ЖУРНАЛ ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ
т. 3, № 2 (1999) с. 209–212

JOURNAL OF PHYSICAL STUDIES
v. 3, No. 2 (1999) p. 209–212

СПЕКТРАЛЬНИЙ РОЗПОДІЛ ВИПРОМІНЮВАННЯ $In_xTl_{1-x}I$ ПРИ ЛАЗЕРНОМУ ЗБУДЖЕННІ

А. В. Франів
Львівський державний університет імені Івана Франка,
Університетська, 1, Львів, 290602, Україна
(Отримано 19 листопода 1998 р.; в остаточному вигляді — 7 квітня 1999 р.)

Уперше представлені результати експериментальних досліджень люмінесценції твердих розчинів заміщення шаруватих напівпровідників $In_xTl_{1-x}I$ в умовах великих швидкостей ґенерації нерівноважних носіїв заряду в діяпазоні $4.2< T <77$ К. На основі аналізу структури спектрів люмінесценції, залежности півширини ліній, інтеґральних інтенсивностей та положення максимумів від густини потужности лазерного нагнітання зроблено висновки про наявність та конкуренцію можливих каналів випромінювальної рекомбінації. Отримані закономірності знаходять пояснення в моделі співіснування щільного екситонного газу, екситон–домішкових комплесів та процесів зародження й конденсації електрон–діркових пар в електрон–діркові комплекси. За формою короткохвильового крила смуги екситонної рекомбінації визначена температура ансамблю екситонів в $In_xTl_{1-x}I$. Обговорено особливості співіснування екситонного газу, екситон–домішкових та електрон–діркових комплексів.

Ключові слова: густина потужности нагнітання, екситон, електрон–дірковий комплекс, температура ансамблю екситонів.

PACS numbers: 78.55.Hx, 71.35.Ee

I. ВСТУП

При потужному лазерному збудженні та великих швидкостях ґенерації нерівноважних носіїв заряду (ННЗ) в напівпровідниках можуть виникати різноманітні канали випромінювальної рекомбінації, зокрема рекомбінація екситонного газу, колективнних екситонних фаз та ін., більшість із яких достатньо добре вивчена в об'ємних тривимірних кристалах [1–3]. Зауважимо, що якісно по–іншому ці механізми реалізуються в сильноанізотропних квазідвовимірних структурах, інтерес до яких в останні роки зростає у зв'язку з розробкою лазерних діодів та різноваріянтних датчиків, перспективних у мікро– та оптоелектроніці. Експериментальні дослідження цих об'єктів стимулюються теоретичними роботами [4, 5], у яких передбачається прояв особливих властивостей квазічастинок у шаруватих напівпровідниках. Слід зауважити, що результати досліджень таких шаруватих напівпровідників, як GaSe, InSe, PbJ_2 [6], свідчать про вплив анізотропії структури як на чисто екситонну підсистему, так і електронний характер спектра в цілому. Тому повної фізичної картини анізотропного характеру властивостей шаруватих кристалів, яка органічно зв'язана з особливостями кристалічної структури сполук, на сьогоднішній час немає. У зв'язку з цим актуальним є пошук принципово нових шаруватих напівпровідників для встановлення кореляції між особливостями будови таких об'єктів та їхніми фізичними властивостями.

II. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ

У роботі вперше наведені експериментальні результати з люмінесценції твердих розчинів заміщення (ТРЗН) $In_xTl_{1-x}I$ [7] при потужному лазерному збудженні. Зауважимо, що на сьогодні про оптичні, зокрема люмінесцентні властивості $In_xTl_{1-x}I$ й аналогічних ТРЗН групи A_3B_7, опубліковано декілька робіт [7–9]. ТРЗН $In_xTl_{1-x}I$ володіють орторомбічною ґраткою просторової групи D_{2h}^{17} і отримані шляхом стехіометричного заміщення бінарних сполук InI та TlI. Напрямки базисних векторів **a**, **c** розташовані в площині шару, а оптична вісь **b** напрямлена перпендикулярно до шарів. Дослідження проводили на свіжих сколах моноблочних кристалів. Застосовували однофотонне збудження люмінесценції з використанням випромінювання другої гармоніки лазера на основі АІГ: Nd^{3+} ($h\nu = 2.33$ eB, $\tau_i = 10$ нс). Сигнал люмінесценції аналізували в поляризації електричного вектора світлової хвилі $\mathbf{E}||\mathbf{c}$ і реєстрували фотоелектричним методом на базі комплексу СДЛ–2 з використанням фотонного нагромадження. Вимірювання проводили в температурному діяапазоні $4.2< T <77$ К. Усі дослідження спектрів фотолюмінесценції виконані в поляризації $\mathbf{E}||\mathbf{c}$, для якої оптичні фотопереходи в $1s$–екситонний стан є дипольно дозволеними, на відміну від напрямку $\mathbf{E}||\mathbf{a}$, для якого, як і у випадку чисто бінарного InI [10, 11], фотопереходи заборонені.

На рис. 1 наведені температурні залежності спектрів фотолюмінесценції трьох ТРЗН $In_xTl_{1-x}I$ при постійних малих густинах збудження $P = 5$ квт/см^2, а на вставках рис. 1 зображено температурні залежності інтеґральних інтенсивностей відповідних смуг люмінесценції. Їхня температурна динаміка однозначно вказує на те, що при малих густинах збудження в ТРЗН $In_xTl_{1-x}I$ існує два канали рекомбінаційного випромінювання (за аналогією з бінарними InI [12, 13]). Вони формуються рекомбінацію вільних (екс) і локалізованих (л.екс) екситонів.

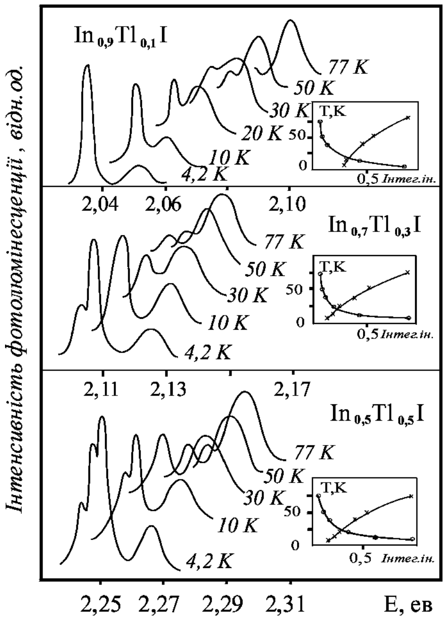

Рис. 1. Температурна залежність спектрів фотолюмінесценції $In_xTl_{1-x}I$ при потужності нагнітання P=5 квт/см^2.

При T=77 К з підвищенням густини оптичного нагнітання (див. рис. 2а) смуга рекомбінації вільних екситонів зростає за інтенсивністю, зсувається в довгохвильову область. Причому одночасно ускладнюється структура спектрального розподілу люмінесценції. Привертає до себе увагу поведінка півширини та інтеґральної інтенсивности спостережуваних смуг при підвищенні густини нагнітання. Зокрема, смуга рекомбінації вільних екситонів зростає за інтенсивністю і шириною, а смуга рекомбінації локалізованих екситонів практично не залежить від потужности збудження. У результаті на експерименті спостерігаємо "злиття" смуг при високих густинах збудження і появу однієї широкої асиметричної смуги з максимумом, розташованим приблизно посередині між положеннями максимумів вільних та локалізованих екситонів. Безумовно, такі особливості рекомбінаційного випромінювання свідчать про складний характер спектрального розподілу випромінювання в кристалах $In_xTl_{1-x}I$ при високих рівнях нагнітання, а саме появу нових каналів випромінювальної рекомбінації.

