

КИНЕТИКА НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ МИКРОФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ЭКСИТОННО-ПРИМЕСНЫХ КОМПЛЕКСОВ В МОНОКРИСТАЛЛАХ CdZnTe

А. А. Пручкина, С. И. Ченцов, В. С. Кривобок, С. Н. Николаев,
Е. Е. Онищенко, В. С. Багаев, М. Л. Скориков

В условиях нерезонансного и резонансного возбуждения наносекундными импульсами исследована низкотемпературная (6.5 K) микрофотолюминесценция вблизи края собственного поглощения монокристаллов твердых растворов CdZnTe. Определены характерные времена релаксации для свободных экситонов и экситонно-примесных комплексов различного типа. Обнаружено значительное (в 4–8 раз) уменьшение времени затухания сигнала фотолюминесценции экситонно-примесных комплексов на нейтральных донорах при переходе к режиму резонансного возбуждения. Обнаруженное резкое уменьшение времени затухания сигнала фотолюминесценции может свидетельствовать о проявлении коллективных эффектов в данной системе излучателей.

Ключевые слова: экситоны, экситонно-примесные комплексы, CdZnTe, сверхизлучение.

В работе [1] было показано, что ансамбль атомов при определенных условиях резонансного возбуждения может генерировать короткий импульс сверхизлучения, длительность которого определяется количеством атомов в ансамбле. Позднее эта идея была реализована для центров окраски в алмазе [2] и ансамблей квантовых точек в мезоструктурах [3]. По аналогии с эффектом Дике для атомных систем, малые ансамбли квантовых точек (или центров окраски), размер которых сопоставим с длиной волны их излучения, демонстрировали увеличение скорости излучательной рекомбина-

ции в условиях резонансного возбуждения. Обнаруженное увеличение скорости излучательной рекомбинации качественно объясняется фазировкой дипольного момента для нескольких квантовых излучателей, близких по своим свойствам [3]. В данной работе на основе измерений кинетики микрофотолюминесценции нелегированных монокристаллов CdZnTe проведен поиск сверхизлучающих состояний для квазиатомных объектов другого типа – экситонно-примесных комплексов (ЭПК).

В достаточно качественных полупроводниках ЭПК на дефектах заданного типа формируют ансамбль точечных излучателей с близкими свойствами. Кинетику рекомбинационного излучения такого ансамбля можно исследовать в экспериментах по измерению сигнала фотолюминесценции (ФЛ) с временным разрешением. Резонансное возбуждение основного состояния ЭПК, при условии, что излучательное время сопоставимо или меньше времени “сбоя фазы” волновой функции для одиночного излучателя, позволяет создать “сфазированный” ансамбль. Такой ансамбль, согласно теории Дике, может генерировать импульс сверхизлучения. При нерезонансном возбуждении полупроводника ЭПК также формируются, но фазировка между различными излучателями отсутствует. В этом случае импульс сверхизлучения формироваться не может, а кинетика ФЛ определяется индивидуальными свойствами изолированного излучателя.

Таким образом, для поиска эффектов сверхизлучения нами было использовано сопоставление затухания сигнала ФЛ для ансамбля ЭПК заданного типа в условиях его резонансного и нерезонансного возбуждения. В качестве основного объекта исследований мы выбрали нелегированный кристалл твердого раствора CdZnTe с содержанием цинка 5%. Данный твердый раствор, близкий по своим свойствам к CdTe, выбирался ввиду особенностей ЭПК, которые будут описаны далее. Для выделения ансамблей ЭПК, размер которых сопоставим с длиной волны излучения, мы использовали конфокальную схему измерений микрофотолюминесценции при гелиевых температурах (6.5 К). Размер пятна возбуждения и размер анализируемой области составляли ~ 2 мкм. В качестве источника возбуждения применялся перестраиваемый Ti-Sp лазер с длительностью импульса 2 пс и частотой повторения 12 нс. Разрешенный по времени сигнал ФЛ анализировался решеточным спектрографом, оснащенный стрик-камерой. Временное окно стрик-камеры 5 пс, типичное время накопления спектров – 1 мин.

