

Наблюдение временной зависимости магнитоиндуцированной поляризации излучения триплетных экситонов в GaSe

А. Н. Старухин, Б. С. Разбирин, А. С. Якуненков

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 11 октября 2004 г.

Методом спектроскопии с временным разрешением исследована индуцированная внешним магнитным полем линейная поляризация излучения триплетных связанных экситонов в одноосных кристаллах GaSe в условиях неполяризованной накачки. Установлено, что зависимость степени линейной поляризации излучения от магнитного поля меняется в течение времени жизни возбужденного состояния. Обнаружен эффект существенного увеличения степени поляризации по мере увеличения времени задержки регистрации излучения: показано, что при временах задержки $t \geq 1$ нс излучение экситонов в магнитном поле оказывается практически полностью поляризованным. Предложено теоретическое описание наблюдаемой временной зависимости магнитоиндуцированной поляризации излучения.

PACS: 71.35.Ji, 78.20.Ls, 78.47.+p, 78.55.Hx

Метод поляризованной люминесценции широко применяется для изучения свойств электронных состояний в различных атомных системах, в том числе в экситонной спектроскопии [1, 2]. В случае одноосных кристаллов при распространении света вдоль главной (оптической) оси кристалла все состояния поляризации света равноправны, и условием возникновения поляризованной люминесценции является наличие внешнего анизотропного воздействия на кристалл (поляризованное возбуждение, внешнее магнитное поле и т.д.). В частности, внешнее магнитное поле, ортогональное оптической оси кристалла, понижает симметрию системы и может приводить к поляризованной люминесценции кристалла даже в условиях неполяризованной накачки. В случае экситонной люминесценции такой эффект (не связанный с термализацией экситонов между различными зеемановскими подуровнями) наблюдался в гексагональных кристаллах GaSe [3]. В условиях непрерывного возбуждения кристалла [3] степень поляризации излучения представляет собой усредненную степень поляризации излучения за время жизни возбужденного состояния. При этом поляризация излучения и влияние на нее магнитного поля в различные моменты жизни экситонов остаются неизвестными. Целью настоящей работы явилось исследование методом спектроскопии с временным разрешением зависимости степени линейной поляризации излучения экситонов в кристаллах селенида галлия от поперечного магнитного поля в различные моменты жизни возбужденного состояния.

Методика эксперимента. Кристаллы селенида галлия были выращены методом Бриджмена и спе-

циально не легировались. Образцы для исследований получались из слитков путем скалывания вдоль плоскости кристаллических слоев, перпендикулярно оптической оси кристалла c . Возбуждение экситонной люминесценции осуществлялось излучением импульсного лазера на парах меди с длительностью импульсов $\tau_p = 20$ нс. Плотность возбуждения составляла около 200 Вт/см^2 . Возбуждающий свет с энергией фотонов $h\nu_{\text{exc}} = 2.140 \text{ эВ} > E_g$ (E_g – ширина запрещенной зоны кристалла) падал под малым углом к нормали к поверхности образца, излучение регистрировалось в направлении нормали, параллельно оптической оси. Для регистрации спектров использовался дифракционный спектрометр, снабженный системой счета фотонов с временным разрешением ~ 30 нс. Для исследования излучения в различные моменты жизни связанных экситонов импульс ворот системы счета фотонов был задержан по отношению к возбуждающему импульсу. Во время эксперимента образцы находились в жидком гелии при температуре 2 К. Для получения магнитных полей применялся сверхпроводящий соленоид. Магнитное поле было ориентировано перпендикулярно оптической оси кристаллов c .

