

ВЛИЯНИЕ ФЛУКТУАЦИЙ СОСТАВА НА СПЕКТРЫ ОТРАЖЕНИЯ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ ТВЕРДЫХ РАСТВОРОВ $Zn_xCd_{1-x}Se$

Ю.В. Коростелин, П.В. Шапкин, Л.Г. Суслина^{*}, А.Г. Арешкин^{*}, Л.С. Марков^{*}, Д.Л. Федоров^{**}

Проведено исследование низкотемпературных спектров отражения и люминесценции кристаллов $Zn_xCd_{1-x}Se$ при $0,8 < x < 1,0$ в области края поглощения. Обнаружены особенности этих спектров, связанные с воздействием крупномасштабных флуктуаций состава на экситонные состояния.

Твердые растворы относятся к слабо неупорядоченным системам, в которых беспорядок связан со случайным распределением замещаемых атомов по узлам соответствующей подрешетки. Взаимодействие электронных (экситонных) возбуждений с крупномасштабными флуктуациями состава приводит к процессам их локализации с образованием хвоста плотности локализованных экситонных состояний (ЛЭС) в запрещенной зоне, а также к рассеянию делокализованных экситонных состояний (ДЭС) /1, 2/.

Роль крупномасштабных флуктуаций потенциала в твердых растворах прослеживается при изучении их спектров отражения, поглощения и люминесценции при низких температурах. Флуктуационный беспорядок вызывает зависящее от концентрации уширение экситонных спектров отражения и линий излучения экситонных комплексов, а также появление нового канала излучения ЛЭС /3-6/.

В настоящей работе проведено исследование низкотемпературных спектров отражения и люминесценции системы $Zn_xCd_{1-x}Se$ при $0,8 < x < 1,0$ в области края поглощения, что позволило обнаружить специфические особенности этих спектров, связанные с проявлением крупномасштабных флуктуаций потенциала. Эти исследования представляют интерес в связи с перспективностью использования кристаллов $Zn_xCd_{1-x}Se$ в лазерных электронно-лучевых приборах (ЛЭЛП) различного назначения, в частности, в цветных лазерных телепроекторах /7/.

Кристаллы с указанным составом обладали кубической структурой сфалерита, что установлено рентгенографическими исследованиями и изучением их спектров экситонного отражения при низких температурах /8/. Монокристаллические образцы $Zn_xCd_{1-x}Se$ диаметром 50 мм и высотой до 20 мм получены из паровой фазы методом свободного роста /7/.

Исследования спектров экситонного отражения проводились при низких температурах (77 и 2 К) при почти нормальном падении света на плоскости скола [110]. В спектрах отражения на краю основного поглощения обнаружена узкая неполяризованная линия отражения, обладающая дисперсионной структурой и соответствующая основному экситонному переходу $\Gamma_8 - \Gamma_6$ кристаллов сфалерита. Для кристаллов различного состава расстояние между максимумом и минимумом дисперсионной структуры отражения растет с увеличением концентрации $(1-x)$ твердого раствора, что связано с ростом степени его флуктуационного беспорядка /1 - 3/.

Интерпретация концентрационной зависимости уширения спектров экситонного отражения твердого раствора $Zn_xCd_{1-x}Se$ проводилась на основании теоретических расчетов Эфроса с сотрудниками /1, 2/, в которых учитывалось размытие края экситонной зоны за счет процессов локализации экситонов крупномасштабным случайным потенциалом и их рассеяния на флуктуациях этого потенциала. Уширение Δ_0 экситонной линии поглощения в спектре твердого раствора в случае, когда экситон локализуется как целое флуктуационным потенциалом, описывается зависимостью /2/

$$\Delta_0 = 0,08 \left(\frac{d\epsilon_A}{dx} \right)^4 \frac{M^3 x^2 (1-x)^2}{N^2 \hbar^6}, \quad (1)$$

^{*} ФТИ АН СССР, Ленинград.

^{**} ЛМИ, Ленинград.

где $d\epsilon_A/dx$ — "скорость" изменения положения экситонной линии с составом; $M = m_e + m_h$ — трансляционная масса экситона; N — число узлов решетки, в которых происходит замещение. При расчете использовались данные для $M = 0,7m_0$ /10/, N определялось из данных для постоянной решетки ZnSe-zB и CdSe-zB с учетом ее линейной зависимости от x , величина $d\epsilon_A/dx$ получена из /8/. В качестве уширения Δ_0 экситонной линии отражения брались расстояние между максимумом и минимумом дисперсионной кривой отражения за вычетом величины продольно-поперечного расщепления Δ_{LT} , которое для ZnSe и CdSe близко ($\Delta_{LT} \sim 1,3$ мэВ /9/).

