

ВЫРОЖДЕНИЕ ЭКСИТОННОГО ГАЗА ПРИ МОЩНОМ ОПТИЧЕСКОМ ВОЗБУЖДЕНИИ В КРИСТАЛЛАХ CdS

П. Д. Алтухов, А. Ф. Дите, В. И. Ревенко,
В. Б. Тимофеев, В. М. Файн

Вопрос о создании больших и контролируемых плотностей неравновесного экситонного газа сохраняет свою актуальность. В настоящей работе сделана попытка определения чисел заполнения экситонов, создаваемых в кристаллах CdS при мощном однофотонном возбуждении на основании прямых экспериментальных измерений. При максимальных накачках, достигавшихся в нашем эксперименте ($P \sim 3 \cdot 10^6$ вт \cdot см $^{-2}$), эти числа оказались равными $n \gtrsim 1$.

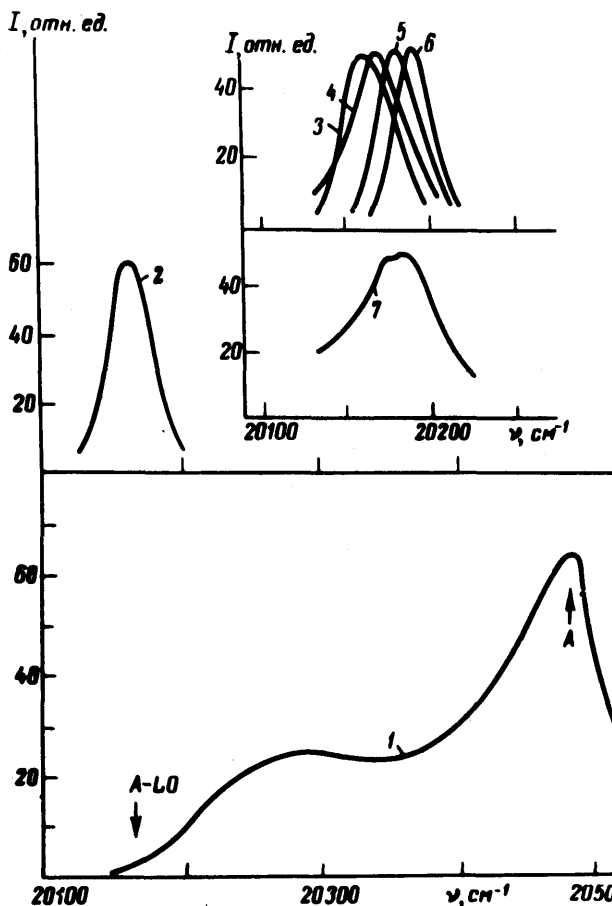


Рис. 1. Спектры спонтанной (кривая 1) и индуцированной (кривые 2 – 7) экситон-фононной люминесценции. Кривые (3 – 6) отвечают различным энергиям движения генерируемых с помощью перестраиваемого лазера экситонов (интервал перестройки 4 мэв, мощность накачки $5 \cdot 10^5$ вт \cdot см 2)

Для определения чисел заполнения экситонов был использован метод, состоящий в измерении коэффициента усиления в области индуцированной экситон-фононной люминесценции [1]. По величине этого ко-

эфициента далее непосредственно оценивались числа заполнения экситонов.

