

Письма в ЖЭТФ, том 15, вып. 8, стр. 483 – 487 20 апреля 1972 г.

**МНОГОФОТОННЫЕ СПУТНИКИ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ
ПРИМЕСНОГО КРИСТАЛЛА
В СИЛЬНОМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОМ ПОЛЕ**

B. A. Kovarskii, N. A. Ferdman

В работе [1] одного из авторов рассматривались особенности оптических переходов на вырожденные уровни атома водорода в присутствии

ствии мощного лазерного нерезонансного излучения. В этих условиях предсказывался эффект ослабления ("подавления") спонтанной люминесценции на частоте перехода электрона с вырожденного уровня на основной за счет перераспределения интенсивности в частотном спектре люминесценции. Поскольку в ряде полупроводников хорошо реализуется водородоподобная модель локальных центров, представляет интерес обобщить теорию на этот случай. Если энергия ионизации локального центра $\epsilon_{\text{лц}} \ll \hbar\omega$ (ω — частота излучения внешнего лазера), то энергетические уровни локального центра можно приближенно рассматривать как почти вырожденные [2, 3], и использовать для дальнейшего непосредственно результаты работы [1].

Предполагается, что средняя кинетическая энергия электрона в поле электромагнитной волны напряженности $F = F_0 \cos \omega t$ в зоне проводимости полупроводника $\epsilon_F^c = e^2 F^2 / 4\mu_c \omega^2$ и дырки в валентной зоне $\epsilon_F^v = e^2 F^2 / 4\mu_v \omega^2$ удовлетворяют неравенству: $\epsilon_F^c \ll \epsilon_D$; $\epsilon_F^v \ll \epsilon_A$, где ϵ_D , ϵ_A — энергии ионизации донора и акцептора соответственно. Например, при $F_0 = 10^6 \text{ в/см}$; $\hbar\omega = 1,17 \text{ эв}$; $\mu_c = 0,1 \text{ м}$; $\epsilon_F^v \sim 10^{-3} \text{ эв}$; $\epsilon_D \sim 10^{-2} \text{ эв}$. Для акцепторов в полупроводниках типа $A^{III}B^V$ эти условия выполняются еще лучше. Поскольку $\epsilon_{\text{лц}} \ll \hbar\omega$ (антиадиабатический случай) уровни локального центра практически тунельно не распадаются [4].

Выпишем конечные формулы для вероятности спонтанной люминесценции $W(\Omega)$ при переходе электрона с донорного уровня в валентную зону (DV -переход) и отдельно для перехода электрона из зоны проводимости на уровень акцептора (CA -переход).

$$W_{DV}(\Omega) d\Omega = \sum_k B_k^{(DV)} \sum_n J_n^2(\rho_D) \delta \{ \epsilon_v(k) + \Delta_{cv} - \epsilon_D - \hbar\Omega - n\hbar\omega \} \rho_\Omega d\Omega, \quad (1)$$

$$W_{CA}(\Omega) d\Omega = \sum_k B_k^{(CA)} \sum_n J_n^2(\rho_A) \delta \{ \epsilon_c(k) + \Delta_{cv} - \epsilon_A - \hbar\Omega - n\hbar\omega \} \rho_\Omega d\Omega. \quad (2)$$

Здесь $J_n(x)$ — функция Бесселя действительного аргумента. $B_k^{(DV)}$ и $B_k^{(CA)}$ — константы, зависящие от матричных элементов дипольного перехода зона — примесной центр;

$$\epsilon_{cv}(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu_c v}; \quad \hbar\omega \rho_{D,A} \approx e_0 F_0 \langle \psi_{1s}^{D,A} | Z | \psi_{2p}^{D,A} \rangle = 1,3 e_0 F_0 a_B^{D,A}$$

ρ_Ω — спектральная плотность излучения; $a_B^{D,A}$ — радиус боровской орбиты донора или акцептора. $F_0 = [(n_1^2 + 2)/3] F_{\text{лазер}}$; n_1 — показатель преломления.