Экспериментальные результаты и обсуждение. Спектр излучения кристалла GaSe в области края фундаментального поглощения в первые 30 нс после возбуждающего импульса приведен на рис.1. Наиболее коротковолновая линия спектра с максимумом вблизи $h\nu = 2.108 \text{ эВ}$ обусловлена излучательной аннигиляцией прямых свободных экситонов, а линии α и β с максимумами при 2.096 и 2.089 эВ отвечают излучению триплетных экситонов, связанных на ионизованных центрах (или изоэлектронных

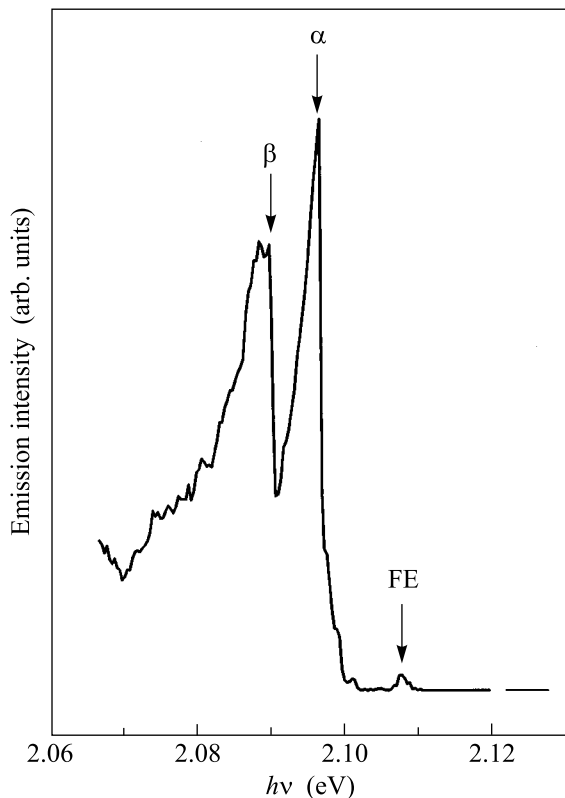


Рис.1. Спектр излучения кристалла GaSe. $T = 2$ К

ловушках) [4]. Линия β сопровождается интенсивным акустическим крылом. В поперечном магнитном поле $B \geq 2$ Тл ($\mathbf{B} \perp c$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}_{\text{photon}}$ – геометрия Фойгта) резонансные линии поглощения связанных экситонов расщепляются в триплеты. Крайние компоненты каждого триплета поляризованы с $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, центральная компонента имеет поляризацию $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$. Положение центральной компоненты триплета в поле практически не меняется, а крайние компоненты смещаются в поле в противоположные стороны. В полях $B < 2$ Тл расщепление линий α и β не наблюдается из-за их относительно большой ширины. Поскольку характер магнитооптических эффектов на линиях α и β аналогичен, в дальнейшем мы ограничимся рассмотрением поведения линии β .

На рис.2 представлена экспериментальная зависимость степени линейной поляризации излучения связанного экситона β от магнитного поля $P_{\text{lin}}(B)$ в условиях непрерывного возбуждения кристалла светом с $h\nu_{\text{exc}} = 2.54$ эВ $> E_g$. Здесь величина $P_{\text{lin}}(B)$ определена как

$$P_{\text{lin}}(B) = \frac{I_{\parallel}(B) - I_{\perp}(B)}{I_{\parallel}(B) + I_{\perp}(B)}, \quad (1)$$

