

КОНДЕНСАЦИЯ НЕРАВНОВЕСНЫХ ЭЛЕКТРОН-ДЫРОЧНЫХ ПАР ВБЛИЗИ ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ В КРИСТАЛЛАХ СУЛЬФИДА КАДМИЯ

В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев

Показано, что при низких температурах неравновесные электрон-дырочные пары (e - h -пары) связываются с мелкими нейтральными примесными центрами, образуя многочастичные комплексы, которые служат зародышами конденсации в электрон-дырочную жидкость.

До настоящего времени остается до конца нерешенным вопрос о происхождении в спектрах излучения прямозонных полупроводников при низких температурах так называемых M -полос. Эти полосы расположены вблизи линий экситон-примесных комплексов (ЭПК), как правило со стороны меньших энергий, и появляются в спектрах при средних плотностях e - h -пар $\bar{n}_{e,h}$ порядка концентрации соответствующих дефектов n_d , с которыми связаны ЭПК. В работах [1] возникновение M -полос в кристаллах CdS, CdSe связывают с излучением биэкситона. Однако в [2, 3] имеются серьезные аргументы против биэкситонной интерпретации происхождения M -полос, в частности, показана их тесная связь с соответствующими примесными центрами в кристаллах CdS. Отметим, что предложенный в [2] механизм индуцированного излучательного распада ЭПК с испусканием акустического фонона объясняет нелинейные перестройки спектра в области $M(P_M)$ -полос только при средних концентрациях e - h -пар $\bar{n}_{e,h} \lesssim n_d$ (см. также [4]).

В настоящем сообщении мы попытаемся показать, что M -полоса в спектрах CdS возникает в результате связывания неравновесных e - h -пар с нейтральным донорным центром. Рождающийся вследствие такого связывания многочастичный экситон-примесный комплекс является зародышем конденсации неравновесных носителей и экситонов в электрон-дырочную жидкость (ЭДЖ) [5].

Исследовались спектры фотовозбуждения M -полосы в высокочистых кристаллах CdS, в которых содержание донорных примесей, ответственных за линии ЭПК I_2 , не превышали 10^{15} см^{-3} . Концентрация акцепторных примесей была на несколько порядков меньше, так что в спектрах отсутствовали заметные следы ЭПК I_1 . Спектры возбуждения снижались с помощью перестраиваемого по частоте лазера на красителе. Чтобы уменьшить процессы индуцированной излучательной рекомбинации при гелиевых температурах, излучение лазера фокусировалось на кристалле в пятно с размерами $10 \cdot 10 \text{ мкм}^2$. Это позволяло с помощью лазерной накачки возбуждать средние плотности неравновесных e - h -пар вплоть до 10^{18} см^{-3} .

На рис. 1 приведены спектры возбуждения M -полосы, измеренные на одном из исследованных образцов CdS при $T = 1,4 \text{ К}$. Эксперимент осуществлялся следующим образом. На кристалл посылался поляризованный свет $E \perp C$ от импульсного лазера на красителе (полуширина линии генерации 1 А), длительность одиночного импульса 8 нсек , частота их

следования 10^2 ит). С помощью двойного монохроматора с разрешением $0,2\text{ \AA}$ непрерывно с разверткой лазера регистрировался сигнал люминесценции на фиксированных частотах в пределах M -полосы. В спектрах возбуждения при больших мощностях наблюдаются два резонанса — в области $A_{n=1}$ экситонного состояния и вблизи длинноволнового крыла полосы I_2 . Резонанс вблизи ЭПК I_2 возникает при накачках $j \gtrsim 10^5 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ и с ростом j вплоть до $15 \text{ Мвт} \cdot \text{см}^{-2}$ движется в сторону меньших энергий (около $2,5 \text{ мэв}$) в пределах ширины M -полосы. Приведенные спектры возбуждения показывают, что M -полосу можно возбудить не только генерируя экситоны, но и непосредственно светом, близким по частоте к линии ЭПК I_2 . Это указывает на связь M -полосы с примесными центрами и исключает интерпретацию ее происхождения в рамках биэкситонной концепции¹⁾.

