

ЭФФЕКТ АНТИПЕРЕСЕЧЕНИЯ УРОВНЕЙ ТРИПЛЕТНЫХ ЭКСИТОНОВ В СПЕКТРАХ ПОСЛЕСВЕЧЕНИЯ КРИСТАЛЛА GaSe

А.Н.Старухин, Д.К.Нельсон, Б.С.Разбирин

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

Поступила в редакцию 18 сентября 2000 г.

Исследован эффект антипересечения спиновых подуровней триплетных экситонов в спектрах послесвечения. Обнаружено, что форма сигнала антипересечения существенно меняется в течение времени жизни возбужденного состояния, при этом наблюдается расщепление пика сигнала антипересечения на два, расстояние между которыми увеличивается со временем. Показано, что каждый из пиков обусловлен вкладом в излучение одного из взаимодействующих состояний, и определены их времена жизни.

PACS: 71.35.+z, 78.20.Ls, 78.47.+p, 78.55.Et

Эффект антипересечения энергетических уровней, отвечающих различным электронным состояниям атома, был открыт Эк, Фолди и Видером [1] и нашел широкое применение в спектроскопии для изучения тонкой структуры электронных спектров в различных системах, от атомов до кристаллов [2, 3]. Эффект возникает тогда, когда одно возмущение, меняющееся плавно (например, магнитное поле), стремится привести к вырождению (то есть 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 тонкой (спиновой) структуры экситонных состояний в анизотропных полупроводниках.

В условиях непрерывного возбуждения эффект антипересечения уровней проявляется в виде максимума или минимума лоренцевой формы на зависимости суммарной интенсивности излучения изучаемых состояний от магнитного поля [1, 2]. Однако, как показали проведенные нами исследования эффекта антипересечения уровней в спектрах послесвечения триплетных связанных экситонов в кристаллах GaSe, указанная простая форма сигнала антипересечения является лишь частным случаем, отвечающим излучению экситонов в течение малого промежутка времени после их возбуждения.

Целью настоящей работы явилось изучение эффекта антипересечения уровней в различные моменты жизни (t) возбужденных состояний. Показано, что в течение времени жизни экситонов форма сигнала антипересечения уровней претерпевает существенные изменения от практически полного отсутствия сигнала при $t \approx 0$ до пика лоренцевой формы при промежуточных значениях t и, наконец, к сложной структуре из двух пиков при больших t .

Возбуждение экситонной люминесценции осуществлялось излучением импульсного лазера на парах меди с длительностью импульсов $\tau_p = 20$ нс. Возбуждающий свет с энергией фотонов $h\nu_{exc} = 2.144$ эВ $> E_g$ (E_g – ширина запрещенной зоны кристалла GaSe) падал под малым углом к нормали к поверхности образца, излучение регистрировалось в направлении нормали, параллельно оптической оси кристалла c . Плотность возбуждения составляла около 200 Вт/см². Для регистрации спектров использовался дифракционный спектрометр, снабженный устройством счета фотонов с временным разрешением ~ 30 нс. Для получения магнитных полей применялся сверхпроводящий соленоид.

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 $h\nu = 2.108$ эВ обусловлена

