

03,09

## Эволюция сигнала антипересечения уровней в магнитолюминесценции локализованных экситонов в твердом растворе 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 24 декабря 2014 г.)

Методом спектроскопии с временным разрешением исследована временная зависимость сигнала антипересечения зеемановских подуровней в излучении триплетных локализованных экситонов в полупроводниковом твердом растворе GaSe<sub>0.87</sub>Te<sub>0.13</sub> в условиях неполяризованной накачки. Показано, что форма сигнала антипересечения существенно меняется в течение времени жизни локализованных экситонов  $t$ . В момент  $t = 0$  сигнал антипересечения не детектируется, при увеличении  $t$  в зависимости интенсивности экситонного излучения от магнитного поля формируется максимум (на этом этапе форма сигнала антипересечения аналогична форме, наблюдаемой в условиях стационарного возбуждения), который при дальнейшем увеличении  $t$  расщепляется в дублет. Предложена теоретическая интерпретация наблюдаемой временной зависимости сигнала антипересечения зеемановских подуровней в излучении локализованных экситонов. Из сравнения теории с экспериментом определены параметры тонкой энергетической структуры и времена жизни триплетных локализованных экситонов в различных спиновых состояниях.

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

### 1. Введение

Эффект антипересечения уровней [1] широко применяется в оптической спектроскопии для изучения тонкой структуры энергетических уровней в различных системах, от атомов [2] до кристаллов [3–6]. Эффект возникает тогда, когда одно возмущение, меняющееся плавно (например, магнитное поле), стремится привести к вырождению (т.е. к пересечению) уровней, а другое, постоянное, снимает его. Появление сигнала антипересечения объясняется изменением свойств первоначальных состояний в результате их смешивания, которое максимально в области наибольшего сближения энергетических уровней. Достоинство метода состоит в возможности получения информации о параметрах близких по энергии взаимодействующих состояний в условиях, когда отвечающая им структура в спектре излучения не может быть спектрально разрешена из-за относительно большой ширины линий излучения, обусловленной, например, неоднородным уширением. Такая ситуация, в частности, характерна для излучения локализованных экситонов в твердых полупроводниковых растворах.

В случае взаимодействия излучающих состояний эффект антипересечения уровней проявляется в немонотонной зависимости интенсивности излучения системы от магнитного поля,  $I(B)$ , в области антипересечения. Эту особенность в  $I(B)$  принято называть сигналом антипересечения уровней [1]. В условиях непрерывного возбуждения люминесценции, обычно применяемого при изучении эффекта антипересечения уровней, сигнал антипересечения имеет вид максимума или минимума

лоренцевой формы в зависимости суммарной интенсивности излучения взаимодействующих состояний от магнитного поля [1,2].

При непрерывном возбуждении люминесценции  $I(B)$  определяется вкладами в излучение элементарных излучателей, возбужденных в различные моменты времени  $t$ , предшествующие моменту регистрации излучения

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

Вид зависимостей  $I(B, t)$  (а, следовательно, и  $I(B)$ ) определяется оптической активностью взаимодействующих состояний и эволюцией их заселенностей со временем. Однако формально одна и та же зависимость  $I(B)$  может соответствовать различным наборам зависимостей  $I(B, t)$ . В связи с этим точная информация о зависимостях  $I(B, t)$  позволяет заметно повысить достоверность выводов о свойствах соответствующих излучателей (сравнительно с анализом данных, полученных в условиях непрерывного возбуждения). Временная зависимость сигнала антипересечения спиновых подуровней наблюдалась ранее в излучении экситонов, связанных на ионизированных центрах, в чистых кристаллах селенида галлия [6,7]. Целью настоящей работы явилось исследование методом спектроскопии с временным разрешением эффекта антипересечения зеемановских (спиновых) подуровней в излучении локализованных экситонов в твердых растворах GaSe–GaTe. Наряду с установлением деталей тонкой энергетической структуры локализованных экситонов в смешанных кристаллах, задачей исследования было выяснить влияние

