

ИЗУЧЕНИЕ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНЫХ КАПЕЛЬ И ПЛАЗМЫ В СМЕШАННЫХ КРИСТАЛЛАХ $CdS_{1-x}Se_x$

*М.С.Бродин, Н.В.Воловик, В.Я.Резниченко,
М.И.Страшникова*

На системе смешанных кристаллов $CdS_{1-x}Se_x$ при высоких уровнях возбуждения впервые обнаружено свечение, которое в зависимости от состава кристалла приписывается рекомбинационному излучению электронно-дырочных капель или плазмы. Установлены концентрационные пределы образования капель в ряду этих кристаллов.

В последнее время в литературе широко обсуждается вопрос о возможности конденсации экситонов в металлические электронно-дырочные капли (ЭДК) в прямозонных полупроводниках, в частности, в кристаллах CdS и CdSe. Теоретически такая возможность была предсказана в работе Келдыша и Силина [1], где было показано, что в полярных кристаллах при высоких концентрациях электронно-дырочных пар средняя энергия на пару частиц при учете взаимодействия с LO-фононами оказывается ниже экситонного уровня и, следовательно, становится энергетически выгодным образование жидкой фазы. Прямые расчеты энергии конденсации с учетом этого обстоятельства, выполненные затем в [2], предсказывают соответственно значения: 13 мэВ для кристалла CdS и 0 мэВ — для CdSe.

Экспериментально вопрос о природе свечения при высоких уровнях возбуждения исследовался многими авторами. Впервые капельная интерпретация рекомбинационного излучения в кристалле CdS была высказана в [3]. Авторы приписали излучению капель так называемую P-полосу, которая ранее интерпретировалась, как результат оже-процесса при экситон-экситонных соударениях [4]. В дальнейшем эта точка зрения была подтверждена в [5, 6] по изучению осцилляций интенсивности в магнитном поле и оптической ориентации носителей. В [7, 8] на основании изучения спектральной зависимости коэффициента усиления при высоких уровнях возбуждения было высказано мнение, что капли электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) действительно образуются в кристалле CdS, а также CdSe.

Однако, в наших предыдущих работах [9, 10] было показано, что в кристалле CdSe конденсация в капли не происходит, а при высоких уровнях возбуждения из-за экранирования кулоновского взаимодействия образуется вырожденная несконденсировавшаяся электронно-дырочная плазма (ЭДП). В недавно вышедшей работе [11], где исследовались кристаллы CdS и CdSe высказано мнение, что в обоих случаях при больших интенсивностях возбуждения образуется ЭДП, интерпретация же [3] подвергается там сомнению. Таким образом, в опубликованных до настоящего времени работах нет единого мнения о природе свечения при больших уровнях возбуждения в кристаллах CdS и CdSe.

В связи с этим в настоящей работе проведено комплексное исследование особенностей рекомбинационного излучения кристаллов CdS, CdSe и смешанных кристаллов $CdS_{1-x}Se_x$ с целью изучения коллективных эффектов при высоких концентрациях экситонов и выявления характера изменения этих эффектов при плавном переходе от CdS через $CdS_{1-x}Se_x$ к CdSe. Показано, что в чистом кристалле CdSe и смешанных кристаллах $CdS_{1-x}Se_x$ при изменении x от 0,6 до единицы наблюдаются такие свойства свечения, которые можно приписать образованию несконденсировавшейся ЭДП. В то же время в кристалле CdS и смешанных кристаллах с $x < 0,6$ при низких температурах свечение можно приписать образованию сконденсировавшейся в капли ЭДЖ.