Сопоставление теоретической кривой (сплошная кривая на рис. 1) с экспериментальными данными (точки) показывает, что теоретическая зависимость (1) может описать эксперимент лишь при значениях x в области $0,9 < x < 1,0$; для составов $0,8 < x < 0,9$ теоретическая кривая лежит выше экспериментальных значений. Оценка линейного размера R_Δ оптимальной флуктуации, локализующей экситон как целое /1, 2/,

$$R_\Delta = \hbar/\sqrt{2M\Delta_0}, \quad (2)$$

показывает, что $R_\Delta \geq a_B$ (боровский радиус экситона в ZnSe $a_B = 43 \text{ \AA}$ /9/) выполняется при значениях $\Delta_0 \leq 3$ мэВ, т.е. для x в области $0,9 \div 1,0$ (рис. 1). При $x < 0,9$ для описания экспериментальных данных необходимо учитывать предельные случаи теории /2/. Так, судя по нашим оценкам, для системы $Zn_xCd_{1-x}Se$ с катионным замещением, у которой с изменением состава ширина запрещенной зоны меняется преимущественно за счет зоны проводимости /10/ и флуктуации состава влияют в основном на электронную составляющую экситона, следует применять модель "донорного атома" /2/.

Рис. 1. Концентрационная зависимость уширения линии экситонного отражения в спектрах твердых растворов $Zn_xCd_{1-x}Se$ при $T = 2$ К.

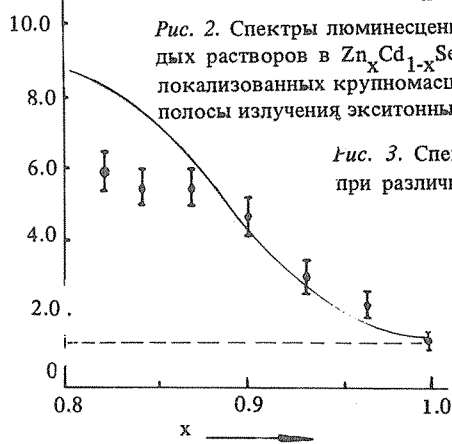


Рис. 2. Спектры люминесценции (сплошные линии) и отражения (пунктир) твердых растворов в $Zn_xCd_{1-x}Se$ для $0,8 < x < 1,0$ и $T = 2$ К. I_L — линия излучения локализованных крупномасштабными флуктуациями состава экситонов, $I_{1,2}$ — полосы излучения экситонных комплексов.

Рис. 3. Спектры излучения кристаллов в $Zn_{0,84}Cd_{0,16}Se$ при различных температурах.