Ранее было показано [1], что важным фактором, ограничивающим накопление экситонов в зоне при оптической накачке в кристаллах CdS, являются процессы их индуцированного излучательного распада. Ограничение индуцированных излучательных расходов экситонов может быть достигнуто уменьшением размеров возбуждаемой области кристалла. В нашем эксперименте один из размеров этой области определялся коэффициентом поглощения для возбуждающего света ($L_1 \sim \sim 1/\alpha \sim 10^{-4} - 10^{-5} \text{ см}$), а двумя другими, определяющими площадь поверхностного возбуждения, в условиях опыта можно было управлять ($L_2 \lesssim 10^{-2} \text{ см}$, $L_3 \gtrsim 10^{-3} \text{ см}$). С помощью перестраиваемого импульсного лазера на красителе [2], обеспечивающего максимальные плотности мощности $\sim 10^6 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ при ширине линии генерации $(2 - 3) \text{ см}^{-1}$ и длительности моноимпульса 10 нсек , возбуждались "монохроматические" экситоны в широком спектре их энергий движения $\epsilon(\mathbf{k})$ (вплоть до $\epsilon(\mathbf{k}) \sim 3\hbar\omega_{LO}$, где $\hbar\omega_{LO}$ — энергия оптического фонона). Использовались кристаллы CdS высокого качества, в которых концентрации донорных и акцепторных примесей не превышали $5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$, а плотности краевых дислокаций были менее 10^2 см^{-2} . Исследования проводились при $T = 77^\circ\text{K}$, когда в спектре проявлялись процессы излучательного распада только свободных экситонов [3]. На рис. 1 приведен спектр спонтанного излучения экситонов при низком уровне мощности возбуждения $\sim 10^{-2} \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ (A — отвечает прямой излучательной аннигиляции экситонов, а $A - LO$ — "красная" граница экситон-фононных переходов с испусканием LO -фононов). Индуцированная экситон-фононная люминесценция, отвечающая максимальному линейному размеру возбуждаемой области кристалла порядка 10^{-2} см , возникает при плотностях мощности однофотонного возбуждения около $10^4 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ (кривая 2 на рис. 1). Вплоть до мощностей $10^6 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ в спектре индуцированной люминесценции преобладают процессы излучательного распада свободных экситонов (кривые 3 — 7). Генерация света отсутствовала, так как индуцированная люминесценция носила однопроходовой характер¹⁾.

Интенсивность экситон-фононной люминесценции I можно записать

$$I \sim \{ [n(\epsilon)(\nu + 1)] / [n(\epsilon) - \nu] \} \{ \exp(\alpha L) - 1 \}, \quad (1)$$

где ν и $n(\epsilon)$ — числа заполнения LO -фононов и экситонов, L — длина однородно возбуждаемой части образца в направлении наблюдения, а α — коэффициент усиления (отрицательный коэффициент экситон-фононного поглощения) равен:

$$\alpha = \alpha_0 \frac{\epsilon^{3/2}}{(\epsilon - \hbar\omega_{LO})^2} [n(\epsilon) - \nu], \quad (2)$$

¹⁾ Впервые лазерная генерация на экситон-фононных переходах в CdS наблюдалась в работах [4,5].

где ϵ — энергия, отсчитанная от "красной" границы экситон-фононного спектра. Меняя длину прокачиваемого участка L , можно построить зависимость $I = I(L)$, из которой, используя (1), определяется коэффициент усиления α при $\alpha L > 1$. На рис. 2 в координатах $\lg I - \lg L$ приведены соответствующие графики, полученные при различных уровнях возбуждения второй гармоникой от лазера на рубине (спектр люминесценции — кривая 7 на рис. 1). Здесь же указана шкала абсолютных значений интенсивности в ваттах, отвечающая измеренным мощностям люминесценции в пределах ее дифракционной расходимости. В качестве примера для кривой III зависимость $I(L)$ представлена на

