

УДК 621.315.592

© 1992

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНАЯ СВЕРХЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ СЛАБО ЛЕГИРОВАННЫХ КРИСТАЛЛОВ n -InSb, СВЯЗАННАЯ С ОПТИМАЛЬНЫМИ ФЛУКТУАЦИЯМИ ПРИМЕСНОГО ПОТЕНЦИАЛА

И. В. Кавецкая, Н. Н. Сибельдин, В. А. Цветков

Исследованы свойства основной линии люминесценции слабо легированных кристаллов n -InSb в широкой области интенсивностей оптического возбуждения (диапазон изменения около четырех порядков величины) при температуре ≈ 2 К. Прямым методом, основанным на измерениях зависимости вида спектра люминесценции от длины возбужденной области образца, показано, что линия излучения, возгорающаяся при интенсивной накачке на длинноволновом крыле основной линии, является линией сверхлюминесценции. Полученная из экспериментальных данных величина коэффициента усиления рекомбинационного излучения составляла $\approx 10 \text{ см}^{-1}$ при плотности возбуждения $\sim 10^{21}$ квант/см²·с.

В восьмидесятых годах усилился интерес к исследованиям низкотемпературной краевой фотолюминесценции антимонида индия с предполагавшейся возможностью наблюдения экситонных эффектов и коллективных явлений в системе неравновесных носителей заряда в этом материале [1–11]. Вследствие малости экситонного ридберга (≈ 0.5 мэВ) в антимониде индия следовало ожидать, что указанные свойства скорее всего могут проявляться в достаточно сильном магнитном поле. В результате проведенных экспериментов в спектрах люминесценции достаточно чистых образцов были обнаружены линии излучения экситонно-примесных комплексов (ЭПК) в поле напряженностью $H \geq 5 \div 7$ кЭ [2, 4], свободных диамагнитных экситонов ($H \geq 8 \div 10$ кЭ [11] и электронно-дырочной жидкости ($H \geq 20$ кЭ), стабилизированной магнитным полем [2].

В настоящей работе речь, однако, пойдет о спектрах люминесценции в отсутствие магнитного поля. Дело в том, что в литературе возникли серьезные разногласия при интерпретации основной линии люминесценции антимонида индия, а также линии излучения, возгорающейся при интенсивной накачке на длинноволновом крыле основной линии. Ранее обычно считалось (см., например, [1, 12, 13]), что основная линия люминесценции связана с прямыми межзонными переходами. Однако после того, как в спектре поглощения был обнаружен экситонный максимум [14] и благодаря этому было уточнено значение ширины запрещенной зоны ($E_g = 236.8 \pm 0.2$ мэВ при $T = 2$ К [14]), оказалось, что основная линия излучения слабо легированных образцов при умеренных накачках целиком лежит при энергиях, меньших ширины запрещенной зоны. В результате одни авторы считают, что основная линия излучения принадлежит ЭПК [3, 11], тогда как другие придерживаются первоначальной точки зрения, объясняя длинноволновый сдвиг линии излучения перенормировкой ширины запрещенной зоны из-за пространственных корреляций частиц в

электронно-дырочной плазме¹ и влиянием хвостов плотности состояний [4, 5, 8, 9]. Что касается линии излучения, возникающей при интенсивном возбуждении (в работах [3, 11] она была обозначена как Б-линия), то в [3] она интерпретировалась как линия ЭПК на глубоких акцепторах, в [9] — как линия стимулированного излучения электронно-дырочной плазмы; обсуждались и другие возможности [11].

В результате экспериментального исследования, теоретической обработки и сопоставления формы основной линии излучения достаточно чистых образцов *n*-типа и спектра поглощения в области основной линии нами [15, 16] было показано, что спектральное положение и форма основной линии излучения определяются крупномасштабными флуктуациями концентрации заряженных примесей, вызывающими изгиб краев разрешенных зон. При этом основной вклад в интенсивность излучения дают оптимальные флуктуации [17, 18], а само наблюдаемое излучение обусловлено электронными переходами между пространственно-разделенными впадинами зоны проводимости (или уровнями мелких доноров, расположенными под ними) и «горбами» валентной зоны, являющимися потенциальными ямами для дырок.