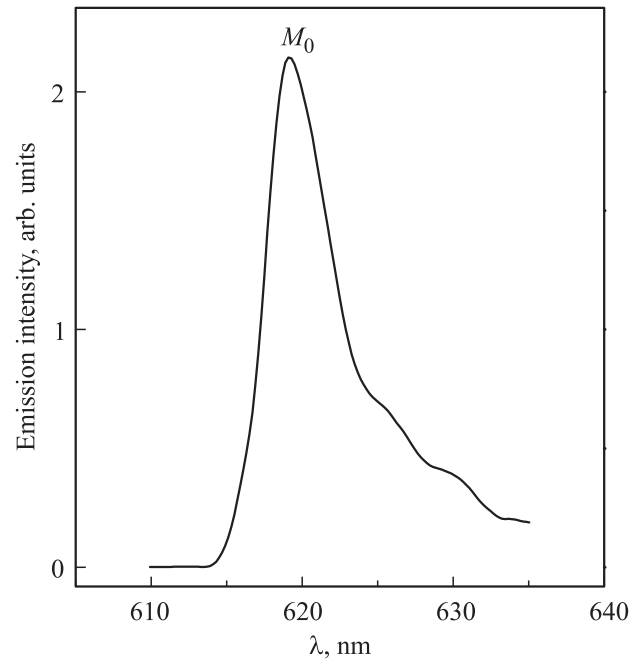
особенностей энергетической структуры и релаксации локализованных экситонов на проявление изучаемого магнитооптического эффекта.

## 2. Методика эксперимента

Кристаллы селенида и теллурида галлия относятся к группе слоистых кристаллов  $A^{III}B^{VI}$ . Твердые растворы  $GaSe_{1-x}Te_x$  ( $x = 0.13$ ) 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 ( $h\nu_{exc} = 2.428$  eV) с длительностью импульсов  $\tau_p = 20$  ns и частотой повторения 10 kHz. Плотность возбуждения в импульсе составляла около  $100$  W/cm<sup>2</sup>. Возбуждающий свет с энергией фотонов  $h\nu_{exc} > E_g$  ( $E_g$  — 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  $\sim 30$  ns. Средняя величина темнового 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 K.

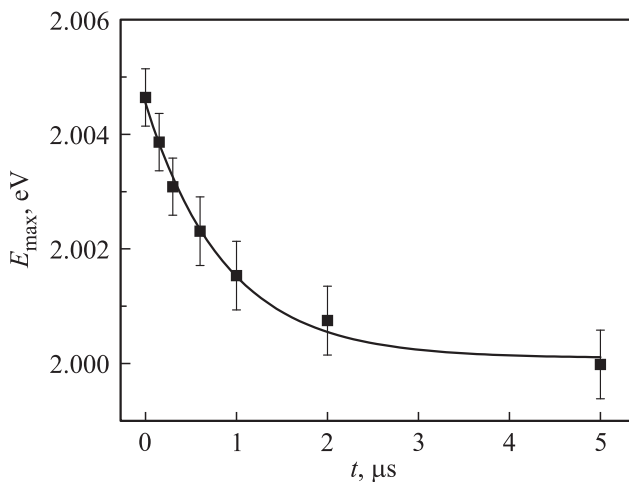
## 3. Экспериментальные результаты

Спектр люминесценции локализованных экситонов в твердом растворе  $GaSe_{0.87}Te_{0.13}$  при непрерывном возбуждении светом с  $h\nu_{exc} > E_g$  приведен на рис. 1. В спектре доминирует асимметричная бесфоновая полоса излучения  $M_0$  с максимумом при  $\lambda_{max} \approx 619$  nm ( $h\nu_{max} \equiv E_{max} = 2.002$  eV) шириной  $\sim 0.02$  eV. Форма полосы отражает распределение локализованных экситонов по состояниям с различной энергией локализации [8,9], при этом положение коротковолнового края соответствует энергии образования локализованных экситонов на границе подвижности [9] 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.



**Рис. 1.** Спектр люминесценции твердого раствора  $GaSe_{0.87}Te_{0.13}$  при непрерывном возбуждении светом с  $h\nu_{exc} > E_g$ .  $T = 2$  K.