Рисунок 1 показывает временную эволюцию спектров ФЛ при температуре 6.5 К. В спектрах регистрируется излучение вблизи дна экситонной зоны, представленное верхней (UP) и нижней (LP) экситон-поляритонными ветвями, ФЛ экситонов, связанных на нейтральных водородоподобных донорах (D^0X , D^0X^*), нейтральных акцепторах

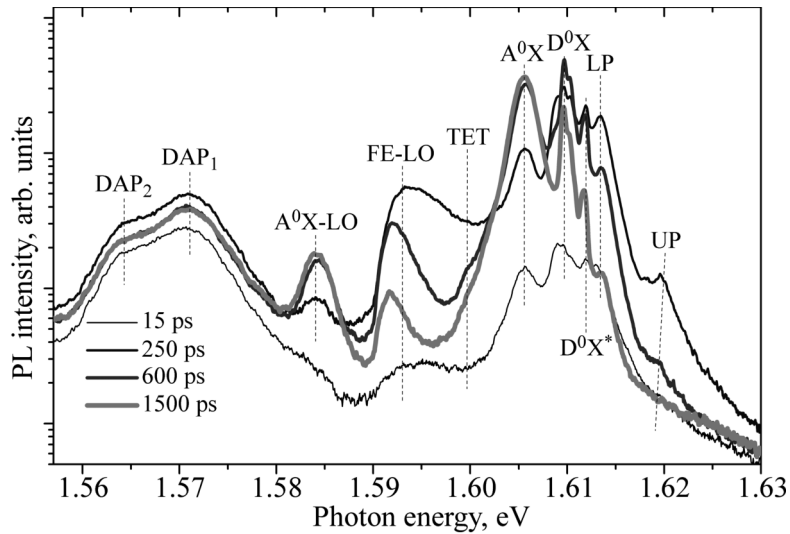


Рис. 1: Временная эволюция спектров ФЛ CdZnTe в условиях нерезонансного возбуждения излучением с длиной волны 720 нм (~ 1.722 эВ).

(A^0X), а также излучение донорно-акцепторных пар (DAP) (как было показано ранее, DAP₁ обусловлено акцептором Na_{Cd}, а DAP₂ – P_{Te} [4, 5]). Для линии A^0X и экситон-поляритонного излучения наблюдаются фоновые повторения с участием продольных оптических (LO) фононов. Для ЭПК на нейтральных донорах ФЛ регистрируется как из основного состояния (D^0X), так и из возбужденных (D^0X^*). В последнем случае сигнал ФЛ накладывается на излучение из состояний нижней поляритонной ветви. Как видно из рис. 1, ширина линии D^0X заметно меньше, чем ширина линии A^0X . Данное свойство, характерное для твердых растворов CdZnTe с низким содержанием Zn, вызвано разным влиянием флуктуаций состава на электронные и дырочные состояния. С точки зрения поиска сверхизлучения наличие узкой и широкой линий ЭПК удобно для выбора ансамбля излучателей. Выбор осуществляется с помощью перестраиваемого источника резонансного возбуждения с относительно узким спектром.

Достаточно сложная трансформация формы линии для фоновых повторений FE-LO определяется релаксацией экситонных поляритонов по мере увеличения времени задержки от импульса возбуждения. На временах задержки порядка нескольких сотен пикосекунд ширина распределения экситонных поляритонов по энергии и, следовательно, ширина линии FE-LO, достаточно велика, см. рис. 1. При этом вблизи дна экситонной зоны регистрируется излучение из состояний верхней поляритонной ветви. По мере релаксации поляритонов ширина распределения сужается, что сопровожда-

ется исчезновением излучения из состояний верхней ветви. По-видимому, релаксация поляритонов в условиях нерезонансного возбуждения определяет кинетику возгорания сигнала ФЛ для ЭПК. Отметим, что линия излучения DAP не претерпевает значительных изменений на временах порядка 0–12 нс. Это означает, что в условиях эксперимента значительной перезарядки доноров и акцепторов не происходит. Таким образом, изменение заряда примесей не должно существенно сказываться на кинетике ФЛ, соответствующей наносекундным и субнаносекундным временам.