Эксперимент. Использовалось объемное двухфотонное возбуждение кристаллов светом рубинового (для CdS) и неодимового (для $CdS_{1-x}Se_x$, CdSe), работавших в режиме модулированной добротности с генерацией

одной поперечной моды низшего порядка. Мощность падающего на кристалл сфокусированного пучка достигала 170 МВт/см^2 для неодимового и 100 МВт/см^2 — для рубинового лазеров. Исследовались плоскопараллельные монокристаллы, выращенные из расплава, с оптической осью, параллельной поверхности, различного процентного состава. При исследовании смешанных кристаллов выбирались наиболее высококачественные, однородные по составу образцы, в спектре отражения которых наблюдались экситонные полосы. При $4,2\text{К}$ кристаллы были погружены в жидкий гелий, а при более высоких температурах находились в его парах. Регистрация излучения проводилась на спектрографе с дисперсией 4 \AA/мм фотографическим методом. Излучение кристаллов было резко поляризовано $\perp C$.

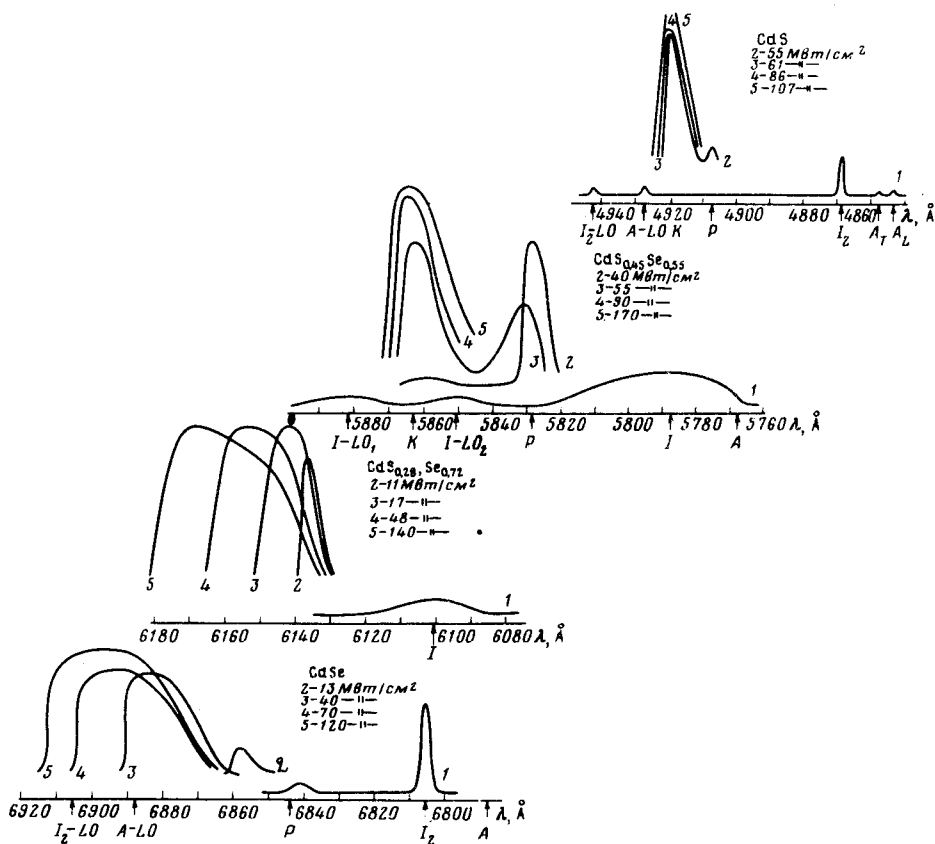


Рис. 1. Спектры рекомбинационного свечения кристаллов $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ при возбуждении ртутной лампой (кривые 1) и лазерном возбуждении (кривые 2 — 5). На шкале абсцисс стрелками указаны положение А-экситона, измененного по спектрам отражения, I-линии связанных экситонов

На рис. 1 представлены результаты, полученные на четырех образцах разного состава при $4,2\text{К}$. Кривые 1 в каждом случае обозначают спонтанный спектр люминесценции при возбуждении светом ртутной лампы. Кривые 2 — 5 получены при возбуждении лазерным пучком различ-

ной указанной на рисунке интенсивности. Во всех рассмотренных случаях при лазерном возбуждении свечение наблюдалось, начиная с некоторой пороговой мощности накачки (кривые 2), и имело характерную модовую структуру (сглаженную на рисунке), что свидетельствовало о стимулированном характере процесса.