Энергетическая релаксация в системе локализованных экситонов отражается в эволюции спектров излучения, полученных с различной временной задержкой  $t$  относительно возбуждающего импульса. Анализ спектров послесвечения показывает, что скорость затухания люминесценции различна для разных спектральных участков полосы  $M_0$ . Она максимальна на коротковолновом краю полосы; далее, по мере увеличения длины волны и приближения  $\lambda \rightarrow \lambda_{max}$ , скорость затухания люминесценции уменьшается. При  $\lambda > \lambda_{max}$  скорость затухания люминесценции почти не зависит от длины волны. Следствием зависимости скорости затухания интенсивности излучения от длины волны является сдвиг спектрального положения максимума полосы  $E_{max}$  в сторону более длинных волн с увеличением времени задержки  $t$  (рис. 2). Экспериментальная зависимость на рис. 2 может быть аппроксимирована функцией  $E_{max}(t) = 2.0001 + 0.0044 \exp(-t/\tau)$  с  $\tau = 0.88$   $\mu$ s. Описанная зависимость скорости затухания люминесценции от длины волны согласуется с моделью энергетической релаксации локализованных экситонов [8–10]. В соответствии с этой моделью вероятность переходов локализованных экситонов в нижележащие состояния максимальна для экситонов, формирующих коротковолновое крыло экситонной полосы излучения, и уменьшается по мере уменьшения их энергии. Аналогичный эффект длинноволнового сдвига максимума полосы излучения локализованных экситонов наблюдался в спектрах послесвечения смешанных кристаллов CdS–CdSe [11].



**Рис. 2.** Зависимость положения максимума полосы  $M_0$  от времени задержки  $t$ ,  $E_{\max}(t)$ . Точки — экспериментальные значения, сплошная линия — аппроксимация  $E_{\max}(t) = 2.0001 + 0.0044 \exp(-t/\tau)$  с  $\tau = 0.88 \mu\text{s}$ .  $T = 2 \text{ K}$ .

Продольное магнитное поле ( $\mathbf{B} \parallel c \parallel \mathbf{k}_{\text{photon}}$  — геометрия Фарадея) приводит к изменению интенсивности полосы излучения локализованных экситонов. В условиях стационарного возбуждения кристалла светом с  $h\nu_{\text{exc}} > E_g$  зависимость интенсивности полосы от магнитного поля при фиксированном значении длины волны излучения  $I(B)$  имеет лоренцевскую форму, типичную для сигнала антипересечения уровней.

Наиболее ярко эффект антипересечения зеемановских уровней проявляется в циркулярно поляризованном свете ( $\sigma^\pm$ ). С увеличением магнитного поля интенсивность компоненты излучения, поляризованной по левому кругу,  $I_{\sigma^-}(B)$ , увеличивается, достигает максимума и затем уменьшается. Изменения в поле интенсивности компоненты излучения, поляризованной по правому кругу,  $I_{\sigma^+}(B)$ , выражены существенно слабее и имеют обратный знак. В результате различного поведения в поле лево- и правополяризованной компонент, в продольном магнитном поле возникает циркулярная поляризация экситонного излучения. Степень циркулярной поляризации экситонного излучения можно определить как