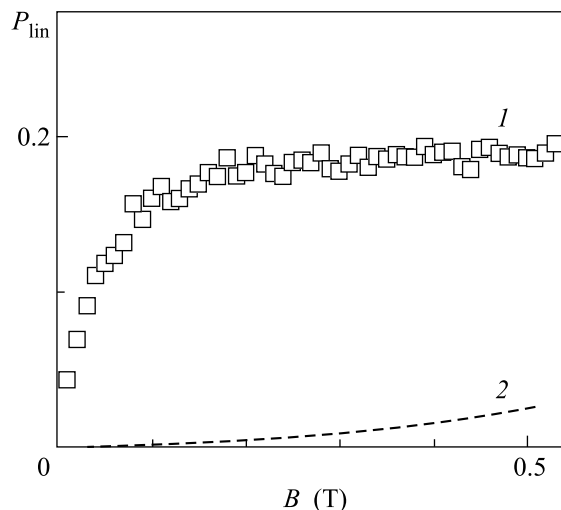


Рис.2. Зависимость степени линейной поляризации излучения триплетного связанного экситона β от магнитного, $P_{\text{lin}}(B)$, поля в условиях непрерывного возбуждения люминесценции $\mathbf{B} \perp c$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}_{\text{photon}}$. $T = 2$ К. 1 – экспериментальная зависимость, 2 – теоретическая зависимость в случае бальмановского распределения триплетных экситонов по зеемановским подуровням

где $I_{\parallel}(B)$ и $I_{\perp}(B)$ – интенсивности компонент экситонного излучения, поляризованных с $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ и $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$, соответственно. Как видно, существенные изменения $P_{\text{lin}}(B)$ (равно как и интенсивностей компонент $I_{\parallel}(B)$ и $I_{\perp}(B)$), вызванные магнитным полем, имеют место в интервале полей $0 \div 0.2$ Тл. При дальнейшем увеличении магнитного поля величина $P_{\text{lin}}(B)$ остается практически неизменной. В условиях стационарного возбуждения кристалла максимальное значение степени линейной поляризации излучения, достигаемой в магнитном поле, в соответствии с рис.2 составляет ~ 0.2 .

Нами обнаружено, что в условиях возбуждения кристалла короткими световыми импульсами зависимость степени линейной поляризации экситонного излучения от магнитного поля значительно меняется с течением времени жизни возбужденного состояния t . На рис.3 приведены зависимости степени линейной поляризации экситонного излучения от магнитного поля $P_{\text{lin}}(B, t) = [I_{\parallel}(B, t) - I_{\perp}(B, t)] / [I_{\parallel}(B, t) + I_{\perp}(B, t)]$ для различных времен задержки регистрации люминесценции относительно момента окончания возбуждающего импульса. Интервал времени, в течение которого проводилась регистрация (ширина импульса ворот), составлял $\Delta t = 30$ нс. Как видно из рис.3, при малых временах задержки ($t \leq 0.2$ мкс) зависимость степени линейной поляризации излучения от магнитного поля носит немонотонный харак-

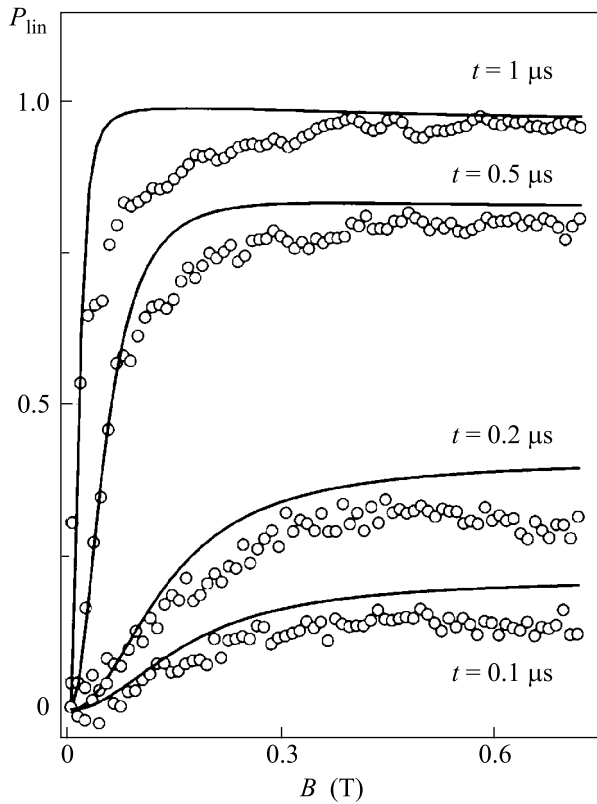


Рис.3. Зависимость степени линейной поляризации излучения триплетного связанного экситона β от магнитного поля, $P_{\text{lin}}(B, t)$, в различные моменты жизни возбужденного состояния (время t указано на рисунке); $\mathbf{B} \perp c$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}_{\text{photon}}$. Точки – экспериментальные значения, сплошные линии – расчетная зависимость