В настоящей работе исследованы условия возникновения интенсивной линии излучения, возникающей на длинноволновом крыле основной линии при высоких уровнях фотовозбуждения. Экспериментальные результаты, полученные на образцах различной толщины в нескольких геометриях наблюдения и возбуждения, интенсивность которого изменялась в диапазоне около четырех порядков величины, позволили заключить, что линия, появляющаяся при интенсивной накачке, является линией сверхлюминесценции и возникает в результате тех же электронных переходов, что и основная линия.

1. Методика экспериментов

Квазистационарное возбуждение исследуемых образцов осуществлялось либо Nd^{3+}YAG лазером с длиной волны $\lambda = 1.06$ мкм и максимальной мощностью $P_{\text{max}} \approx 3$ мВт, либо He—Ne лазером с $\lambda = 3.39$ мкм и $P_{\text{max}} \approx 15$ мВт. Оба этих лазера работали в непрерывном режиме. Возбуждающее излучение модулировалось с частотой 1 кГц механическим прерывателем. Для уменьшения перегрева образца при интенсивной накачке скважность импульсов возбуждения изменялась от 2 : 1 при низких до 10 : 1 при высоких уровнях возбуждения. Интенсивность возбуждения изменялась с помощью нейтральных светофильтров. Возбуждающее излучение фокусировалось на образец или в круглое пятно диаметром ~ 300 мкм, или в узкую полоску шириной ~ 200 мкм. Длину полоски можно было изменять регулировкой ширины промежуточной щели; при этом интенсивность возбуждения оставалась практически постоянной.

Были использованы три геометрии наблюдения: рекомбинационное излучение собиралось с освещаемой лазером грани образца (геометрия на отражение), с противоположной грани (на просвет), а при возбуждении узкой световой полоской и с боковой грани, т. е. регистрировалось также излучение, распространявшееся вдоль этой полоски (геометрия сбоку). Для анализа спектрального состава излучения применялся монохроматор МДР-2 с решеткой 100 штр./мм. Приемником служило фотосопротивление Ge : Au, охлаждавшееся жидким азотом.

Для измерения спектров пропускания использовалась схема, в которой излучение широкополосного источника (глобара) сначала пропусклось через тот же монохроматор, а затем направлялось на исследуемый образец. При измерениях

¹ Еще до появления работы [14] Лаваллард и др. [1] на основе соответствующих теоретических оценок заключили, что спектральное положение длинноволнового края линии излучения объясняется этим эффектом.

пропускания возбужденных образцов лазерный луч с длиной волны $\lambda = 1.06$ мкм фокусировался на образец в пятно, размеры которого превышали размеры пятна зондирующего излучения. Совмещение обоих пятен контролировалось по величине изменения пропускания под влиянием возбуждения.

Опыты проводились на образцах антимонида индия n -типа с концентрацией электронов $n = (1 \div 2) \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$ (при $T = 77$ К) и компенсацией $k = 0.4 \div 0.5$. Образцы после механической полировки травились в полирующем травителе СР-4А. Типичные размеры образцов составляли $5 \times 5 \times (0.1 \div 1.0)$ мм. Образцы свободно подвешивались в гелиевом объеме криостата и во время опыта находились непосредственно в сверхтекучем гелии. Все эксперименты выполнены при температуре 2 К.

2. Результаты и обсуждение

Основная линия люминесценции образца антимонида индия с $n \approx 1.2 \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$, зарегистрированная при низком уровне возбуждения, показана на рис. 1 сплошной линией. В соответствии со сказанным выше эта линия целиком лежит при энергиях, меньших ширины запрещенной зоны E_g . Анализ формы линии показал [15, 16], что она хорошо описывается теорией излучения, основанной на предположении об определяющем вкладе в интенсивность излучения межзонных электронных переходов в оптимальных гауссовых флуктуациях концентрации заряженных примесей [17, 18].