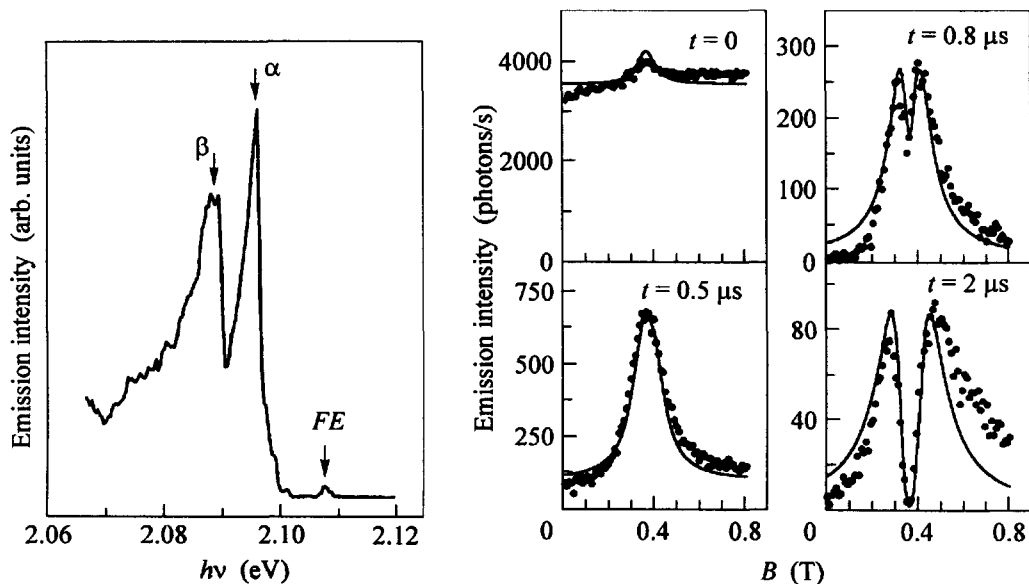


Рис.1. Спектр излучения кристалла GaSe. $T = 2$ К

Рис.2. Зависимость интенсивности излучения триплетного связанного экситона β в поляризации σ^- от магнитного поля, $I_{\sigma^-}(B, t)$, в различные моменты жизни возбужденного состояния (время t указано на рисунке). $\mathbf{B} \parallel c \parallel \mathbf{k}_{photon}$. Точки – экспериментальные значения, сплошные линии – расчетная зависимость

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 ловушках) [4]. Линия β сопровождается интенсивным акустическим крылом. В продольном магнитном поле $B \geq 2$ Тл ($\mathbf{B} \parallel c \parallel \mathbf{k}_{photon}$ – геометрия Фарадея) линии связанных экситонов расщепляются в дублеты, компоненты которых поляризованы по правому (σ^+) и левому (σ^-) кругу [4]. В меньших полях расщепление линий α и β не наблюдается из-за их относительно большой ширины. В то же время в зависимости интенсивности излучения связанных экситонов от продольного магнитного поля в условиях непрерывного возбуждения имеет место пик [4, 5], обусловленный антипересечением спиновых подуровней триплетных экситонов в магнитном поле. Поскольку характер магнито-

оптических эффектов на линиях α и β аналогичен, в дальнейшем мы ограничимся рассмотрением поведения линии β .

На рис.2 представлены зависимости интенсивности линии β в поляризации света от магнитного поля в геометрии Фарадея в различные моменты времени t после момента возбуждения $I_{\sigma^-}(B, t)$. Интервал времени, в течение которого проводилась регистрация, составлял $\Delta t = 30$ нс. При $t = 0$ в зависимости $I_{\sigma^-}(B, 0)$ можно заметить очень слабый максимум при $B = 0.36$ Тл $\equiv B'_c$ (при $\Delta t < 30$ нс $I_{\sigma^-}(B, 0)$ практически не зависит от магнитного поля).

С увеличением времени задержки в интервале $0 < t \leq 600$ нс относительная величина сигнала в области максимума резко увеличивается (при этом абсолютная интенсивность линии β при $B = 0$ в спектрах послесвечения, естественно, уменьшается), так что в зависимости $I_{\sigma^-}(B, T)$ в области $B = B'_c$ формируется ярко выраженный пик (рис.2, $t = 0.5$ мкс). В этом отношении вид зависимости $I_{\sigma^-}(B, t)$ в рассматриваемом диапазоне времен подобен зависимости интенсивности линии люминесценции β от магнитного поля $I_{\sigma^-}(B)$ в случае непрерывного возбуждения люминесценции [4, 5]. При дальнейшем увеличении времени задержки относительная интенсивность пика продолжает возрастать и в области максимума пика появляется неглубокий провал (рис.2, $t = 0.8$ мкс). Дальнейшее увеличение t приводит к увеличению ширины и глубины провала, так что при $t = 2$ мкс в зависимости $I_{\sigma^-}(B, t)$ фактически наблюдаются два хорошо изолированных пика, расстояние между которыми продолжает увеличиваться с дальнейшим увеличением t (рис.2). Таким образом, в различные моменты времени жизни связанных экситонов форма сигнала антипересечения уровней существенно меняется от практически полного отсутствия сигнала (при $t = 0$) до сложной структуры с двумя максимумами (при больших t).

