

УДК 535.37

ГЕНЕРАЦИЯ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ ПРИ ИНДУЦИРОВАННОЙ РЕКОМБИНАЦИИ СВЯЗАННЫХ ЭКСИТОНОВ В CdS

Н. Н. Зиновьев, Д. И. Ковалев, И. Д. Ярошецкий

Впервые исследована модуляция потоком неравновесных акустических фононов индуцированной рекомбинации связанных экситонов в полупроводниках. Обнаружено нелинейное увеличение интенсивности и спектральной ширины полосы излучения с участием фононов с суммарной энергией вплоть до дебаевской при увеличении накачки образца. Впервые экспериментально идентифицирован механизм люминесценции на *M*-полосе в сульфиде кадмия при высоких уровнях возбуждения — индуцированная излучательная рекомбинация связанных экситонов с эмиссией акустических фононов. Полученные данные свидетельствуют о генерации в таком процессе акустических фононов в некоторой области энергий, числа заполнения которых $n_Q \gg 1$.

Среди процессов рождения акустических фононов в конденсированной среде наиболее интересным явлением могла бы стать генерация фононов лазерного типа [1]. Однако достаточно убедительные экспериментальные данные, свидетельствующие в пользу существования таких процессов, нам неизвестны. В силу этого представляет интерес анализ ситуации в полупроводниковом лазере, генерация в котором происходит с участием акустических фононов — лазере на непрямых оптических переходах [2, 3]. До сих пор модель индуцированной рекомбинации электронно-дырочной пары (в данном случае связанного на примесном центре экситона) с участием фононов основывалась на предположении о наличии равновесия в фононной системе [4, 5]. Однако, как можно показать, в условиях стимулированного излучения оптических квантов при таком двухчастичном процессе рекомбинации (в общем случае многочастичном — m фононов + фотон) возможно появление сильной фононной неравновесности, определяющей в свою очередь кинетику генерации квантов света. Характер такой генерации фононов, кинетика возникающей фононной неравновесности, а также стимулированное излучение фотонов определяются видом фононного интеграла столкновений \hat{I}_Q [5]. Так, в частном случае, когда справедливо приближение времени релаксации для $\hat{I}_Q \sim \sim -n_Q/\tau_Q$ [5], в стационарном режиме можно получить зависимость $n_Q \sim N_\omega \tau_Q/\tau$, выражающую пропорциональный рост чисел заполнения фононов n_Q , сопровождающий индуцированное излучение фотонов с числами заполнения N_ω . При этом величины n_Q определяются отношением времени жизни фононов с данной энергией $\Omega - \tau_Q$ и времени жизни фотонов в резонаторе τ . В условиях, когда величины фононных чисел заполнения становятся достаточно большими и нарушается приближение времени релаксации, возникает необходимость учета многофононных процессов в рекомбинации связанных экситонов, нелинейный характер которых затрудняет точный анализ модели. В этом случае, помимо отмеченного выше факта роста n_Q и N_ω , с ростом накачки должна увеличиваться область энергий оптических квантов, в которой наблюдается усиление света. Это обусловлено включением многофононных процессов в индуцированную рекомбинацию связанных экситонов, когда достаточно большие ве-

личины фононных чисел заполнения компенсируют малые вероятности процессов высокого порядка.

В рекомбинационных излучательных процессах фононы могут вызвать отклик в случае, когда механизм оптического перехода обусловлен электрон-фононным взаимодействием, либо когда имеет место ионизация фононами связанного электронно-дырочного состояния (или изменение распределения свободных носителей или экситонов в зонах), либо когда фононы изменяют скорость безызлучательной рекомбинации. В этой связи наиболее естественным приемом экспериментального исследования рекомбинации связанных экситонов с участием фононов в широкой области значений интенсивности возбуждения является изучение люминесценции в условиях инжекции в образец неравновесных акустических фононов в полосе энергий $\Delta\bar{\Omega}$, используемых в качестве «пробного зонда» для идентификации природы излучательного перехода. При этом характер нелинейности электрон-фононного взаимодействия по числам заполнения n_{Ω} в этих условиях может быть выявлен по изменению спектрального распределения электрон-фононной люминесценции. Перейдем к рассмотрению результатов экспериментального исследования характера генерации акустических фононов в полупроводниковом лазере с оптической накачкой.