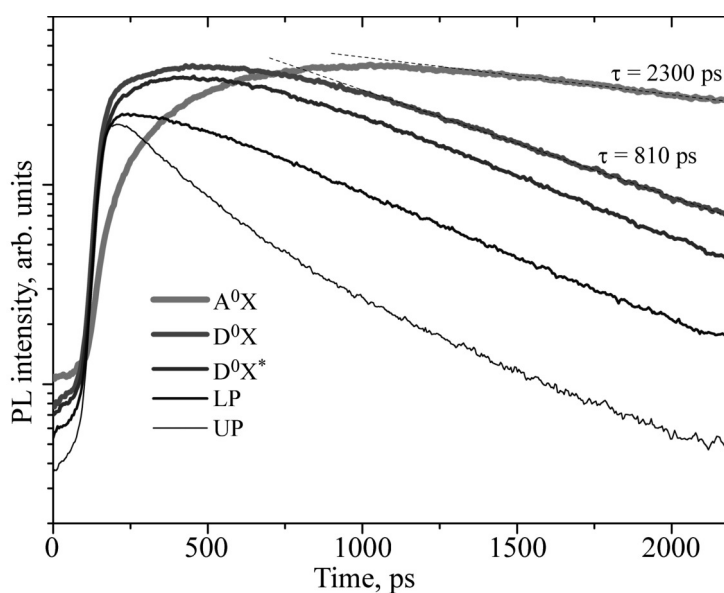


Рис. 2: Кинетика сигнала ФЛ для различных пиков вблизи дна экситонной зоны на рис. 1.

Спады сигнала ФЛ, соответствующего различным пикам в спектрах на рис. 1, приведены на рис. 2. Как отмечалось выше, возгорание каждой из линий определяется или, по крайней мере, значительно зависит от скорости релаксации экситонных поляритонов. Тем не менее, при временах задержки порядка 1 нс и более данные эффекты становятся несущественными. Это позволяет измерить времена затухания сигнала ФЛ для ЭПК, соответствующих линиям D^0X и A^0X . Как видно из представленных на рис. 2 аппроксимационных кривых, время τ затухания сигнала ФЛ составляет ~ 2.3 нс для линии A^0X и ~ 0.8 нс для линии D^0X . Ввиду второстепенной роли процессов перезарядки дефектов и релаксационных процессов полученные величины отражают времена жизни соответствующих ЭПК в условиях нерезонансного возбуждения. Отметим, что в пределах одной и той же линии заметных изменений скорости затухания не наблюдается.

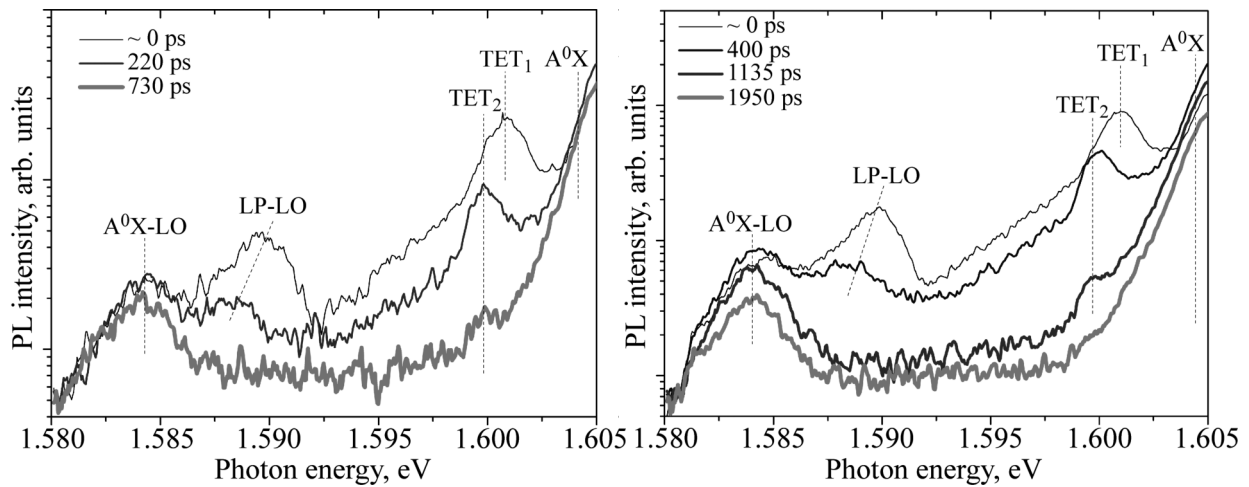


Рис. 3: Временная эволюция спектров ФЛ в условиях резонансного возбуждения излучением с длиной волны 768 нм (~ 1.6139 эВ). Средняя мощность возбуждения – 2.5 мВт (слева) и 10 мВт (справа).