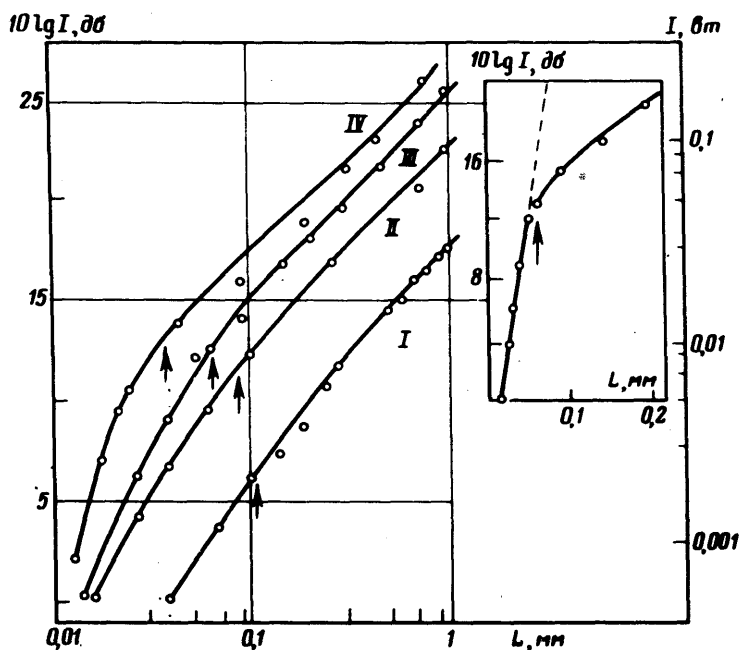


Рис. 2. Зависимость интенсивности в максимуме индуцированной экситон-фононной люминесценции от длины возбуждаемой области кристалла. Кривые I — IV отвечают мощностям возбуждения $4 \cdot 10^4$ $\text{вт} \cdot \text{см}^2$, $1,5 \cdot 10^5$ $\text{вт} \cdot \text{см}^2$, $5 \cdot 10^5$ $\text{вт} \cdot \text{см}^2$, $3 \cdot 10^6$ $\text{вт} \cdot \text{см}^2$

рис. 2 в координатах $\lg I - L$. При малых L это прямолинейная зависимость, хорошо удовлетворяющая выражению (1), а при больших L она становится сублинейной. Стрелками на рис. 2 указаны области длин, начиная с которых зависимость отстает от линейной. Экспериментально найденный критерий применимости выражения (1) оказался $\alpha L \lesssim 5 \div 7$. Физическая причина такой сублинейной зависимости понятна и связана с насыщением коэффициента усиления (отрицательного коэффициента экситон-фононного поглощения) в сильном поле индуцированной люминесценции. Действительно, рост коэффициента усиления замедляется, когда скорость индуцированных излучатель-

ных распадов экситонов сравнивается, а затем начинает превосходить скорость их безызлучательной гибели (см., например, [6,7]). Заметим, что плотность мощности индуцированной экситон-фононной люминесценции, отнесенная к торцу кристалла, для областей, отмеченных на рис. 2 стрелками, составляет $10^4 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$, что дает величину $\tau_{\text{exc}} \sim 10^{-9}$ сек, согласующуюся со значением безызлучательного времени жизни экситона в CdS ($T = 77^\circ\text{K}$) [8,9].

По наклону прямолинейных участков зависимостей $\lg I$ от L были определены коэффициенты усиления для каждой из кривых рис. 2, которые оказались равными $\alpha_{\text{I}} = 2,8 \cdot 10^2 \text{ см}^{-1}$; $\alpha_{\text{II}} = 5 \cdot 10^2 \text{ см}^{-1}$; $\alpha_{\text{III}} = 1,3 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$; $\alpha_{\text{IV}} = 4 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$.