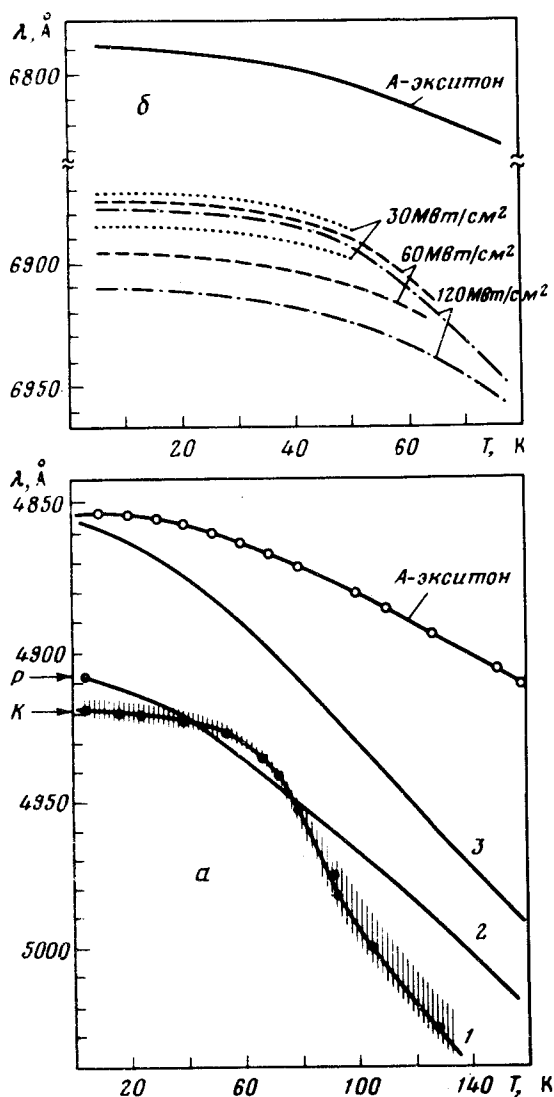


Рис. 2. Температурная зависимость полос рекомбинационного свечения в кристаллах: *a* – CdS, 1 – заштрихованная часть соответствует ширине К-полосы, измеренной на уровне 0,1 от максимальной интенсивности, 2 – рассчитанное положение P-линии [12], 3 – рассчитанное положение линии, соответствующей экситон-электронному взаимодействию. *б* – CdSe, приведено положение красной и фиолетовой границ рекомбинационного свечения для различных мощностей возбуждения. Границы полос даны по уровню 0,1 от максимальной интенсивности

Из приведенных кривых видно, что спектральное поведение излучения кристаллов CdSe и смешанных с $x > 0,6$ принципиально отличается от поведения кристаллов CdS и смешанных с $x < 0,6$. В первом случае при каждом уровне накачки наблюдается лишь одна полоса излучения, которая по мере роста интенсивности возбуждения уширяется и сдвигается в красную сторону (в основном за счет сдвига резкой "красной границы"). По своему спектральному положению свечение не совпадает ни с одним из экситонных каналов рекомбинации, и по совокупности