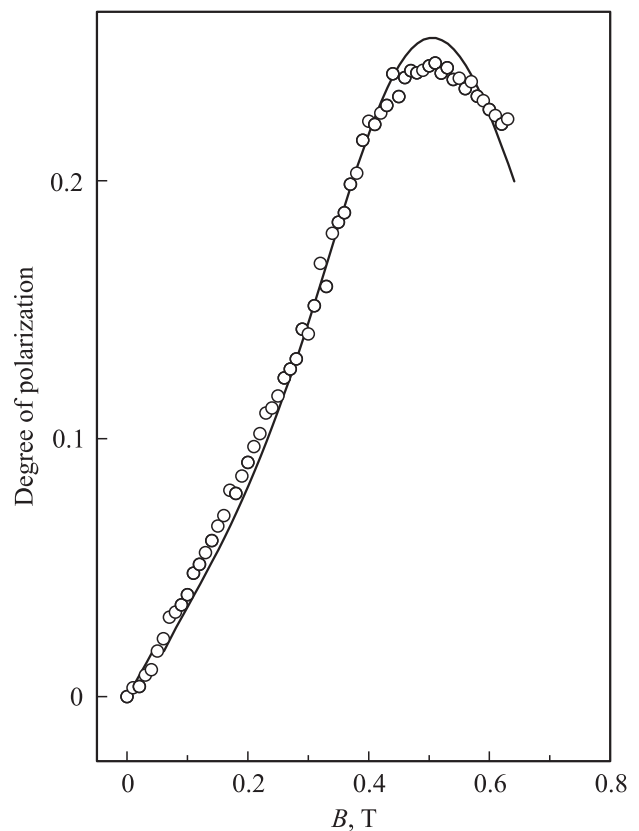
$$P_{\text{circ}}(B) = \frac{I_{\sigma^-}(B) - I_{\sigma^+}(B)}{I_{\sigma^-}(B) + I_{\sigma^+}(B)}. \quad (2)$$

При  $B = 0$  излучение неполяризовано  $P_{\text{circ}}(0) = 0$ . Зависимость  $P_{\text{circ}}(B)$  в максимуме полосы излучения ( $\lambda = \lambda_{\text{max}}$ ) в условиях стационарного возбуждения приведена на рис. 3. При инверсии магнитного поля  $P_{\text{circ}}(B)$  меняет знак.

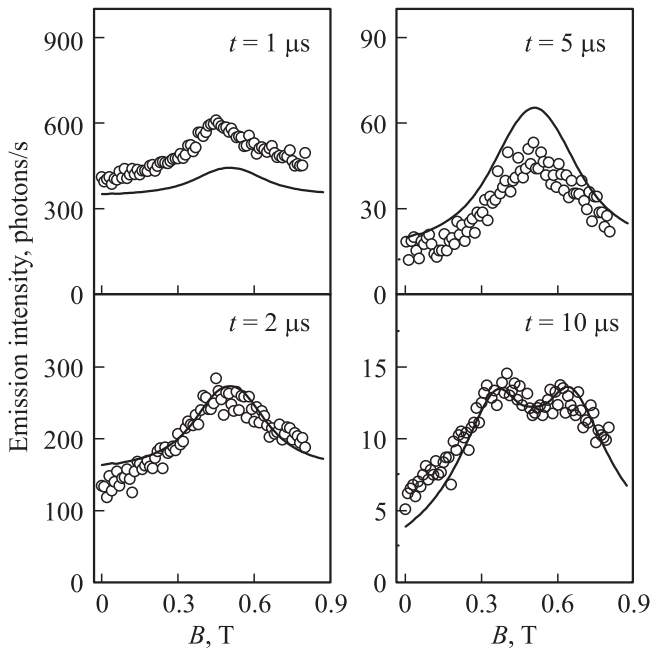
Рассмотрим временную эволюцию сигнала антипересечения. Поскольку эффект антипересечения зеемановских уровней локализованных экситонов наиболее ярко проявляется в области максимума полосы  $M_0$ , в дальнейшем будет рассмотрено поведение в магнитном поле  $\sigma^-$ -компоненты послесвечения твердого раствора при

$\lambda = \lambda_{\text{max}}$ . На рис. 4 представлены зависимости интенсивности этой компоненты излучения  $I_{\sigma^-}(B, t)$  от магнитного поля при  $\lambda = \lambda_{\text{max}}$  в различные моменты времени  $t$  после окончания возбуждающего импульса. Интервал времени, в течение которого проводилась регистрация (ширина импульса ворот), составлял  $\Delta t = 100 \text{ ns}$ .