Для объяснения наблюдаемой временной эволюции сигнала антипересечения 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 [6], при учете обменного взаимодействия расщепляется на два состояния – синглетное и триплетное. Триплетные экситоны характеризуются полным спином $S = 1$ и проекциями спина на ось c : $S_z = 0, \pm 1$. Переходы в состояние с $S_z = \pm 1$ разрешены в поляризации света $\mathbf{E} \perp c$, состояние с $S_z = 0$ оптически неактивно [6]. В силу анизотропии кристалла состояние с $S_z = 0$ отщеплено от состояний с $S_z = \pm 1$ на величину Δ (см. рис.3) [7]. 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 [6, 7] (рис.3). Энергии состояний триплетного экситона в продольном поле описываются выражениями [7]

$$E_{1,2} = E_0 \pm 0.5g_{zz}\mu_0 B, \quad E_3 = E_0 - \Delta, \quad (1)$$

где g_{zz} – продольная компонента g -фактора экситона, μ_0 – магнетон Бора. Интенсивность излучательных переходов из состояний 1–3 определяется излучательным временем жизни экситонов τ_r (оно отлично 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 (1), сравниваются, то есть соответствующие энергетические уровни пересекаются. Однако при наличии в

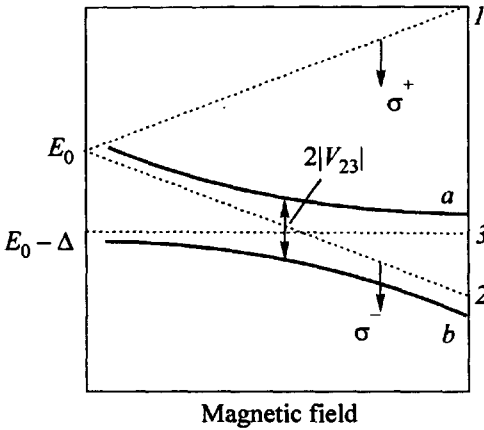


Рис.3. Схема энергетических уровней триплетного экситона в GaSe в магнитном поле. $B \parallel c$

кристалле возмущения V (например, локального поля дефекта), смешивающего состояния экситона $|0\rangle$ и $|\pm 1\rangle$, вместо пересечения уровней 2 и 3 будет наблюдаться их антипересечение (рис.3). При $g_{zz}\mu_0 B \approx 2\Delta$ смешиваться будут, главным образом, состояния 2 и 3 (то есть состояния $|-1\rangle$ и $|0\rangle$), поскольку в этих условиях разность энергий этих состояний существенно меньше, чем разность энергий состояний 1 и 3. С учетом возмущения V волновые функции $\Psi_{a,b}$ состояний, происходящих от состояний 2 и 3, соответственно, будут иметь вид

$$\Psi_a = C_2\Psi_2 + C_3\Psi_3, \quad \Psi_b = C_3\Psi_2 - C_2\Psi_3, \quad (2)$$

где коэффициенты $C_{2,3}$ зависят от магнитного поля. Учитывая, что состояние 3 оптически неактивно, излучательные переходы из состояний a и b поляризованы так же, как и переходы из состояния 2. Доля оптически активного состояния 2 в волновых функциях (2) определяет излучательные времена жизни экситонов в состояниях a и b : $\tau_{ar}(B) = [C_2^2(B)\tau_r^{-1}]^{-1}$ и $\tau_{br}(B) = [C_3^2(B)\tau_r^{-1}]^{-1}$, а также полные времена жизни экситонов в этих состояниях: $\tau_a(B) = [\tau_{ar}^{-1}(B) + \tau_0^{-1}]^{-1}$ и $\tau_b(B) = [\tau_{br}^{-1}(B) + \tau_0^{-1}]^{-1}$, где τ_0 – безызлучательное время жизни экситонов. При возбуждении кристалла неполяризованным светом с $h\nu_{exc} > E_g$ и в пренебрежении спиновой релаксацией экситонов интенсивности излучения экситонов из состояний a и b $I_i(B, t)$ ($i = a, b$) можно записать в виде