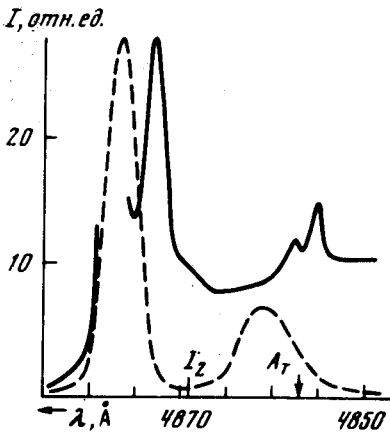


Рис. 1. Спектры возбуждения с области максимума и на длинноволновом краю M -полосы при $T = 1,4\text{ К}$ и накачке $j \sim 3 \text{ Мвт} \cdot \text{см}^{-2}$. Сплошная линия и пунктир отвечают длинам волн 4876 и 4890 А соответственно

Рис. 2 иллюстрирует развитие спектра излучения в области M -полосы при возбуждении светом лазера, близким по частоте к линии ЭПК I_2 . M -полоса возникает при мощности возбуждения $j \gtrsim 10 \text{ кВт} \cdot \text{см}^{-2}$. С ростом накачки в интервале $10^4 - 10^6 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ растет ее интенсивность и ширина, а максимум сдвигается незначительно в сторону больших длин волн. При некоторых пороговых накачках резонансного возбуждения $j \gtrsim 3 \text{ Мвт} \cdot \text{см}^{-2}$ M -полоса превращается в полосу излучения, соответствующую электрон-дырочной жидкости с равновесной плотностью e - h -пар $n_0 \sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$ и энергией связи $\phi \leq 12 \text{ мэв}$ [5]. На рис. 2 спектры 7 и 8 отвечают спонтанной и индуцированной излучательной рекомбинации ЭДЖ соответственно. Таким образом в этом эксперименте реализовано возбуждение светом носителей непосредственно вблизи ферми-поверхностей электронной и дырочной зон в ЭДЖ.

¹⁾ Максимум в спектре возбуждения вблизи ЭПК I_2 не может быть следствием резонансного двухфотонного возбуждения биэкситона, так как в этом случае линия излучения биэкситона должна быть смещена на половину энергии связи биэкситона в сторону меньших энергий по отношению к линии двухфотонного резонансного поглощения [6]. В условиях нашего эксперимента максимумы спектров фотовозбуждения и излучения M -полосы практически совпадают.

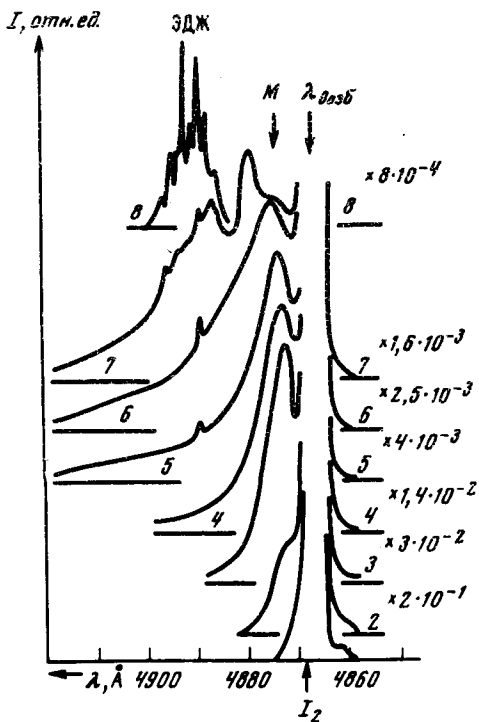


Рис. 2. Спектры рекомбинации в области M -полосы при лазерном возбуждении ($\lambda_{\text{возб}} = 4867 \text{ \AA}$) и $T = 1,4 \text{ K}$. Спектры 1 – 8 отвечают накачкам 0,01; 0,02; 0,03; 0,3; 1; 3; 5; 10 $\text{Мвт} \cdot \text{см}^{-2}$ и $T = 1,4 \text{ K}$