Эксперименты проводились при температурах сверхтекучего He^4 $T=1.3$ К. Образцы исследуемого полупроводника CdS представляли собой плоскопараллельные пластинки толщиной $L \sim 10^{-3}$ см и характерным размером в плоскости $\sim 3 \times 5$ мм, выращенные из газовой фазы. Гексагональная ось кристалла c лежала в плоскости образца. Концентрация остаточных примесей $N_D - N_A$ составляла $\sim 10^{15}$ см $^{-3}$. Инжекция неравновесных акустических фононов осуществлялась из пленки металла (Sn), напыленной на поверхность образца, противоположную возбуждаемой. Толщина металлической пленки составляла величину ~ 1000 Å, диаметр ~ 1 мм. Возбуждение пленки Sn осуществлялось импульсами излучения азотного лазера с длительностью $\sim 10^{-8}$ с. «Эффективная температура» неравновесного фононного распределения δn_{Ω} , инжектируемого в образец CdS , составляла величину $T_{\text{эфф}} = \Omega_{\text{макс}} / \ln \left(\frac{\delta n_{\Omega_{\text{макс}}} + 1}{\delta n_{\Omega_{\text{макс}}}} \right) \sim 15$ К, при

этом энергия фононов этого распределения сосредоточена в области спектра $\Delta\bar{\Omega} \leq 4$ мэВ, а максимум их распределения приходится на область частот $\Omega_{\text{макс}} \approx 2$ мэВ [6]. Возбуждение полупроводника осуществлялось излучением второго азотного лазера с интенсивностью на образце $I = 50 \div 10^6$ Вт/см 2 и размером пятна накачки $d \sim 100$ мкм. Одновременно регистрировались два спектра рекомбинационного излучения — в отсутствие в области возбуждения неравновесных акустических фононов ($I_{\text{ри}}$) и дифференциальный спектр, характеризующий добавку $\delta I_{\text{ри}}$ к рекомбинационному излучению, вызванную неравновесными фононами [6].

Спектр люминесценции связанного экситона (рис. 1, кривые I и I'), обусловленной электрон-фононным взаимодействием, представляет собой суперпозицию двух оптических переходов — бесфононной люминесценции (БФЛ), когда числа заполнения фононов в начальном и конечном состоянии не изменяются, и люминесценции в стоксовой и антистоксовой области, когда числа заполнения фононов различны — фононные крылья (ФК). Поскольку полная интенсивность всей полосы излучения $\text{ФК} + \text{БФЛ} = \text{const}(T)$ [7], дифференциальный спектр, индуцируемый неравновесными фононами, должен характеризоваться уменьшением люминесценции на БФЛ и соответствующим увеличением сигнала на ФК. Особенности дифференциального спектра электрон-фононной люминесценции связанных экситонов при малых накачках ($I < 500$ Вт/см 2) описаны в [8]. Здесь мы отметим две важные для дальнейшего рассмотрения особенности, характеризующие спектр при низких уровнях возбуждения. 1) Распределение интенсивности люминесценции на ФК в спектрах излучения связанного экситона I_2 определяется однофононными процессами по крайней мере вплоть до $T \sim 20$ К [8, 9]. 2) Вследствие изменения внутреннего

квантового выхода η на линии I_2 , вызванного неравновесными фононами, наблюдается отсутствие полного баланса между уменьшением темпа рекомбинации по излучательному каналу на БФЛ и соответствующим уве-