При  $t \cong 0$  сигнал антипересечения отсутствует:  $I_{\sigma^-}(B, 0) = \text{const}$ . С увеличением времени задержки в интервале  $0 < t \leq 7 \mu\text{s}$  в зависимости интенсивности излучения от магнитного поля (при фиксированном  $t$ ) формируется слабый пик при  $B = B_c \approx 0.5 \text{ T}$  (рис. 4,  $t = 1 \mu\text{s}$ ), относительная интенсивность которого увеличивается с увеличением  $t$  (рис. 4,  $t = 2 \mu\text{s}$ ,  $t = 5 \mu\text{s}$ ) (при этом интенсивность экситонного излучения при  $B = 0$  в спектрах послесвечения, естественно, уменьшается). В этом отношении вид зависимости  $I_{\sigma^-}(B, t)$  в рассматриваемом диапазоне времен подобен зависимости интенсивности экситонного излучения от магнитного поля  $I_{\sigma^-}(B)$  в случае непрерывного возбуждения люминесценции. При дальнейшем увеличении времени задержки относительная интенсивность пика продолжает возрастать и в области максимума пика появляется неглубокий провал (рис. 4,  $t = 10 \mu\text{s}$ ). Дальнейшее увеличение  $t$  приводит к увеличению ширины и глубины провала.



**Рис. 3.** Зависимость степени циркулярной поляризации излучения триплетных локализованных экситонов,  $P_{\text{circ}}(B)$ , при  $\lambda = \lambda_{\text{max}} = 619 \text{ nm}$  от магнитного поля в условиях непрерывного возбуждения. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчетная зависимость.  $T = 2 \text{ K}$ .



**Рис. 4.** Зависимость интенсивности  $\sigma^-$ -компоненты излучения триплетных локализованных экситонов,  $I_{\sigma^-}(B, t)$ , при  $\lambda = \lambda_{\max} = 619 \text{ nm}$  от магнитного поля в различные моменты жизни  $t$  экситонов. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчетная зависимость.  $T = 2 \text{ K}$ .

Таким образом, в различные моменты времени жизни локализованных экситонов форма сигнала антипересечения уровней существенно меняется от практически полного отсутствия сигнала (при  $t = 0$ ) до сложной структуры с двумя максимумами (при больших  $t$ ).

#### 4. Обсуждение результатов

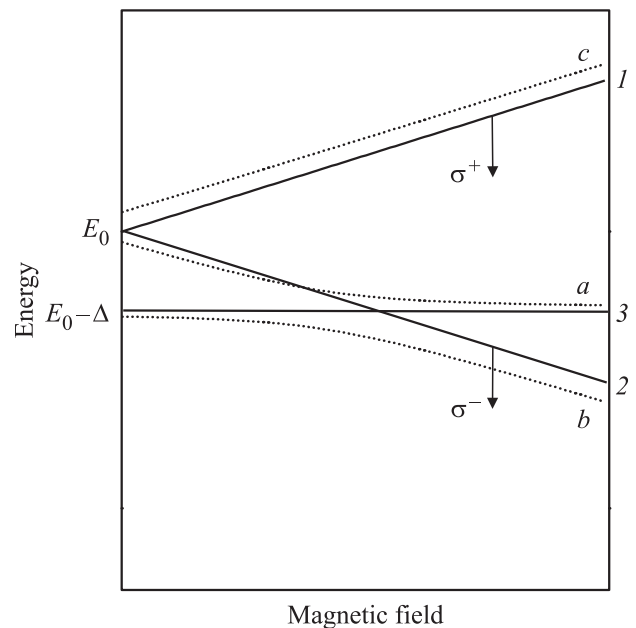
Наблюдаемое поведение  $\sigma^-$ - и  $\sigma^+$ -компонент экситонного излучения в магнитном поле отражает свойства состояний тонкой структуры экситонного спектра. Эксперименты по селективному лазерному возбуждению локализованных экситонов в смешанных кристаллах  $\text{GaSe}_{1-x}\text{Te}_x$  ( $x < 0.3$ ) показывают, что в больших магнитных полях эффект Зеемана на локализованных экситонах аналогичен эффекту Зеемана на триплетных экситонах, связанных на ионизованных центрах в гексагональном  $\text{GaSe}$  [12]. В кристаллах  $\text{GaSe}$  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. 5) [14]. Продольное магнитное поле  $\mathbf{B} \parallel c$  приводит к расщеплению уровня с  $S_z = \pm 1$  на два подуровня с  $S_z = +1$  и  $S_z = -1$ , излучение с которых поляризовано по правому и левому кругу соответственно [13,14] (рис. 5). Энергии состояний триплетного экситона в продольном поле описываются выражением [15]