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

где величина I_0 пропорциональна скорости генерации экситонов и одинакова для всех i . Поскольку оптические переходы из состояний a и b спектрально не разрешаются, экспериментально наблюдается суммарное излучение

$$I_{\sigma^-}(B, t) = I_a(B, t) + I_b(B, t). \quad (4)$$

Расчетная зависимость $I_{\sigma^-}(B, t)$ в различные моменты времени t изображена на рис.2 сплошными линиями. (Для более корректного сравнения с экспериментальными данными на рис.2 приведено среднее значение величины $I_{\sigma^-}(B, t)$ за промежутки времени от t до $t + \Delta t$.) Теоретические кривые на рис.2 получены при значениях параметров $g_{zz} = 3.4$ [4], $\tau_r = 1.25 \cdot 10^{-7}$ с, $\tau_0 = 7 \cdot 10^{-6}$ с, $\Delta' = \Delta + V_{22} - V_{33} = 0.0357$ мэВ, $2|V_{23}| = 0.0045$ мэВ, где $V_{ik} = \langle \Psi_i | V | \Psi_k \rangle$ ($i, k = 2, 3$). Величина $2|V_{23}|$ равна минимальному расщеплению уровней a и b (при $B = B'_c \equiv 2\Delta'/g_{zz}\mu_0$) (рис.3). Полученные

таким образом величины τ_r и τ_0 дают возможность определить времена жизни связанных экситонов в исходных состояниях 2 и 3: $\tau_2 = 1.22 \cdot 10^{-7}$ с, $\tau_3 = \tau_0 = 7 \cdot 10^{-6}$ с.

Причины наблюдаемой временной эволюции сигнала антипересечения уровней удобно рассмотреть, анализируя поведение отдельных компонент излучения $I_a(B, t)$ и $I_b(B, t)$. Согласно расчетам, при малых t интенсивность излучения экситонов из состояния a $I_a(B, t)$ по мере увеличения B вначале достигает максимума в окрестности $B \approx B'_c$, а затем, при дальнейшем увеличении B , падает. Поведение компоненты излучения $I_b(B, t)$ в поле аналогично, но максимум достигается при несколько ином значении поля, чем в случае $I_a(B, t)$. В результате, при не слишком больших t в суммарной интенсивности излучения $I_{\sigma^-}(B, t)$ наблюдается максимум при $B = B'_c$ (рис.2). (Именно излучение экситонов в этом временном промежутке определяет в основных чертах форму сигнала антипересечения уровней триплетных экситонов в условиях непрерывного возбуждения.) При увеличении времени задержки t положение максимума функции $I_a(B, t)$ смещается в сторону больших магнитных полей, в то время как максимум функции $I_b(B, t)$ смещается в противоположную сторону. Это приводит, начиная с определенных B , к появлению в зависимости $I_{\sigma^-}(B, t)$ двух максимумов, разделенных минимумом при $B = B'_c$, относительная глубина которого возрастает с увеличением t . (Фактически наличие минимума связано с тем, что суммарное время жизни экситонов в состояниях a и b $\tau_a(B) + \tau_b(B)$ при $B = B'_c$ достигает своего минимального значения, поэтому в этой области полей при достаточно больших t оба состояния оказываются опустошенными.) Подчеркнем, что один из максимумов в $I_{\sigma^-}(B, t)$ отвечает вкладу в излучение, главным образом, состояния a , а другой соответствует излучению из состояния b . Таким образом, исследование эффекта антипересечения уровней в различные моменты жизни возбужденных состояний позволяет выделить вклад в излучение каждого из состояний, хотя излучательные переходы из состояний a и b спектрально не разрешаются. Анализ эффекта дает также возможность получить данные о временах жизни каждого из исследованных состояний. Заметим, что наблюдаемый эффект должен иметь достаточно общий характер и присутствовать в различных атомных системах.

-
1. T.G.Eck, L.L.Foldy, and H.Wieder, Phys. Rev. Lett. 10, 239 (1963).
 2. Е.Б.Александров, Г.И.Хвостенко, М.П.Чайка, *Интерференция атомных состояний*, М.: "Наука", 1991.
 3. П.Г.Баранов, И.В.Машков, Н.Г.Романов и др., Письма в ЖЭТФ 60, 429 (1994).
 4. Е.М.Гамарц, Е.Л.Ивченко, Г.Е.Пикус и др., ФТТ 24, 2325 (1982).
 5. В.С.Cavenett, P.Dawson, and K.Morigaki, J. Phys. C12, L197 (1979).
 6. E.Mooser and M.Schlüter, Nuovo Cim. 18B, 164 (1973).
 7. Е.Л.Ивченко, Г.Е.Пикус, В.С.Разбирин, А.Н.Старухин, ЖЭТФ 72, 2230 (1977).