Тому зниження температури до T=4.2 К (рис. 2б) сприяє частковому виморожуванню фононної підсистеми ТРЗН і дає змогу простежити за конкуруючими процесами екситонної рекомбінації в $In_xTl_{1-x}I$. Зрозуміло, що при температурі рідкого гелію інтенсивність смуг рекомбінації локалізованих екситонів слабо залежить від потужности нагнітання, оскільки повністю описується концентрацією локалізуючих центрів, що виникають при структурному розупорядкуванні ґратки в процесі росту кристала. Незначне зростання інтенсивности може бути зумовлене появою локалізуючих центрів при локальному нагріванні кристала потужним лазерним випромінюванням, а порівняно велика інтенсивність при малих рівнях збудження повністю задовольняє співвідношення між силами осциляторів локалізованих і вільних екситонів ($f_{\text{л.екс}}/f_{\text{екс}} = 10^3$). У порівнянні з нею, при збільшенні густини нагнітання смуга рекомбінації вільних екситонів сильно зростає за інтенсивністю і зсувається в область більших довжин хвиль, а при потужности P=0.1 Мвт/см^2 у спектрі ФЛ спочатку з'являється довгохвильова асиметрія форми контура цієї смуги, а далі при підвищенні густини нагнітання до P=0.3 Мвт/см^2 на довгохвильовому крилі смуги рекомбінації екситонного газу формується нова широка смуга, максимум якої розташований приблизно посередині між максимумами смуг вільного та локалізованого екситонів. Характерно, що при цьому смуга рекомбінації екситонного газу зазнає різкого зменшення півширини ΔH та фіолетового зсуву. Це чітко видно на рис. 3, де стрілкою вказано інтенсивність збудження, при якій у спектрі з'являється довгохвильова смуга.

III. ОБГОВОРЕННЯ

Отримані експериментальні результати можуть знайти пояснення в моделі співіснування екситонного газу, локалізованих екситонів та електрон–діркових комплексів (ЕДК), зокрема таких, як екситонні молекули та електрон–діркові краплі. Дійсно, при T=4.2 К короткохвильова смуга обумовлена випромінювальною рекомбінацією вільних екситонів. Причому її довгохвильовий зсув і розширення, що зростає з підвищенням густини нагнітання і збільшенням концентрації квазічастинок, очевидно пов'язані з процесами екситон–екситонної взаємодії і зокрема з конкуренцією пружних і непружних зіткнень квазічастинок [14]. Далі, при деякій пороговій концентрації нерівноважних носіїв заряду в спектрі люмінесценції з'являється нова смуга, яка ймовірно зумовлена рекомбінацією ЕДК, тоді як короткохвильова смуга відображає рекомбінаційні процеси квазічастинок за межами ЕДК, тобто рекомбінацію екситонів, що знаходяться в міжкомплексному просторі, де густина екситонів набагато менша у зв'язку зі стягуванням комплексами значної кількости електрон–діркових пар. Зокрема, на це вказує зменшення півширини та короткохвильовий зсув лінії рекомбінації вільних екситонів, починаючи з P=0.5 Мвт/см^2 (рис. 2б).