тер: при фиксированном t $P_{\text{lin}}(B, t)$ увеличивается по мере увеличения B , достигает максимального значения и при дальнейшем увеличении поля уменьшается (рис.3, $t = 0.1; 0.2$ мкс). По мере увеличения времени задержки вид зависимости $P_{\text{lin}}(B, t)$ меняется: скорость нарастания степени поляризации в магнитном поле резко увеличивается, при этом, достигнув практически максимального значения в области малых полей, при дальнейшем увеличении поля величина $P_{\text{lin}}(B, t)$ почти не меняется (рис.3, $t = 0.5$ мкс) либо слабо увеличивается (рис.3, $t = 1$ мкс). Максимальное значение степени линейной поляризации, достигаемое в магнитном поле, с увеличением времени задержки монотонно растет от $P_{\text{lin}}(B, t) \approx 0.15$ при $t = 0.1$ мкс до $P_{\text{lin}}(B, t) \approx 1$ при $t = 1$ мкс. Таким образом, максимальное значение $P_{\text{lin}}(B, t)$ увеличивается по мере увеличения времени пребывания связанных экситонов в магнитном поле, достигая при больших t практически 100%.

Для объяснения наблюдаемой временной эволюции зависимости $P_{\text{lin}}(B, t)$ рассмотрим структуру

энергетических уровней триплетных связанных экситонов в GaSe. В кристаллах GaSe орбитально-невырожденное состояние Γ_4 экситона, связанного на ионизованном центре (или изоэлектронной ловушке), как и основное состояние прямого свободного экситона [5], при учете обменного взаимодействия расщепляется на два состояния – синглетное и триплетное. В случае свободного экситона величина синглет-триплетного расщепления составляет $\Delta_1 \approx 2$ мэВ. Триплетные экситоны характеризуются полным спином $S = 1$ и проекциями спина на 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 [5]. В силу анизотропии кристалла состояние с $S_z = 0$ отщеплено от состояний с $S_z = \pm 1$ на величину Δ [6]. 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 экситона расщепляется в триплет. Энергии состояний триплетного экситона в поперечном магнитном поле, вычисленные с помощью теории возмущений, описываются выражением [3]

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

где $\Omega(B) = g_{\perp} \mu_0 B$, $g_{\perp} \equiv g_{xx} = g_{yy}$ – поперечная компонента g -фактора экситона, μ_0 – магнетон Бора. Оптические переходы из состояний 1 и 2 разрешены в поляризации света $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, из состояния 3 – в поляризации света $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$. Излучательные времена жизни экситонов в состояниях 1–3 равны $\tau_{ir}(B) = C_i(B) \tau_r$ ($i = 1, 2, 3$), где $C_{1,2}(B) = 2\{1 \pm \Delta/[\Delta^2 + \Omega^2(B)]^{0.5}\}^{-1}$, $C_3(B) = 1$, τ_r – излучательное время жизни исходных состояний с $S_z = \pm 1$. Интенсивность излучательных переходов из состояний 1–3 определяется вероятностью этих переходов и заселенностью соответствующих состояний, которая зависит от полного времени жизни экситонов. Полные времена жизни экситонов в состояниях 1–3 равны: $\tau_i(B) = [\tau_{ir}^{-1}(B) + \tau_0^{-1}]^{-1}$ ($i = 1, 2, 3$), где τ_0 – безызлучательное время жизни экситонов (которое предполагается не зависящим от спинового состояния триплетного связанного экситона). При возбуждении кристалла неполяризованным светом с $h\nu_{\text{exc}} > E_g$ и в пренебрежении спиновой релаксацией экситонов интенсивности излучения экситонов из состояний 1–3 можно записать в виде

$$I_i(B, t) = I_0 \tau_{ir}^{-1}(B) \exp\left[-\frac{t}{\tau_i(B)}\right], \quad (3)$$