При резонансном возбуждении спад сигнала ФЛ содержит артефакты, связанные с засветкой от упругорассеянного импульса возбуждения. Поэтому для анализа спада сигнала ФЛ линии D^0X мы использовали ее коротковолновый спутник, возникающий за счет двухэлектронных (ТЕТ) переходов, см. рис. 3. Данный переход соответствует процессу, при котором после рекомбинации экситона электрон, связанный на доноре, переходит в возбужденное ($2S$) состояние. Интенсивность ТЕТ линии пропорциональна заселенности соответствующих экситонных состояний и, таким образом, позволяет проследить рекомбинационную динамику ЭПК на нейтральном доноре. Недостатком такого подхода является необходимость устранения вклада от коротковолнового крыла более интенсивной линии A^0X . Данную проблему удастся решить с помощью цифровой обработки спектрально-временной карты ФЛ (записываемой стрик-камерой). Для анализа затухания ЭПК на нейтральном акцепторе мы использовали фоновое ЛО повторение линии A^0X , на которое не влияет ни упругорассеянное лазерное излучение, ни какие-либо дополнительные механизмы излучательной рекомбинации. Отметим, что в условиях нерезонансного возбуждения спады сигнала ФЛ для линий A^0X и A^0X-LO демонстрировали одинаковую динамику.

Рисунок 4 иллюстрирует динамику, соответствующую двум разным областям ТЕТ перехода, в условиях резонансного возбуждения линии D^0X . На рис. 4 приведены спады сигнала, из которых устранен вклад линии A^0X . Отметим, что этот вклад достаточно мал и слабо влияет на профиль представленных кривых. Полученные данные указы-

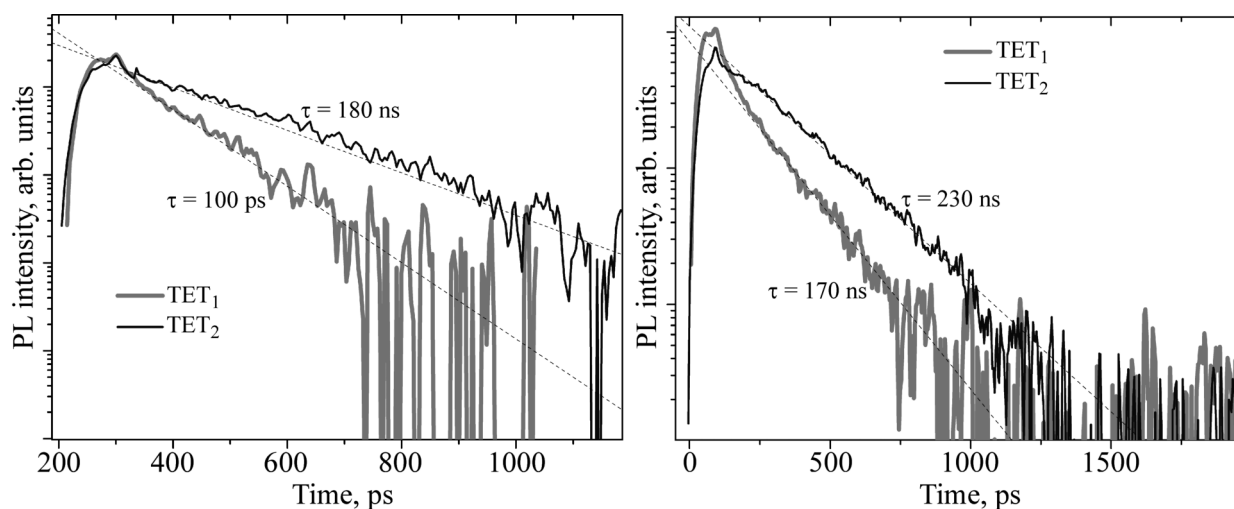


Рис. 4: Динамика сигнала ФЛ для двух областей ТЕТ линии (1.601 эВ – ТЕТ₁, 1.600 эВ – ТЕТ₂), соответствующих двум пунктирным линиям на рис. 3, в условиях резонансного возбуждения. Средняя мощность возбуждения – 2.5 мВт (слева) и 10 мВт (справа).