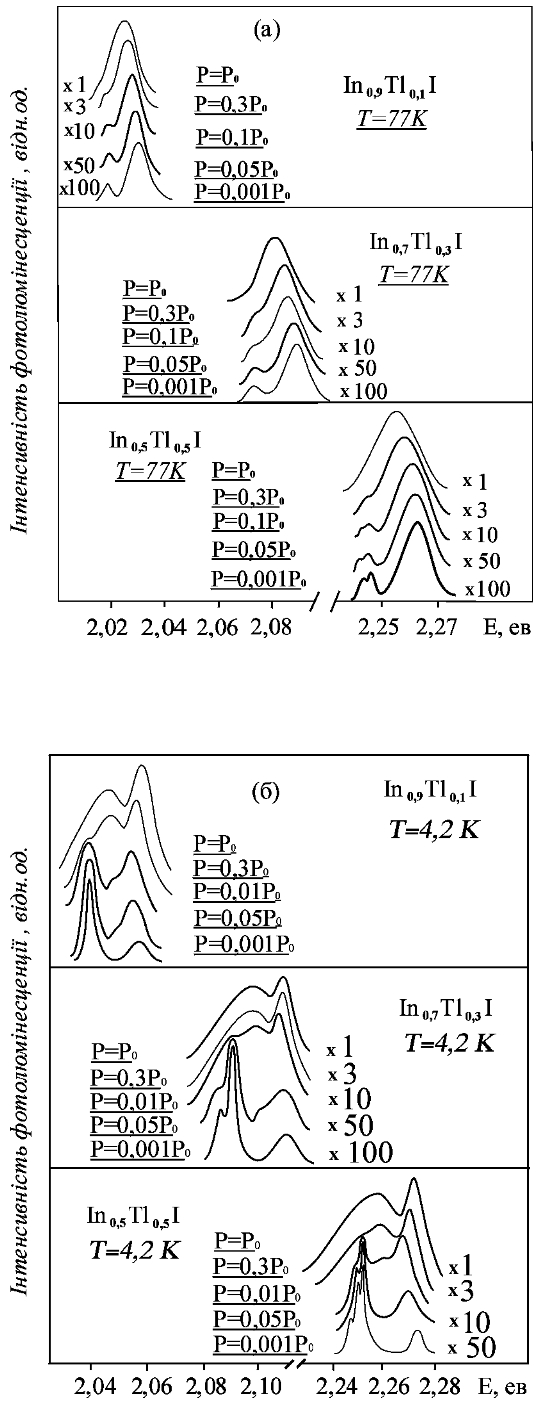

Рис. 2. Спектри фотолюмінесценції ТРЗН $In_xTl_{1-x}I$ при 77 К (а) і при 4.2 К (б) в залежності від густини потужности нагнітання. P_0=1.5 Мвт/см^2.

Зауважимо, що характер зміни густини екситонних станів із підвищенням густини потужности збудження описує зміна температури ансамблю екситонів $T_{екс}$ [15]. Цей параметр можна визначити за відносною інтенсивністю короткохвильового крила лінії екситонної рекомбінації ($I_{екс} \approx (h\nu/kT_{екс})$). Розрахована таким чином температура екситонного ансамблю як функція відносної інтенсивности для ТРЗН $In_{0.9}Tl_{0.1}I$ зображена на рис. 3. Як видно з рисунка, з появою смуги рекомбінації електрон–діркових комплексів $T_{екс}$ різко зменшується, що відповідає різкому зниженню густини екситонів за межами ЕДК. Отже, при великих P >0.5 Мвт/см^2 густинах збудження в спектральному розподілі випромінювання $In_xTl_{1-x}I$ з'являється новий канал випромінювання і спектр фотолюмінесценції формується принаймі трьома механізмами екситонної рекомбінації, а саме: рекомбінацією екситонного газу, екситонів локалізованих на структурних розупорядкуваннях кристалічної ґратки, та електрон–діркових комплексів.

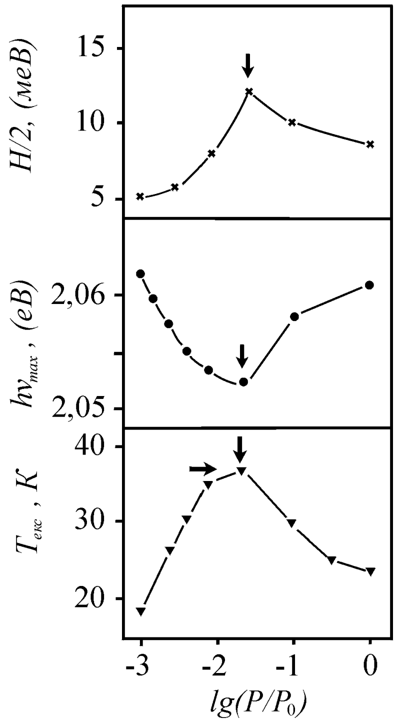

Рис. 3. Залежність півширини ΔH короткохвильової смуги, її максимуму $h\nu_{\max}$ та температури системи екситонів $T_{екс}$ від густини потужности нагнітання при $T = 4.2$ К. P_0=1.5 Мвт/см^2.