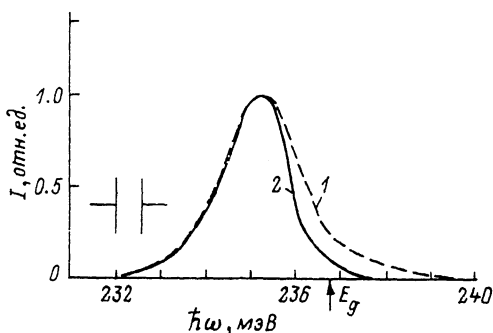


Рис. 1. Основная линия люминесценции образца толщиной $d \approx 850$ мкм в геометрии на отражение при двух мощностях накачки лазером с $\lambda = 1.06$ мкм: $P \approx 1.0$ (1) и $\approx 2.4 \cdot 10^{-2}$ Вт (2). $T = 2$ К.

При низких уровнях возбуждения ($\leq 10^{20}$ квант./см $^2 \cdot$ с) форма и полуширина основной линии излучения практически не зависят от мощности накачки, тогда как интегральная интенсивность этой линии увеличивалась квадратично с ростом мощности возбуждения. При дальнейшем увеличении интенсивности накачки рост интегральной интенсивности линии излучения замедлялся, оставаясь, однако, сверхлинейным во всем исследованном диапазоне плотностей возбуждения вплоть до $\approx 8 \cdot 10^{21}$ квант./см $^2 \cdot$ с (эта величина соответствует $P \approx 1$ Вт при $\lambda = 1.06$ мкм).

При высоких уровнях возбуждения изменение формы основной линии люминесценции с ростом мощности накачки оказалось существенно различным для толстых (толщиной $d \geq 300$ мкм) и тонких образцов. При увеличении уровня возбуждения форма длинноволнового края линии излучения толстых образцов практически не изменяется, тогда как ее коротковолновое крыло становится более пологим и у него появляется хвост, простирающийся в область высоких энергий больших ширины запрещенной зоны кристалла (рис. 1, штриховая

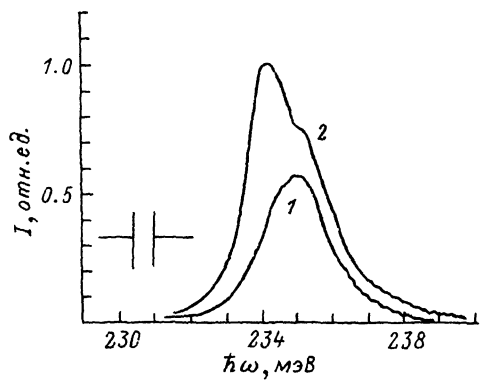


Рис. 2. Спектры люминесценции в области основной линии образца толщиной $d \approx 130$ мкм в геометрии на просвет при двух уровнях возбуждения: $P \approx 1.0$ (1), ≈ 2.4 Вт (2). $T = 2$ К.

линия). Увеличение полуширины линии излучения связано с возрастанием электронной температуры [16], в то же время появление излучения с $\hbar\omega > E_g$ означает, что при высоких уровнях возбуждения заполняются не только потенциальные ямы (впадины зоны проводимости), но и более высокоэнергетические электронные состояния, так что становятся возможными прямые электронные переходы в реальном пространстве.

Перейдем теперь к обсуждению экспериментов с тонкими образцами. Уже при относительно невысоких уровнях возбуждения ($P \approx 30$ мВт) основная линия излучения образцов толщиной $d \sim 100$ мкм начинала уширяться как в коротковолновую, так и в длинноволновую сторону. Наиболее существенные изменения, которые наблюдались при обоих использованных геометриях наблюдения (на отражение и на просвет), линия излучения претерпевала при мощностях накачки $P \geq 1$ Вт (рис. 2): при увеличении накачки на ее длинноволновом крыле возгоралась узкая интенсивная линия; при этом интенсивность излучения на коротковолновом краю основной линии лишь слабо возрастала, а в некоторых опытах не изменялась или даже уменьшалась. Спектральное положение максимума линии, возникавшей при интенсивной накачке, слабо изменялось (в пределах ~ 1 мэВ) в зависимости от толщины образца и геометрии наблюдения.