Как следует из формул (1, 2) спектр спонтанной люминесценции примесного кристалла в сильном электромагнитном поле представляется суперпозицией полос, максимумы которых отстоят друг от друга на величину лазерного кванта $\hbar\omega$, а интенсивность n -й полосы определяется весовой функцией $J_n^2(\rho_{D,A})$. При $\rho_D \ll 1$ (либо $\rho_A \ll 1$) основной вклад дает слагаемое с $n = 0$, и формулы (1, 2) переходят в обычные формулы для вероятности спонтанной люминесценции. В случаях, когда ρ_A (или ρ_D) больше единицы, основной вклад дает фотон-

ный спутник с $n \sim \rho_D$ (или $n \sim \rho_A$). Следует отметить, что "антистоксовые" фотонные спутники с энергиями большими $|\Delta_{cv} - \epsilon_D|$, (либо $|\Delta_{cv} - \epsilon_A|$) в своем числе не ограничены, в то время как "стоксовые" — ограничены, что следует непосредственно из формул (1, 2).

Наблюдение фотонных повторений особенно интересно в связи с возможностью экспериментального обнаружения гармоник квазиэнергий локального центра в сильном электромагнитном поле [5]. Поскольку $\rho_{ЛЦ} \sim 1$ достигается при полях $F_0 \sim 10^6$ в/см, $\hbar\omega = 1,17$ эв, $a_B^{ЛЦ} \sim 10^{-6}$ см, предполагается реальная постановка соответствующего эксперимента для обнаружения первого "антистоксового" фотонного спутника в спектре спонтанной люминесценции с частотой:

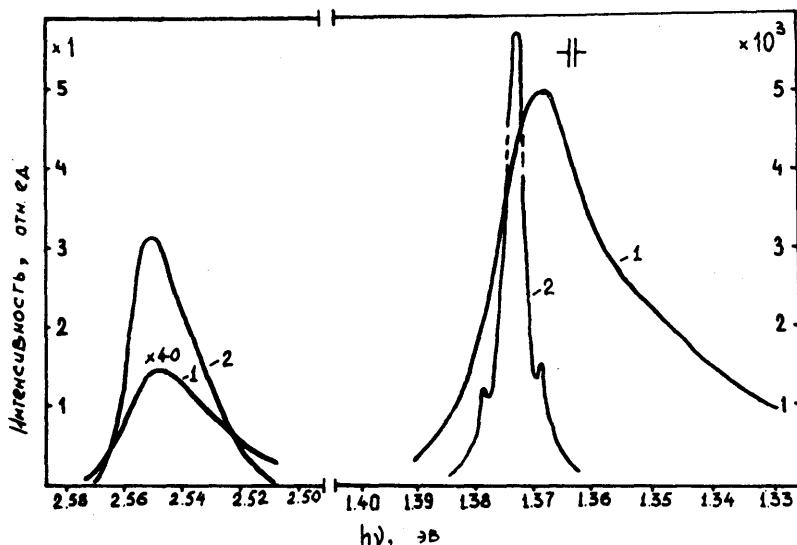
$$\hbar\Omega_1^+ = \Delta_{cv} - \epsilon_{ЛЦ} + \hbar\omega. \quad (3)$$

Были выбраны полупроводниковые кристаллы ZnTe ($\Delta_{cv}^{77^\circ K} \approx 2,2$ эв), CdSe ($\Delta_{cv}^{77^\circ K} \approx 1,8$ эв), JnP ($\Delta_{cv}^{77^\circ K} \approx 1,4$ эв), содержащие водородоподобные локальные центры с $\epsilon_{ЛЦ} \approx 0,05$ эв. Люминесценция возбуждалась объемной двухфотонной накачкой неодимовым лазером, работающим в режиме модуляции добротности. (Энергия импульса ~ 1 дж, длительность по полуширине ~ 40 нсек). Спектры люминесценции регистрировались светосильным монохроматором МДР-2, фотоумножителями и скоростным осциллографом с памятью.

Поскольку во всех выбранных образцах возбужденные носители за время лазерного импульса успевали перейти на мелкие локальные уровни, спектры люминесценции фиксировались как DV-переходы и как CA-переходы, т. е. реализовались переходы с частотами меньшими ширины запрещенной зоны на величину $\sim \epsilon_{ЛЦ}$.