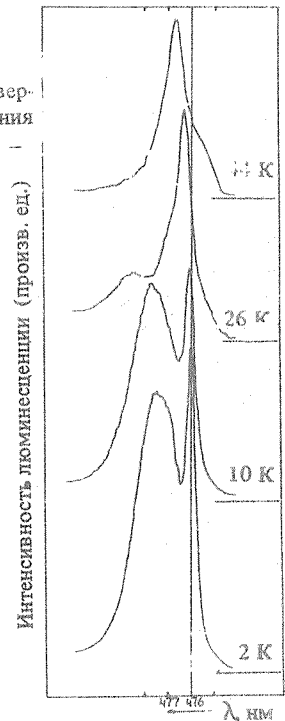


Рис. 3

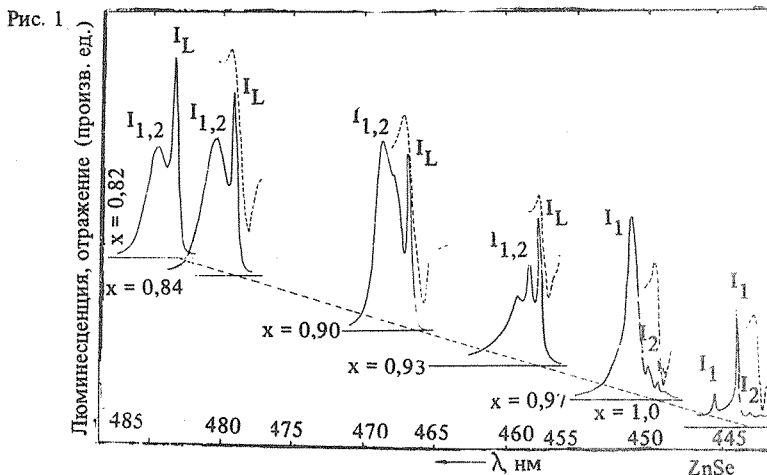


Рис. 2

Для обнаружения особенностей спектров излучения твердых растворов, связанных с флуктуационной неупорядоченностью их решетки, необходимо проследить за эволюцией спектров по мере изменения концентрации x раствора, начиная со спектров крайних бинарных соединений. В спектрах излучения кристаллов ZnSe наиболее интенсивными являются линии люминесценции экситонных комплексов (экситонов, связанных на нейтральных акцепторах и донорах) I_1 , I_1^* , I_2 и их фононные повторения. Число этих линий и их интенсивность могут изменяться от образца к образцу, так как соответствующие примеси — доноры и акцепторы — являются неконтролируемыми [9]. Собственная экситонная люминесценция ZnSe при низких температурах (2 К) в исследованных нами кристаллах оказалась очень слабой, а соответствующая узкая линия излучения находится в области дисперсионной кривой отражения (рис. 2).

Линии излучения экситонных комплексов в спектрах твердых растворов $Zn_xCd_{1-x}Se$ обнаруживают концентрационно-зависимое неоднородное уширение [11] и при концентрациях $x = 0,84$ и $0,82$ образуют одну широкую полосу излучения, которая в действительности является суперпозицией двух кривых с расстоянием между ними $\sim 5 \text{ \AA}$. Для разных кристаллов с единым x соотношение интенсивностей этих кривых может меняться, что приводит к существенному изменению ее положения и формы (рис. 2).

В спектрах излучения кристаллов $Zn_xCd_{1-x}Se$ при $T = 2 \text{ К}$ удалось обнаружить узкую наиболее коротковолновую линию излучения I_L , которая интерпретируется нами как линия люминесценции ЛЭС и обладает следующими особенностями.

1. Линия I_L обнаруживает плавный рост интенсивности с увеличением степени неупорядоченности (т.е. с изменением x). Если для $x = 0,97$ ее интенсивность мала, то для $x = 0,9$ она превышает интенсивность полосы излучения экситонных комплексов (рис. 2). Этот эффект связан с увеличением плотности ЛЭС с $x/1,2$.

2. По своему положению линия I_L находится в области дисперсионной структуры линии отражения (ее максимум совпадает с максимумом структуры отражения — рис. 2), что свидетельствует о ее экситонной природе.

3. Линия I_L обнаруживает быстрое уширение с ростом температуры кристалла. Так, для кристаллов с $x = 0,84$ в температурном интервале $2 \div 40 \text{ К}$ она уширяется (начиная с 2 мэВ) более чем в 2 раза (рис. 3), так что ее полуширина становится близкой к полуширине линии отражения (6 мэВ). С ростом температуры кристалла, начиная с 2 К, имеют место процессы делокализации экситонных возбуждений с включением в излучательный процесс более высокоэнергетических экситонных состояний, что сопровождается постепенным уширением линии I_L . При более высоких температурах, когда $kT > E_0$ (E_0 — характерная энергия, описывающая спад функции плотности ЛЭС [2]), излучательные процессы протекают с участием делокализованных экситонных состояний. Так, при температурах выше 40 К после завершения диссоциации экситонных комплексов линия излучения делокализованных экситонов полностью доминирует в спектре излучения (рис. 3).

В заключение отметим, что обнаруженные особенности спектра излучения кристаллов в $Zn_xCd_{1-x}Se$ имеют ту же специфику, что и наблюдавшиеся ранее для $Zn_xCd_{1-x}S$ [4 — 6], что указывает на их общий характер.

Авторы благодарны А.С. Насибову и В.И. Козловскому за обсуждение результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Барановский С. Д., Эфрос А. Л. ФТП, 12, 2233 (1978).
2. Аблязов Н. Н., Райх М. Э., Эфрос А. Л. ФТТ, 25, 353 (1983).
3. Суслина Л. Г. и др. ФТП, 12, 2238 (1978).
4. Арешкин А. Г., Суслина Л. Г., Федоров Д. Л. Письма в ЖЭТФ, 35, 427 (1982).
5. Суслина Л. Г. и др. ФТТ, 25, 3215 (1983).
6. Суслина Л. Г. и др. Письма в ЖЭТФ, 39, 48 (1984).
7. Ахекян А. М. и др. Квантовая электроника, 12, 1113 (1985).
8. Арешкин А. Г. и др. ФТТ, 28, 3743 (1986).
9. Röppischer H., Jacobs J. J., Novikov B. V. Phys. Stat. Sol., (a), 27, 123 (1975).
10. Ablyasov N. N. et al. Phys. Stat. Sol., (b), 134, 157 (1986).
11. Suslina L. G. et al. Phys. Stat. Sol. (b), 94, 185 (1979).

Поступила в редакцию 29 декабря 1987 г.