Насамкінець зауважимо, що отримані результати вказують на перспективність дослідження екситонних явищ у шаруватих напівпровідниках $In_xTl_{1-x}I$. Вона зумовлена хорошим спектральним розділенням смуг випромінювання різних фізичних механізмів та порівняно високою температурою утворення ЕДК $T \simeq 35$ К, що своєю чергою може бути пояснено сильною анізотропією електронного спектра кристалів унаслідок квазідвовимірности їхньої структури, а також особливостями будови електронних зон (таких, як багатодолинність). На наш погляд, для побудови загальної картини фізичних процесів у ТРЗН $In_xTl_{1-x}I$ необхідні подальші дослідження основних параметрів цих кристалів, зокрема експериментальна перевірка та розрахунок структури електронних зон, значень ефективних мас та інше.

[1] К. Д. Джефрис, Л. В. Келдыш, *Электронно-дырочные капли в полупроводниках* (Наука, Москва, 1988).
[2] Е. А. Андрюшин, Л. В. Келдыш, А. П. Силин, Журн. эксп. теор. физ. **73**, 1163 (1977).
[3] М. С. Бродин, И. В. Блонский, *Экситонные процессы в слоистых кристаллах* (Наукова думка, Київ, 1986).
[4] В. Н. Добровольский, В. Г. Литовченко, *Перенос електронов и дырок у поверхности полупроводников* (Наукова думка, Київ, 1985).
[5] M. I. Kolinko, J. Phys.: Cond. Matt. **6**, 183 (1994).
[6] Г. Л. Беленький, М. О. Годжаев, Э. Ю. Салаев, Е. Г. Алиев, Журн. эксп. теор. физ. **91**, 1886 (1986).
[7] И. В. Блонский, Ю. О. Лунь, А. В. Франів, М. Бігун, Укр. фіз. журн. **37**, 547 (1992).
[8] M. Yoshida, N. Ohno, H. Watanabe, Y. Nakai, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 408 (1984).
[9] M. Yoshida, N. Ohno, Y. Nakai, K. Nakamura J, Phys. Soc. Jpn. **52**, 1108 (1983).
[10] N. Ohno, M. Fuita, Y. Nakai, K. Nakamura, Solid State Commun. **28**, 137 (1978).
[11] M. Yoshida, N. Ohno, Y. Nakai, K. Nakamura, Phys. Status Solidi **109**, 503 (1982).
[12] M. Yoshida, N. Ohno, Y. Nakai, K. Nakamura, Solid State Commun. **35**, 775 (1980).
[13] М. С. Бродин, І. В. Блонський, Ю. О. Лунь, А. В. Франів, Укр. фіз. журн. **37**, 971 (1992).
[14] Л. Валкус, Физ. тверд. тела **18**, 2594 (1976).
[15] Дж. Хенсон, Т. Филипс, *Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках* (Мир, Москва, 1980).

SPECTRAL DISTRIBUTIONS OF $In_xTl_{1-x}I$ EMISSION UNDER LASER EXCITATION

A. V. Franiv
The Ivan Franko State University of Lviv, Physical Faculty,
1 Universytetska Str., Lviv, UA–290602, Ukraine

Results of experimental investigations of the luminescence of $In_xTl_{1-x}I$ solid solutions at high speed of carrier generation in the $4.2 < T < 77$ K temperature region are presented for the first time. On the basis of the analysis of the structure of the luminescence spectra, a dependence of the emission band halfwidth, integral intensity and maximum position of the power density of the laser excitation the conclusion is made concerning the existence and competition of possible channels of radioactive recombination. The features observed are explained in terms of the model of coexistence of dencified exiton gas, exciton–impurity complex and processes of founation and condensation of electron–hole pairs.