Для получения дополнительных сведений о неравновесных носителях заряда были измерены спектры пропускания фотовозбужденных образцов. Возбуждение приводило к просветлению образца и коротковолновому сдвигу высокочастотной границы полосы пропускания (рис. 3) вследствие заполнения неравновесными носителями электронных состояний, участвующих в поглощении света (динамический эффект Бурштейна—Мосса). На рис. 3 приведены данные для образца толщиной $d \approx 280$ мкм. Более тонкие образцы ($d = 100 \div 300$ мкм) при накачках, близких к максимальной ($P \sim 1$ Вт), просветлялись и на частотах $\omega > E_g/\hbar$. Пропускание при $\hbar\omega = E_g$ составляло около 10 % от максимального, и в области энергии от $E_g = 236.8$ мэВ до $\hbar\omega \approx 238$ мэВ интенсивность прошедшего через образец света плавно уменьшалась до уровня, отвечающего обнаружительной способности экспериментальной установки.

Сопоставление спектров излучения и пропускания (рис. 2, 3) показывает, что максимум линии излучения, возгорающейся при мощной накачке, приходится на частотную область, в которой плавно уменьшение пропускания возбужденного кристалла с ростом $\hbar\omega$ сменяется резким. Это обстоятельство вместе с описанными

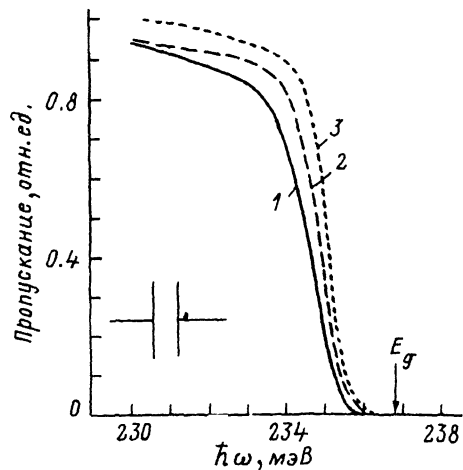


Рис. 3. Спектры пропускания образца толщиной $d \approx 280$ мкм при различных мощностях накачки лазером с $\lambda = 1.06$ мкм: $P = 0$ (1), $9.4 \cdot 10^{-2}$ (2) и 1.0 Вт (3).

Кривые нормированы на максимальное пропускание в исследованном диапазоне частот.

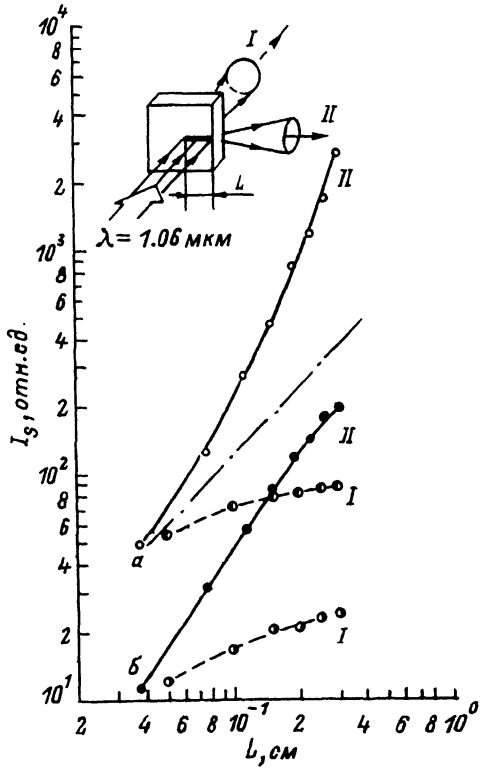


Рис. 4. Зависимости интенсивности люминесценции на частоте ω_s (см. рис. 5) от длины возбуждающей световой полоски при наблюдении на просвет (I) и вдоль полоски (II) для образца толщиной $d \approx 370$ мкм.