где величина I_0 пропорциональна скорости генерации экситонов и одинакова для всех $i = 1, 2, 3$. Интенсивности π - и σ -компонент излучения, $I_{\parallel}(B, t)$ и $I_{\perp}(B, t)$, связаны с $I_i(B, t)$ соотношениями

$$I_{\parallel}(B, t) = I_1(B, t) + I_2(B, t), \quad I_{\perp}(B, t) = I_3(B, t). \quad (4)$$

Вычисленные на основе (4) зависимости $B_{\text{lin}}(B, t)$ приведены на рис.3 сплошными линиями. Как видно из рис.3, теоретические зависимости удовлетворительно передают экспериментально наблюдающиеся изменения индуцированной магнитным полем линейной поляризации экситонного излучения в течение времени жизни возбужденного состояния. Теоретические кривые на рис.3 получены при следующих значениях параметров триплетных связанных экситонов β : $g_{\perp} = 3.7$ [4], $\tau_r = 115 \cdot 10^{-9}$ с, $\tau_0 = 7 \cdot 10^{-6}$ с, $\Delta = 0.04$ мэВ, которые практически совпадают с данными, полученными в эксперименте по антипересечению спиновых подуровней связанного экситона β в продольном магнитном поле [7]. В принципе, проведенное рассмотрение может быть обобщено с учетом эффекта термализации экситонов, обусловленной их спиновой релаксацией. Влияние спиновой релаксации на заселенность различных зеемановских подуровней триплетного экситона рассмотрено в [8, 9]. На рис.2 показана зависимость $P_{\text{lin}}(B)$ в случае полной термализации экситонов (случай больцмановского распределения экситонов по зеемановским подуровням). Как видно из рис.2, в этом случае величина $P_{\text{lin}}(B)$ весьма мала по сравнению с экспериментально наблюдаемой, что оправдывает пренебрежение процессами спиновой релаксации экситонов при выводе формулы (3).

Таким образом, продемонстрировано, что максимальная степень индуцируемой магнитным полем линейной поляризации излучения триплетных экситонов не остается постоянной в течение жизни экситонных состояний, а зависит от времени жизни экситонов в магнитном поле, увеличиваясь в течение жизни возбужденного состояния от значений, близких к нулю, до $\sim 100\%$. Анализ временной зависимости индуцированной магнитным полем поляризованной люминесценции экситонов позволяет определить излучательные и безызлучательные времена жизни различных спиновых состояний триплетных экситонов и их зависимости от внешнего магнитного поля, а также параметр тонкой структуры экситонных состояний.

-
1. П. П. Феофилов, *Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов*, М.: Физматгиз, 1959.
 2. *Экситоны*, М.: Наука, 1985.
 3. Е. М. Гамарц, Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус и др., *ФТТ* **22**, 3620 (1980).
 4. Е. М. Гамарц, Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус и др., *ФТТ* **24**, 2325 (1982).
 5. E. Mooser and M. Schlüter, *Nuovo Cim.* **18B**, 164 (1973).
 6. Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус, Б. С. Разбирин, А. Н. Старухин, *ЖЭТФ* **72**, 2230 (1977).
 7. A. N. Starukhin, D. K. Nelson, and B. S. Razbirin, *Phys. Rev.* **B65**, 193204-1 (2002).
 8. K. Morigaki, *Japan. J. Appl. Phys.* **22**, 375 (1983).
 9. W. M. Chem, M. Godlewski, B. Monemar, and J. P. Berman, *Phys. Rev.* **B41**, 5746 (1990).