$$E_{1,2} = E_0 \pm 0.5g_{zz}\mu_0B, \quad E_3 = E_0 - \Delta, \quad (3)$$

где  $g_{zz}$  — продольная компонента  $g$ -фактора экситона,  $\mu_0$  — магнетон Бора. Интенсивность излучательных переходов из состояний 1–3 определяется вероятностью этих переходов  $\tau_r^{-1}$  (она отлична от нуля в состояниях 1 и 2) и заселенностью соответствующих состояний, которая зависит от полного времени жизни экситонов. В поле  $B = 2\Delta/g_{zz}\mu_0 \equiv B_c$  энергии состояний 2 и 3 согласно (3) сравниваются, то есть соответствующие энергетические уровни пересекаются. Однако при наличии в кристалле возмущения  $V$  (например, локального поля), смешивающего состояния экситона  $|0\rangle$  и  $|\pm 1\rangle$  вместо пересечения уровней 2 и 3 будет наблюдаться их антипересечение (рис. 5). При  $B \approx B_c$  смешиваться будут, главным образом, состояния 2 и 3 (т.е. состояния  $|-1\rangle$  и  $|0\rangle$ ), поскольку в этих условиях разность энергий этих состояний существенно меньше, чем разность энергий состояний 1 и 3. Однако в  $\text{GaSe}_{0.87}\text{Te}_{0.13}$  сигнал антипересечения уровней в излучении локализованных экситонов наблюдается не только в  $\sigma^-$ -поляризации, но и в  $\sigma^+$ -поляризации в виде минимума в зависимости  $I_{\sigma^+}(B)$ .



**Рис. 5.** Схема энергетических уровней триплетного экситона в магнитном поле  $\mathbf{B} \parallel c \parallel \mathbf{k}_{\text{photon}}$  при  $V = 0$  (сплошные линии) и  $V \neq 0$  — (пунктир) (см. текст).

Это показывает, что локальное поле  $V$  заметно смешивает не только состояния 2 и 3, но и состояния 1 и 3. Поэтому ниже при теоретическом описании эффекта антипересечения спиновых подуровней локализованных экситонов будет учтено влияние локальных полей на все три спиновых состояния.

В отсутствие внешних полей возмущение  $V$  формирует в кристалле вместо состояний  $|-1\rangle$ ,  $|+1\rangle$  и  $|0\rangle$  новые состояния  $a$ ,  $b$  и  $c$ , представляющие собой суперпозицию исходных состояний (рис. 5). Степень смешивания исходных состояний зависит от матричных элементов  $V_{mn} = \langle m|V|n\rangle$ , ( $m, n = -1, +1, 0$ ). Волновые функции  $\Psi_{a,b,c}$  состояний  $a$ ,  $b$  и  $c$  могут быть записаны в виде

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

При наличии внешнего магнитного поля коэффициенты  $C_{ik}$  ( $i = 1, 2, 3, k = a, b, c$ ) зависят от магнитного поля. Энергии состояний  $a$ ,  $b$  и  $c$  во внешнем магнитном поле, а также значения коэффициентов  $C_{ik}(B)$  могут быть вычислены методом теории возмущений. Доля оптически активных состояний  $|-1\rangle$ ,  $|+1\rangle$  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  $|\pm 1\rangle$ ,  $\tau_0$  — безызлучательное время жизни экситонов. Интенсивности излучения экситонов из состояний  $a$ ,  $b$ , и  $c$  можно записать в виде