Изложенные эксперименты можно качественно объяснить, если предположить, что слабо связанные центры в CdS , в частности нейтральные доноры, служат центрами конденсации неравновесных носителей. С каждым центром могут связаться до нескольких десятков $e-h$ -пар, образуя устойчивые по отношению к распаду на свободные экситоны многочастичные экситон-примесные комплексы (поли-ЭПК). При небольших концентрациях экситонов образование поли-ЭПК происходит благодаря притяжению к примеси. С ростом числа локализованных экситонов роль примеси как центра конденсации уменьшается (в частности, из-за эффектов экранирования). Тем не менее межчастичное взаимодействие приводит к понижению средней энергии в расчете на одну $e-h$ -пару и к дальнейшему притяжению между носителями. Начиная с некоторого числа локализовавшихся вблизи центра пар роль примеси становится пренебрежимо малой, а средняя плотность частиц вблизи центра стремится к предельной величине, близкой к равновесному значению плотности в ЭДЖ. В результате этого поли-ЭПК превращается в зародыш электрон-дырочной жидкости, чему в спектрах излучения CdS отвечает перестройка M -полосы в полосу излучения ЭДЖ.

Вследствие межчастичных взаимодействий средняя энергия на пару частиц в поли-ЭПК отличается, но остается достаточно близкой к энергии основного состояния ЭПК. Поэтому образование таких комплексов может происходить как в результате связывания свободных экситонов с центром, так и посредством лазерного излучения достаточной мощности, близкого по частоте к линии ЭПК I_2 . Известно, что индуцированное поглощение, сопровождающееся увеличением числа пар на единицу

в поли-ЭПК, может характеризоваться чрезвычайно большой силой осциллятора [7]. Если считать, что вероятности излучения поли-ЭПК и ЭПК одного порядка ($\omega_R \sim 10^9 \text{ сек}^{-1}$), то при концентрациях доноров $n_d \sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ эффективное возбуждение поли-ЭПК наступает при мощности резонансного возбуждения $j \gtrsim 10^4 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$, что согласуется с экспериментом. С ростом n_d M -полоса появляется при больших накачках.

Если сравнить излучательное время τ_M для поли-ЭПК (в M -полосе $\tau_M < 2 \text{ нсек}$) с временем излучательного распада τ_{Π} e - h -плазмы соответствующей плотности $n_{e,h} \sim 10^{16} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$, то для усиливающего фак-

$$\text{тора } \rho = \frac{\tau_{\Pi}}{\tau_M} = \frac{|\Psi(0)|^2}{n_{e,h}} \frac{1}{\pi a_{ex}^3 n_{e,h}}, \text{ определяющего степень элект-}$$

рон-дырочных корреляций, получаем соответственно $\rho = 30 - 3$. Отсюда следует, что электрон-дырочные корреляции в поли-ЭПК значительны, и поэтому экситоны в поли-ЭПК, в отличие от электрон-дырочной жидкости, по-видимому, сохраняют свою индивидуальность, по крайней мере, при небольшом числе e - h -пар, локализованных в поле центра. Наконец заметим, что в случае ЭДЖ отсутствовала бы "щель" в спектрах возбуждения M -полосы.

Авторы выражают благодарность Л.В.Келдышу, Э.И.Рашба и Т.Г.Тратас за чрезвычайно полезные обсуждения.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
1 июля 1976 г.

Литература

- [1] S. Shionoya, H. Saito, E. Nanamura, O. Akimoto. Solid State Comm., 12, 223, 227, 1973.
- [2] А.Ф.Дите, В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев, П.Д.Алтухов. Письма в ЖЭТФ, 18, 579, 1973.
- [3] В.Г.Лысенко, В.Б.Тимофеев. ФТТ, 18, 1030, 1976.
- [4] H. Liebing, P. Mengel, W. Ruppel. Phys. Stat. Solidi (b) 72, 431, 1975.
- [5] В.Г.Лысенко, В.И.Ревенко, Т.Г.Тратас, В.Б.Тимофеев. Письма в ЖЭТФ, 20, 180, 1974; ЖЭТФ, 68, 335, 1975.
- [6] Е.Нанамура. Solid State Comm., 12, 951, 1973.
- [7] А.А.Гаголин, Э.И.Рашба. Письма в ЖЭТФ, 17, 690, 1973.