Световой поток на плоскость промежуточной щели $P \approx 2.4$ (верхние кривые I, II) и ≈ 0.72 Вт (нижние кривые I, II). Наклон штриховатой прямой отвечает линейной зависимости. $P/P_{\max} = 1.0$ (а) и 0.3 (б). На вставке — геометрия опыта.

эксперимента (вставка на рис. 4), ранее неоднократно применявшаяся для исследования спектров усиления прямозонных полупроводников [19]. Возбуждающее излучение фокусировалось на фронтальную (широкую) грань образца в узкую полоску шириной ≈ 200 мкм. Люминесценция наблюдалась на просвет (геометрия I) и сбоку вдоль полоски (геометрия II).

В геометрии на просвет форма основной линии рекомбинационного излучения практически не зависела от длины световой полоски L и была такой же, как при точечной фокусировке возбуждающего света не слишком большой интенсивности. В то же время при увеличении L интенсивность люминесценции несколько возрастала примерно по одному и тому же закону при различных мощностях возбуждения (кривые II на рис. 4). Рост интенсивности люминесценции указывает на увеличение концентрации неравновесных носителей заряда в области образца, из которой ведется наблюдение (ее размеры вдоль L составлял ≈ 0.5 мм). Это, по-видимому, означает, что длина диффузии фотовозбужденных носителей соизмерима с длиной световой полоски.

При наблюдении люминесценции вдоль возбуждающей световой полоски картина существенно изменялась. Если при относительно низких уровнях воз-

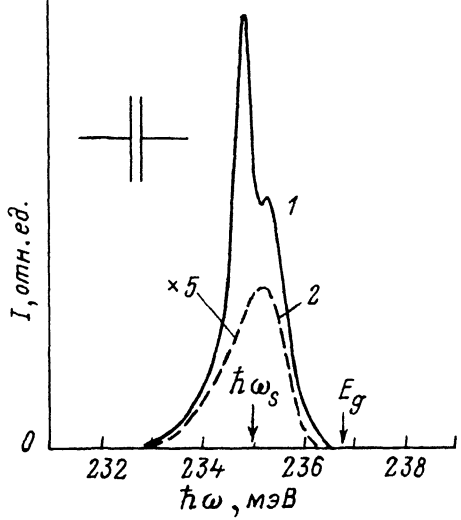


Рис. 5. Спектры излучения, распространяющегося вдоль возбуждающей световой полоски, при двух значениях ее длины: $L = 3$ (1) и 0.75 мм (2).

Толщина образца $d \approx 370$ мкм, световой поток на плоскость промежуточной щели $P \approx 2.4$ Вт, $T = 2$ К.

выше особенностями поведения спектра излучения тонких образцов при увеличении интенсивности накачки позволяет заключить, что возникновение дополнительной линии излучения связано со сверхлюминесценцией, обусловленной усилением рекомбинационного излучения в возбужденной части образца.

Для того чтобы получить прямое подтверждение сделанного заключения, была использована геометрия эксперимента (вставка на рис. 4), ранее неоднократно применявшаяся для исследования спектров усиления прямозонных полупроводников [19]. Возбуждающее излучение фокусировалось на фронтальную (широкую) грань образца в узкую полоску шириной ≈ 200 мкм. Люминесценция наблюдалась на просвет (геометрия I) и сбоку вдоль полоски (геометрия II). В то же время при увеличении L интенсивность люминесценции несколько возрастала примерно по одному и тому же закону при различных мощностях возбуждения (кривые II на рис. 4). Рост интенсивности люминесценции указывает на увеличение концентрации неравновесных носителей заряда в области образца, из которой ведется наблюдение (ее размеры вдоль L составлял ≈ 0.5 мм). Это, по-видимому, означает, что длина диффузии фотовозбужденных носителей соизмерима с длиной световой полоски. При наблюдении люминесценции вдоль возбуждающей световой полоски картина существенно изменялась. Если при относительно низких уровнях воз-