свойств, подробно проанализированных в [9, 10], его можно приписать излучению вырожденной ЭДП. Во втором случае при незначительном превышении мощности накачки над порогом одновременно сосуществуют два канала генерации. Одна из полос совпадает с предсказываемым спектральным положением P -полосы, другая попадает в область, где экситонные механизмы свечения отсутствуют, т. е. в "чистый" спектральный интервал (K -полоса). При увеличении мощности накачки происходит ослабление и полное исчезновение P -полосы, сопровождающееся значительным усилением K -полосы. Спектральное положение K -полосы не зависит от интенсивности, а ее красная граница совпадает с рассчитанной в [3] красной границей свечения ЭДЖ, т. е. соответствует измененной ширине запрещенной зоны кристалла CdS при концентрации электронно-дырочных пар $n_0 \approx 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. K -полоса имеет характерную форму с резким красным краем, тогда как у P -полосы — затянутый красный край. Вся совокупность приведенных данных дает возможность интерпретировать поведение кристалла CdS и смешанных кристаллов с $x < 0,6$ с точки зрения образования в них ЭДК и их стимулированного свечения. Наблюдавшееся одновременно с K -полосой свечение P -полосы при близких к пороговым накачкам свидетельствует о сосуществовании капельной (электронно-дырочной) и газовой (экситонной) фаз. Подтверждение такой интерпретации следует и из анализа температурной зависимости свечения, приведенной для CdS и $CdSe$ на рис. 2. В кристалле $CdSe$ при повышении температуры происходит сужение полосы ЭДП и "поджимание" ее к красной границе, положение которой в каждом случае определяется уровнем накачки. В [10] такое поведение было объяснено снятием вырождения ЭДП при высоких температурах. В Кристалле CdS при повышении температуры вплоть до $\sim 60\text{K}$ K -полоса излучения сдвигается в красную сторону параллельно смещению A -экситона, а затем — значительно быстрее. До $\sim 60\text{K}$ с ростом температуры наблюдается некоторое сужение полосы, а затем — значительное ее уширение. Эти данные свидетельствуют об изменении механизма свечения вблизи 60K , связанного, очевидно, с переходом через критическую температуру $T_{кр}$ для ЭДК в CdS . В [8] $T_{кр}$ оценивается примерно 55K , что очень близко к полученному нами значению. Выше $T_{кр}$ основным механизмом рекомбинации является, по-видимому, излучение при экситон-экситонном соударении [12], поскольку кривая 2 рис. 2 ближе к экспериментальным значениям, чем кривая 3, соответствующая процессам экситон-электронного взаимодействия.

Таким образом, выполненные на системе смешанных кристаллов $CdS_{1-x}Se_x$ исследования подтвердили предсказанный теоретически [2] вывод о возможности существования капель в CdS и невозможности их образования в $CdSe$. Установлены также концентрационные пределы образования капель в ряду этих кристаллов.

Поступила в редакцию
3 июля 1978 г.

Литература

- [1] Л.В.Келдыш, А.П.Силин. ЖЭТФ, **69**, 1053, 1975.
- [2] G.Veni, T.M.Rice. Phys. Rev. Lett., **37**, 874, 1976.
- [3] В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, Т.Г.Трагас, В.Б.Тимофеев. ЖЭТФ, **68**, 335, 1975.
- [4] G.Venoit a la Guillaume, J.Debever, F.Salvan. Phys. Rev. **177**, 567, 1969.
- [5] А.Ф.Дите, В.Б.Тимофеев. Письма в ЖЭТФ, **25**, 47, 1977.
- [6] С.И.Губарев, В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев. Письма в ЖЭТФ, **26**, 447, 1977.
- [7] R.F.Leheny, J.Shah. Phys. Rev. Lett., **38**, 511, 1977.
- [8] R.F.Leheny, J.Shah. Phys. Rev. Lett., **37**, 871, 1976.
- [9] М.С.Бродин, Н.В.Воловик, М.И.Страшникова. Письма в ЖЭТФ, **23**, 253, 1976.
- [10] Н.В.Воловик, М.И.Страшникова. ФТТ, **20**, 171, 1978.
- [11] H.Saito, M.Nayashi, S.Shionoya. Sol. St. Comm., **24**, 837, 1977.
- [12] G.A.Boiko, V.S.Dneprovskii, M.V.Kraevskii, K.Marinova, C.M.Oak, E.K.Silina, V.D.Fokin. Phys. St. Sol (b), **85**, 111, 1978.
-