Остановимся подробней на кристалле фосфида индия. Известно [6], что в этом кристалле при $77^\circ K$ в спектрах однофотонного возбуждения наблюдается линия CA-перехода на частоте 1,37 эв ($\epsilon_A \approx 0,045$ эв). В спектрах люминесценции при двухфотонном возбуждении эта линия четко фиксировалась с короткой (порядка длительности лазерного импульса) кинетикой. Ожидаемый "антистоксовый" фотонный спутник был зафиксирован на частоте $\hbar\Omega_1^+ = 1,37 + 1,17$ эв (рисунок). Очевидно, люминесценция на частоте Ω_1^+ в значительной мере поглощается в объеме кристалла, так что по существу она регистрировалась только с приповерхностных слоев. (Последний факт как раз и свидетельствует о высокой интенсивности Ω_1^+ — люминесценции в объеме). Кинетика релаксации фотонного спутника строго следовала за лазерным импульсом. Именно это обстоятельство позволило использовать неодимовый лазер и как источник накачки носителей (с достаточно быстрой $\sim 10^{-11}$ сек их релаксацией на локальные центры), и одновременно как источник, управляющий элементарным актом люминесценции. С дальнейшим увеличением мощности неодимового лазера фотонный спутник резко увеличивал свою интенсивность. При изменении интенсивности возбуждающего лазерного излучения в $\sim 1,6$ раза, интенсивность спутника возросла в 80 раз! Столь резкий закон возрастания интенсивности фотонного спутника возможно связан с особенностями материала фосфида индия, в котором при этих интен-

сивностях нами наблюдалось сужение линии основной люминесценции, что свидетельствует о вкладе вынужденных переходов. С ростом температуры $T > 77^{\circ}\text{K}$ интенсивность Ω_{CA} -люминесценции и соответственно интенсивность фотонного спутника Ω_1^+ резко уменьшалась, что связано с термической ионизацией локальных центров A.



Спектры люминесценции фосфида индия при двухфотонном возбуждении для двух значений интенсивности неодимового лазера: кривая 1 – интенсивность $4 \cdot 10^{25} \text{ кв/см}^2 \cdot \text{сек}$; кривая 2 – интенсивность $6,5 \cdot 10^{25} \text{ кв/см}^2 \cdot \text{сек}$ $T = 77^{\circ}\text{K}$

Фотонные повторения Ω_1^+ были также обнаружены на кристаллах теллурида цинка и селенида кадмия на частотах ~ 360 и $\sim 428 \text{ нм}$ соответственно. В этих кристаллах, однако, основная полоса люминесценции достаточно широкая и фотонное повторение имеет подобную структуру.

Заметим в заключение, что появление в спектре люминесценции частоты Ω_1^+ могло бы быть связано также с нелинейным сложением частоты лазера ω и частоты CA-люминесценции Ω_{CA} на локальных центрах кристалла. Однако, вероятность такого процесса, являющегося процессом более высокого порядка, чем рассмотренный выше (формулы (1, 2)), пропорциональна интенсивности Ω_{CA} -люминесценции и, следовательно, значительно меньше.

Авторы выражают благодарность С.И. Радауцану за предоставление кристаллов фосфида индия, изготовленных в его лаборатории и Н.Ф.Перельману за ценные обсуждения.

Поступила в редакцию
12 марта 1972 г.
После переработки
27 марта 1972 г.

Литература

- [1] В.А.Коварский. ЖЭТФ, 57, 1217, 1969.
 - [2] V.A.Kovarskii, E.Yu. Perlin. Phys. stat. sol., 36, 793, 1969.
 - [3] В.А.Коварский, Н.Ф.Перельман. ЖЭТФ, 61, 1389, 1971.
 - [4] Л.В. Келдыш. ЖЭТФ, 47, 1945, 1964.
 - [5] Я.Б.Зельдович. ЖЭТФ, 51, 1492, 1966.
 - [6] R.C.C.Leite. Phys. Rev., 157, 673, 1967.
-