буджения зависимости интенсивности излучения I_S на частоте ω_S (рис. 5) от длины полоски (нижняя кривая II на рис. 4) отражает возрастание концентрации неравновесных носителей (этот вклад в I_S приводит к зависимостям I , приведенным на рис. 4) и пропорциональное L увеличение объема области наблюдения, то при интенсивной накачке зависимость I_S от L становится более сильной, причем крутизна кривой, которой эта зависимость изображается, увеличивается с ростом l (верхняя кривая II на рис. 4). Резкое возрастание I_S при увеличении длины полоски связано с возгоранием на длинноволновом крыле основной линии излучения узкой интенсивности линии (рис. 5; $\hbar\omega_S$ — некоторое произвольно выбранное значение $\hbar\omega$, близкое к энергетическому положению ее максимума), которая возникает из-за усиления рекомбинационного излучения, распространяющегося вдоль световой полоски. Если длина диффузии неравновесных носителей тока $L_D \ll L$, то в отсутствие насыщения коэффициент усиления α_{am} не зависит от длины световой полоски и при $\alpha_{am}L \gg 1$ интенсивность сверхлюминесценции при наблюдении вдоль полоски изменяется с L по закону $I_S \propto \exp(\alpha_{am}L)$: [19]. Для $L > 1.5$ мм экспериментальная зависимость I_S от L удовлетворительно описывается этим соотношением с $\alpha_{am} \approx 10$ см⁻¹.

Сравнение спектров люминесценции (рис. 2, 5) показывает, что увеличение мощности накачки тонких образцов при точечной фокусировке возбуждающего лазерного луча приводит к такому же качественному изменению спектра рекомбинационного излучения, как и увеличение длины световой полоски. Это дает основание утверждать, что и при точечной фокусировке возникновение длинноволновой спектральной компоненты при мощной накачке связано с вынужденным излучением. Заметим, что при регистрации излучения, распространяющегося вдоль области генерации (световой полоски), сверхлюминесценция наблюдается при примерно на порядок меньших плотностях возбуждения и на в несколько раз более толстых образцах, чем в геометриях на просвет и на отражение, со сфокусированным в точку возбуждающим светом.

Полученные экспериментальные результаты не содержат никаких указаний на необходимость привлечения каких-либо дополнительных особенностей электронного спектра (например, экситонных состояний) для объяснения природы линии излучения, возгорающейся при интенсивной накачке. Скорее наоборот — вся совокупность опытных данных позволяет сделать вывод, что эта линия люминесценции связана с усилением рекомбинационного излучения в результате индуцированных электронных переходов между теми же состояниями, которые определяют основную линию спектра спонтанного излучения.

Выше было отмечено, что зависимости интенсивности излучения в геометрии на просвет от длины возбуждающей световой полоски (кривые II на рис. 4) отражают вклад диффузии неравновесных носителей заряда в формирование их пространственного распределения. Относительно сильная зависимость I_S от L при малых L (рис. 4) означает, что длина диффузии L_D порядка нескольких сотен мкм. К такому же выводу приводят результаты измерения спектров пропускания фотовозбужденных образцов (рис. 3). Заметный коротковолновый сдвиг кривых пропускания наблюдался при возбуждении даже самых толстых ($d \sim 1$ мм) из исследованных образцов. Ряд экспериментальных фактов, свидетельствующих об аномально большой величине L_D (обычно считается, что в антимониде индия $L_D = 1 \div 10$ мкм), приведен в работе [16]. В настоящее время мы не имеем удовлетворительного объяснения этого результата. Скорее всего перенос неравновесных носителей на столь большие расстояния имеет недиффузионный характер. Несколько более подробное обсуждение этого вопроса содержится в работе [16], там же перечислены некоторые имеющиеся возможности.

