательных времен жизни локализованных экситонов, параметров их энергетической структуры, степени влияния на нее локальных полей. Определенное количественное расхождение теоретических и экспериментальных зависимостей на рис. 3,4 при некоторых значениях  $t$ , по-видимому, связано с упрощенным описанием энергетической релаксации локализованных экситонов в трехуровневой модели. При этом модель дает хорошее качественное и удовлетворительное количественное описание экспериментально измеренной кинетики затухания интенсивности в максимуме экситонной полосы излучения при  $B = 0$ . На основе сравнительного анализа экспериментальной и теоретически вычисленной кинетики затухания экситонной люминесценции была выбрана, в частности, величина параметра  $\tau_{0II}$  (см. выше).

В рамках модели простое объяснение получает и наблюдаемый при  $B \geq 0.4$  Т эффект быстрого увеличения степени линейной поляризации экситонного излучения по мере увеличения времени пребывания экситонов в магнитном поле (рис. 5). Как отмечалось выше, детектируемое излучение есть суммарное излучение трех зеемановских (спиновых) состояний триплетного экситона  $a$ ,  $b$  и  $c$ . В нулевом магнитном поле все три состояния в равной степени активны в  $\pi$ - и  $\sigma$ -поляризациях (при этом в нулевом поле оптически наиболее активны состояния  $a$  и  $c$ ), поэтому поляризация экситонного излучения не меняется в течение времени жизни экситонов. В магнитном поле  $B \geq 0.4$  Т при больших временах задержки  $t$  вклад в излучение дает практически только наиболее долгоживущее состояние  $b$ , оптическая активность которого в  $\pi$ -поляризации почти на порядок выше, чем в  $\sigma$ -поляризации. В результате при больших временах задержки и больших полях экситонное излучение оказывается линейно поляризованным с высокой степенью поляризации с  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ .

Интересно сравнить особенности временной эволюции зависимостей интенсивностей  $\pi$ - и  $\sigma$ -компонент от магнитного поля в максимуме полосы излучения локализованных экситонов в исследованных смешанных кристаллах и в излучении связанных экситонов в GaSe [10]. Можно отметить, что качественно зависимости  $I_{\pi,\sigma}(B, t)$  в обоих случаях весьма похожи, но в случае связанных экситонов временная эволюция зависимостей  $I_{\pi,\sigma}(B, t)$  выражена резче. В рамках предложенной модели это объясняется меньшим отношением излучательного и безызлучательного времен жизни в случае локализованных экситонов и большими локальными полями, действующими на экситон в смешанном кристалле.

## 5. Заключение

На основе трехуровневой модели энергетической релаксации локализованных экситонов удается воспроизвести основные черты временной эволюции поляризованной люминесценции экситонов в кристаллах GaSe—GaTe во внешнем магнитном поле. Сравнение

эксперимента и теории позволяет оценить параметры тонкой энергетической структуры экситонных состояний и времена жизни экситонов в различных состояниях. Таким образом, исследование временного поведения поляризованной люминесценции локализованных экситонов в магнитных полях может рассматриваться как один из эффективных инструментов получения информации о свойствах экситонных состояний в полупроводниковых твердых растворах.

## Список литературы

- [1] Ж.И. Алфёров, Е.Л. Портной, А.А. Рогачев. ФТП **2**, 1194 (1968).
- [2] S. Lai, M.V. Klein. Phys. Rev. Lett. **44**, 1087 (1980).
- [3] M. Oueslati, C. Benoit a la Guillaume, M. Zouaghi. Phys. Rev. B. **37**, 3037 (1988).
- [4] D. Ouadjaout, Y. Marfaing. Phys. Rev. B **41**, 12 096 (1990).
- [5] S. Permogorov, A. Reznitsky. J. Luminescence **52**, 201 (1992).
- [6] R. Westphaling, T. Breitkopf, S. Bauer, C. Klingshirn. J. Luminescence **72–74**, 980 (1997).
- [7] П.П. Феофилов. Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов. ГИФМЛ, М. (1959). 288 с. [P.P. Feofilov. The Physical Basic of Polarized Emission. Consultants Bureau, N.Y., (1961). 274 p.]
- [8] Excitons / Ed E.I. Rashba, M.D. Sturge. North-Holland, Amsterdam (1982) 878 p.
- [9] E.L. Ivchenko, G.E. Pikus. Superlattices and Other Heterostructures: Symmetry and Optical Phenomena. Springer-Verlag, Berlin (1995).
- [10] A.N. Starukhin, D.K. Nelson, B.S. Razbirin, E.L. Ivchenko. Phys. Rev. B **72**, 045 206 (2005).
- [11] А.Г. Абдукадыров, С.Д. Барановский, С.Ю. Вербин, Е.Л. Ивченко, А.Ю. Наумов, А.Н. Резницкий. ЖЭТФ **98**, 2056 (1990).
- [12] А.Н. Старухин, Б.С. Разбирин, А.В. Чугреев, М. Хапп, Ф. Хеннебергер. ФТТ **41**, 1389 (1999).
- [13] E. Mooser, M. Schlüter. Nuovo Cimento B **18**, 164 (1973).
- [14] Е.Л. Ивченко, Г.Е. Пикус, Б.С. Разбирин, А.Н. Старухин. ЖЭТФ **72**, 2230 (1977).
- [15] Е.М. Гамарц, Е.Л. Ивченко, Г.Е. Пикус, Б.С. Разбирин, А.Н. Старухин. ФТТ **22**, 3620 (1980).
- [16] W.M. Chen, M. Godlewski, B. Monemar, J.P. Bergman. Phys. Rev. B **41**, 5746 (1990).
- [17] M. Wagner, I.A. Buyanova, N.Q. Thinh, W.M. Chen, B. Monemar, J.L. Lindstrom, H. Amano, I. Akasaki. Phys. Rev. B **62**, 16 572, (2000).
- [18] A.N. Starukhin, D.K. Nelson, B.S. Razbirin. Phys. Rev. B **65**, 193 204 (2002).
- [19] A.M. Frens, M.T. Bennebroek, J. Schmidt, W.M. Chen, B. Monemar. Phys. Rev. B **46**, 12 316 (1992).
- [20] E. Sorman, W.M. Chen, A. Henry, S. Andersson, E. Janzen, B. Monemar. Phys. Rev. B **51**, 2132 (1995).
- [21] W.M. Chen, B. Monemar. Phys. Rev. B **38**, 12 660 (1988).
- [22] S. Shevel, R. Fischer, E.O. Gobel, G. Noll, P. Thomas. J. Luminescence **37**, 45 (1987).
- [23] G. Gourdon, P. Lavallard. Phys. Status. Solidi B **153**, 641 (1989).