вают на то, что в условиях резонансного возбуждения со средней мощностью 2.5 мВт характерное время затухания сигнала ФЛ зависит от анализируемого спектрального диапазона в пределах линии D⁰X и составляет 100–180 пс. Таким образом, переход к резонансному возбуждению сопровождается не только уменьшением характерного времени затухания сигнала ФЛ в 4.4–8 раз, но и приводит к значительной зависимости времени спада от точного спектрального положения анализируемой области. Кроме того, в условиях резонансного возбуждения время жизни ЭПК на нейтральном доноре зависит от энергии возбуждающих импульсов. В частности, как видно из рис. 4, увеличение энергии возбуждающих импульсов в 4 раза приводит к увеличению времени жизни в 1.3–1.7 раз.

При описанных выше условиях резонансного возбуждения (линии D⁰X) наблюдается незначительное (до ~1.7 нс) уменьшение времени жизни ЭПК на нейтральных акцепторах. Полученное время жизни не зависит ни от точного спектрального положения в пределах линии A⁰X, ни от плотности оптического возбуждения. Мы связываем данное изменение времени жизни с влиянием приповерхностного поля, величина которого может меняться для разных условий оптического возбуждения.

Совокупность полученных экспериментальных данных, касающихся резонансного возбуждения линии D⁰X, можно интерпретировать в рамках представлений о коллек-

тивных эффектах в спонтанном излучении (эффект Дике). На это указывает не только резкое уменьшение характерного времени жизни ЭПК в условиях резонансного возбуждения, но и непостоянство τ внутри неоднородной ширины линии. Очевидно, что из-за неоднородного уширения разным спектральным областям линии D^0X соответствуют ансамбли излучателей разного размера. Изменение количества излучателей никак не сказывается на кинетике их излучения при нерезонансном возбуждении. В то же время, при наличии коллективных эффектов более быстрый спад ожидается для ансамбля с большим количеством излучателей, что и объясняет обнаруженную неоднородность τ внутри линии. По этой же причине косвенным подтверждением коллективного излучения ЭПК является и зависимость времени спада от энергии возбуждающих импульсов. При увеличении энергии возбуждающих импульсов будет меняться (осциллировать на частоте Раби) населенность возбужденного уровня, соответствующего ЭПК. В рамках идеологии Дике соответствующий разворот на сфере Блоха [6] должен неизбежно приводить к формированию разных стадий сферхизлучающего ансамбля и, следовательно, изменению темпа излучательной рекомбинации.

Отметим, что для установления однозначной связи обнаруженного увеличения скорости рекомбинации с формированием сверхизлучающих состояний необходим последовательный теоретический анализ поведения малых ансамблей ЭПК в условиях резонансного возбуждения. В сочетании с представленными экспериментальными данными подобный анализ представляет интерес для развития бесконтактных методов измерения локальной концентрации примесей в полупроводниках с прямым краем собственного поглощения.

Таким образом, измерены времена жизни свободных экситонов и ЭПК в твердом растворе $CdZnTe$ при различных условиях импульсного возбуждения. Обнаружено, что в условиях резонансного возбуждения ЭПК на нейтральных донорах демонстрируют признаки коллективных эффектов в спонтанном излучении. Полученные предварительные результаты указывают на качественное сходство между возможным коллективным излучением ЭПК и сверхизлучением ансамбля квантовых точек [3].

Работа выполнена при поддержке гранта № 17-72-10265 Российского научного фонда.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] R. Dicke, H. Robert, Phys. Rev. **93**, 99 (1954).

- [2] A. Sipahigil, R. E. Evans, D. D. Sukachev, et al., *Science* **354**, 847 (2016).
- [3] M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, et al., *Nature Physics* **3**, 106 (2007).
- [4] В. С. Кривобок, И. А. Денисов, Е. Н. Можевитина и др., *ФТТ* **58**, 950 (2016).
- [5] V. S. Krivobok, S. N. Nikolaev, V. S. Bagaev, et al., *Journal of Applied Physics* **119**, 055704 (2016).
- [6] M. G. Benedict, *Super-Radiance: Multiatomic Coherent Emission* (Inst. of Physics Publ., Bristol, 1996).

Поступила в редакцию 23 марта 2018 г.