Таким образом, полученные результаты показывают, что интенсивная линия, возгорающаяся при мощной накачке на длинноволновом крыле основной полосы

излучения слабо легированного антимонида индия n -типа, является линией сверхлюминесценции. Эта линия возникает в результате усиления рекомбинационного излучения и связана с теми же электронными переходами, что и основная линия. Т. е. с переходами между пространственно разделенными впадинами зоны проводимости и горбами валентной зоны, образованными в результате оптимальных гауссовых флуктуаций концентрации заряженных примесей.

Установлены дополнительные экспериментальные факторы, свидетельствующие о переносе неравновесных носителей заряда на аномально большие расстояния, примерно на два порядка превышающие длину амбиполярной диффузии носителей.

Мы глубоко признательны Л. В. Келдышу и Ал. Л. Эфросу за обсуждение, Б. А. Добышу и Н. В. Замковец за помощь при проведении экспериментов и М. Н. Кеворку и А. Н. Попкову за предоставление образцов.

Список литературы

- [1] Lavallard P., Richard R., Benoit a la Guillaume C. // Phys. Rev. B. 1977. V. 16. N 6. P. 2804—2810.
- [2] Кавецкая И. В., Кость Я. Я., Сибельдин Н. Н., Цветков В. А. // Письма в ЖЭТФ. 1982. Т. 36. № 7. С. 254—256.
- [3] Иванов-Омский В. И., Кохановский С. И., Сейсян Р. П. и др. // ФТП. 1983. Т. 17. № 3. С. 532—534.
- [4] Кавецкая И. В., Сибельдин Н. Н. // Письма в ЖЭТФ. 1983. Т. 38. № 2. С. 67—70.
- [5] Бреслер М. С., Гусев О. Б., Степанов А. О. // ФТП. 1983. Т. 17. № 7. С. 1195.
- [6] Калугина Н. А., Скок Э. М. // Письма в ЖЭТФ. 1983. Т. 38. № 5. С. 251—253.
- [7] Калугина Н. А., Скок Э. М. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 2. С. 528—529.
- [8] Алексеев М. А., Бреслер М. С., Гусев О. Б. и др. // ФТП. 1985. Т. 19. № 4. С. 722—728.
- [9] Бреслер М. С., Гусев О. Б., Степанов А. О. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 5. С. 1387—1392.
- [10] Калугина Н. А. // Автореф. канд. дис. Новосибирск, ИФП СО АН СССР, 1986. 17 с.
- [11] Сейсян Р. П., Юлдашев Ш. У. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 1. С. 12—22.
- [12] Moogadian A., Fan H. Y. // Phys. Rev. 1966. V. 148. N 2. P. 873—885.
- [13] Richard R., Lavallard P., Benoit a la Guillaume C. // Sol. St. Comm. 1980. V. 34. N 6. P. 467—470.
- [14] Канская Л. М., Кохановский С. И., Сейсян Р. П. // ФТП. 1979. Т. 13. № 12. С. 2424—2426.
- [15] Кавецкая И. В., Кахраманов Н. Б., Сибельдин Н. Н., Цветков В. А. // Тез. докл. VI респ. коллоквиума по оптике и спектроскопии полупроводников и диэлектриков (Сухуми, 1987 г.). Тбилиси: Мицниереба, 1987. С. 7—11; Тез. докл. XI Всес. конф. по физике полупроводников (Кишинев, 1988 г.). Кишинев, 1988. С. 42.
- [16] Кавецкая И. В., Кахраманов Н. Б., Сибельдин Н. Н., Цветков В. А. // ЖЭТФ. 1991. Т. 100. № 12. С. 2053—2067.
- [17] Шкловский Б. И., Эфрос А. Л. Электронные свойства легированных полупроводников. М.: Наука, 1979. 416 с.
- [18] Леванюк А. П., Осипов В. В. // УФН. 1981. Т. 133. № 3. С. 427—477.
- [19] Kulakovskii V. D., Timofeev V. B. // Modern Problems in Condensed Matter Sciences. Amsterdam: North—Holland, 1983. V. 6. P. 95—186.

Физический институт
им. П. Н. Лебедева РАН
Москва

Поступило в Редакцию
1 октября 1991 г.