Используя эти значения, из выражения (2) можно определить числа заполнения экситонов с энергией движения в зоне, близкой к максимуму кривой люминесценции. Для случая максимального коэффициента усиления ($\alpha = 4 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$, кривая IV, рис. 2) величина этой энергии принималась равной 3 мэв , поскольку максимум индуцированной люминесценции при этом отстоит от красной границы экситон-фононного спектра на 2 мэв и определяется с точностью $\pm 1 \text{ мэв}$. (Предполагается также, что положение красной границы не зависит от уровня накачки). Найденный, таким образом, нижний предел для чисел заполнения оказывается $n \sim 1$. Коэффициент усиления α можно также оценить независимо, экспериментально определяя по мощности индуцированной экситон-фононной люминесценции числа заполнения фотонов q_{ph} , которые, в свою очередь, связаны с коэффициентом усиления α следующим образом: $q_{ph} \approx \exp(\alpha L)$. При максимальной накачке $3 \cdot 10^6 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$ и длине возбуждаемой области $L \sim 2 \cdot 10^{-3} \text{ см}$ плотность мощности люминесценции, измеряемая в телесном угле $8\pi \cdot 10^{-3} \text{ рад}$ и спектральном интервале $\Delta\nu \sim 40 \text{ см}^{-1}$, составляла $P \sim 2 \cdot 10^3 \text{ вт} \cdot \text{см}^{-2}$. Это соответствует числам заполнения фотонов $q_{ph} \approx 50$, откуда коэффициент усиления $\alpha \approx 2 \cdot 10^3$, а $n \gtrsim 1$, что согласуется с приведенной выше оценкой.

Таким образом, числа заполнения экситонов при максимальных накачках оказались равными $n \gtrsim 1$, что свидетельствует о вырождении экситонного газа. Весьма существенен здесь вопрос о фактическом распределении экситонов по энергиям. Числа заполнения $n \gtrsim 1$ на расстоянии $\epsilon \sim 3 \text{ мэв}$ от дна зоны не противоречат квазиравновесному распределению экситонов с химическим потенциалом $\mu \sim 0$.

К сожалению, истинное распределение экситонов, которое складывается в зоне в условиях максимальных реализованных накачек, остается неизвестным. Специально поставленные эксперименты по возбуждению экситонов с различными энергиями движения в зоне не дали однозначного ответа о характере распределения экситонов. Аргументом в пользу того, что распределение не сильно отличается от равновесного, является то, что независимо от энергии движения экситонов, возбуждаемых перестраиваемым лазером, индуцированная экситон-фононная люминесценция происходила на частотах, отвечающих локализации экситонов вблизи дна зоны. Однако наличие некоторой перестройки максимума люминесценции в пределах 4 мэв (см. рис. 1, кривые 3 – 6) в соответствии с изменением частоты возбуждающего света указывает, что распределение может отличаться от равновесного.

Исследование распределения экситонов в условиях вырождения является предметом наших дальнейших исследований. '

Авторы благодарны В.Л.Броуде, И.Б.Левинсону и Э.И.Рашба за полезные обсуждения и ценные замечания.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
3 августа 1972 г.

Литература

- [1] В.Л.Броуде, Н.Ф.Прокопюк, В.Б.Тимофеев, В.М.Файн. ФТТ, 11, 1063, 1969.
- [2] В.И.Ревенко, В.Б.Тимофеев. ПТЭ, № 5, 1972. '
- [3] Е.Ф.Гросс, С.А.Пермогоров, Б.С.Разбирин. ФТТ, 8, 1483, 1966.
- [4] В.И.Конюхов, Л.А.Кулевский, А.М.Прохоров. ДАН СССР, 164, 1012, 1965; IEEE, J. Quant. Electr., QE-2, 584, 1966.
- [5] Н.Ф.Басов, А.З.Грасюк, И.Г.Зубов, В.А.Катулин. ФТТ, 7, 3689, 1965. '
- [6] А.Ф.Дите, В.Б.Тимофеев, В.М.Файн, Э.Г.Яшин. ЖЭТФ, 58, 450, 1970.
- [7] А.Ф.Дите, В.Б.Тимофеев, В.М.Файн. ЖЭТФ, 61, 1065, 1971.
- [8] С.В. de la Guillaume, J.M.Debever, F.Salvan. Phys. Rev., 177, 567, 1969.
- [9] И.К.Красюк, Л.А.Кулевский, П.Л.Пашинин, А.М.Прохоров. ЖЭТФ, 59, 346, 1970. '