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

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

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

Зависимость заселенности состояния экситона с определенной энергией от времени определяется кроме интенсивности накачки рядом факторов. К ним обычно относят аннигиляцию экситонов, их безызлучательный распад и туннельные прыжки локализованных экситонов между состояниями с различной энергией локализации [8–10,16]. При низких температурах доминируют туннельные прыжки 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 [10,11]. 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  $\tau_I$ ,  $\tau_{II}$  — полные 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  $I_{\sigma^-}^i$  и  $I_{\sigma^+}^i$ . Поскольку оптические переходы из состояний  $a$ ,  $b$ , и  $c$  спектрально не разрешаются, экспериментально наблюдается суммарное излучение

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

Расчетные зависимости  $I_{\sigma^-}(B, t)$  в различные моменты времени жизни локализованных экситонов  $t$  изоб-

ражены на рис. 4 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. 4 получены при значениях параметров  $g_{zz} = 3.7$  [12],  $\tau_r = 1.6 \mu s$ ,  $\Delta = 0.05 \text{ meV}$ ,  $|V_{-1-1}| = |V_{+1+1}| = 0.006 \text{ meV}$ ,  $|V_{0-1}| = |V_{0+1}| = 0.008 \text{ meV}$ ,  $|V_{-1+1}| = |V_{00}| = 0$ . Безызлучательные времена жизни экситонов на уровнях I и II существенно отличаются:  $\tau_{0I} = 10 \mu s$  и  $\tau_{0II} = 0.006 \mu s$  соответственно. 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. Найденные параметры позволяют оценить излучательные и полные времена жизни экситонов в состояниях  $a$ ,  $b$ , и  $c$ , определяющих излучение в максимуме полосы, при  $B = 0$ :  $\tau_{ar} \cong 1.6 \mu s$ ,  $\tau_a \cong 1.4 \mu s$ ,  $\tau_{br} \cong 46.4 \mu s$ ,  $\tau_b \cong 8 \mu s$ ,  $\tau_{cr} \cong 1.6 \mu s$ ,  $\tau_c \cong 1.4 \mu s$ . 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  $I_{\sigma\mp}(B, t)$  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 (то есть среднее значение  $\mathbf{B}_N$  для системы локализованных экситонов  $\langle \mathbf{B}_N \rangle = 0$ ).

Зависимости (7), описывающие временную зависимость сигнала антипересечения зеемановских подуровней триплетных локализованных экситонов в магнитном поле, позволяя, используя соотношение (1), воспроизвести сигнал антипересечения, наблюдаемый в условиях непрерывного возбуждения кристалла. Результат вычисления зависимости степени циркулярной поляризации экситонного излучения от магнитного поля,  $P_{\text{circ}}(B)$ , для этого случая представлен на рис. 3 сплошной линией. Максимальная степень циркулярной поляризации экситонного излучения в области антипересечения, достигаемая при  $B \approx B_c$ , плавно увеличивается с увеличением времени пребывания экситонов в магнитном поле. Она равна нулю при  $t = 0$  и близка к единице при  $t = 10 \mu s$ . Увеличение степени циркулярной поляризации экситонного излучения легко объяснить. Основной вклад в  $\sigma^-$ -компоненту излучения дают состояния  $a$  и  $b$  (рис. 5), которые при  $B \approx B_c$  практически в равной степени сформированы состояниями  $| - 1 \rangle$  и  $| 0 \rangle$ . Благодаря зна-

чительной доле оптически неактивного состояния  $| 0 \rangle$  состояния  $a$  и  $b$  характеризуются относительно большими временами жизни. В то же время состояние  $c$ , ответственное в основном за интенсивность  $\sigma^+$ -компоненты экситонного излучения, является почти чистым оптически активным состоянием  $| + 1 \rangle$ , время жизни которого меньше времен жизни состояний  $a$  и  $b$ . Поэтому при равной скорости генерации экситонов в состояниях  $a$ ,  $b$ ,  $c$  в условиях межзонного импульсного возбуждения состояние  $c$  из-за более высокой оптической активности опустошается раньше, так что при больших временах задержки  $t$  вклад в излучение дают только состояния, активные в свете  $\sigma^-$ -поляризации.

Сравнение теоретических и экспериментальных зависимостей (рис. 3, 4) 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 смешанного кристалла действительно обусловлено аннигиляцией триплетных локализованных экситонов. Сравнение теории и эксперимента позволяет также получить оценку величин излучательных и безызлучательных 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, по-видимому, связано с упрощенным описанием энергетической релаксации локализованных экситонов в трехуровневой модели.

Интересно сравнить особенности временной эволюции сигнала антипересечения зеемановских подуровней в максимуме полосы излучения локализованных экситонов в смешанных кристаллах и в излучении связанных экситонов в чистом GaSe [6]. Можно отметить, что качественно зависимости  $I_{\sigma^-}(B, t)$  в обоих случаях весьма похожи, но в случае связанных экситонов временная эволюция зависимостей  $I_{\sigma^-}(B, t)$  прослеживается дальше (в частности, при больших временах задержки отчетливо наблюдается расщепление сигнала антипересечения на два неперекрывающихся пика). В рамках использованной модели это отличие может быть объяснено двумя факторами. Во-первых, данные на рис. 4 представляют сигнал антипересечения на фиксированной длине волны ( $\lambda = \lambda_{\text{max}}$ ), которая отвечает излучению экситонов с определенной энергией локализации. В твердом растворе GaSe–GaTe состояние экситона с заданной энергией локализации, по-видимому, может быть осуществлено при различных конфигурациях атомов в области локализации. Этим различным конфигурациям атомов соответствуют различные локальные поля, что должно приводить к дополнительному уширению и размытию структуры сигнала антипересечения в случае локализованных экситонов. Другим фактором, определяющим отличие сигналов антипересечения уровней в излучении локализованных и связанных экситонов, является большее отношение излучательного и безызлучательного времен жизни в случае локализованных экситонов.

## 5. Заключение

Модель триплетных локализованных экситонов в сочетании с трехуровневой моделью энергетической релаксации локализованных экситонов позволяет воспроизвести основные черты временной эволюции сигнала антипересечения зеемановских подуровней экситонов в кристалле  $\text{GaSe}_{0.87}\text{Te}_{0.13}$  во внешнем магнитном поле. Сравнение эксперимента и теории позволяет оценить параметры тонкой энергетической структуры экситонных состояний и времена жизни экситонов в различных спиновых состояниях. Таким образом, исследование временной зависимости сигнала антипересечения уровней 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] T.G. Eck, L.L. Foldy, H. Wieder. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 239 (1963).
- [2] Е.Б. Александров, Г.И. Хвостенко, М.П. Чайка. Интерференция атомных состояний. Наука, М. (1991). 256 с. [E.B. Alexandrov, M.P. Chaika, G.I. Khvostenko. *Interference of Atomic States*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (1993). 250 p.]
- [3] N.G. Romanov, P.G. Baranov. *Nanotechnology* **12**, 585 (2001).
- [4] W.M. Chen, M. Godlewski, B. Monemar, J.P. Bergman. *Phys. Rev. B* **41**, 5746 (1990).
- [5] 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).
- [6] A.N. Starukhin, D.K. Nelson, B.S. Razbirin. *Phys. Rev. B* **65**, 193 204 (2002).
- [7] А.Н. Старухин, Д.К. Нельсон, Б.С. Разбирин. Письма в ЖЭТФ **87**, 291 (2008).
- [8] S. Permogorov, A. Reznitsky. *J. Luminescence* **52**, 201 (1992).
- [9] А.Г. Абдукадыров, С.Д. Барановский, С.Ю. Вербин, Е.Л. Ивченко, А.Ю. Наумов, А.Н. Резницкий. ЖЭТФ **98**, 2056 (1990).
- [10] M. Oueslati, C. Benoit a la Guillaume, M. Zouaghi. *Phys. Rev. B* **37**, 3037 (1988).
- [11] M. Urban, H. Schwab, C. Klingshirn. *Phys. Status Solidi B* **166**, 423 (1991).
- [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, В.И. Сафаров, А.Н. Старухин. ФТТ **24**, 2325 (1982).
- [16] D. Ouadjaout, Y. Marfaing. *Phys. Rev. B* **41**, 12 096 (1990).