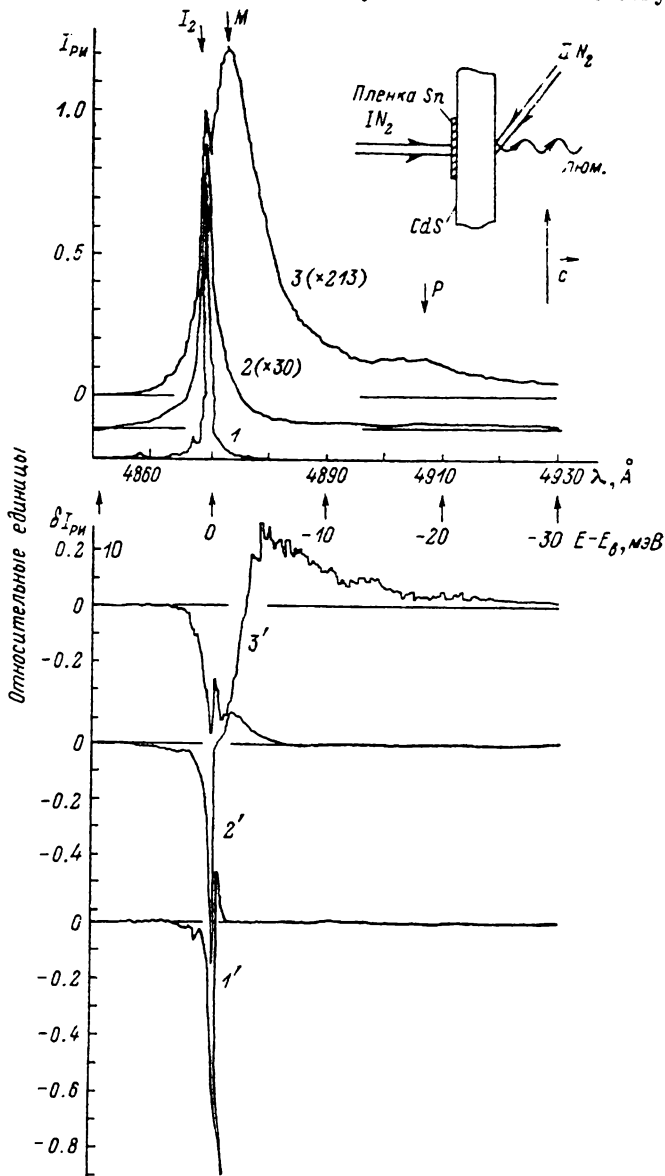


Рис. 1. Спектры люминесценции кристаллов CdS при различных интенсивностях оптической накачки (1—3) и дифференциальные спектры люминесценции, обусловленные модуляцией рекомбинационного излучения потоком неравновесных акустических фононов (1'—3').

$I_0 = 50 \text{ Вт/см}^2$. 1 и 1' — I_0 ; 2 и 2' — $50 \cdot I_0$; 3 и 3' — $10^2 \cdot I_0$. E_b — энергию кванта люминесценции связанного экситона I_2 . E — текущая энергия в спектре, $\omega = E - E_b$. Время задержки импульса возбуждения полупроводника относительно импульса накачки пленки металла $\Delta t = 30 \cdot 10^{-9} \text{ с}$.

личением интенсивности свечения на ФК.¹ Как можно показать, в этих условиях величина интегральной интенсивности в дифференциальном

¹ Искажение формы дифференциального сигнала в антистоксовой области линии I_2 связано с наличием в этой области спектра бесфононных линий излучения других связанных экситонов [10]. Что касается ситуации высоких возбуждений, то вследствие значительно большей величины коэффициента поглощения в этой области спектра в сравнении со стоксовым диапазоном усиление оптического сигнала и лазерная генерация соответственно не наблюдаются [3, 4].

спектре Σ , нормированная на интегральную люминесценции (БФЛ + ФК) в отсутствие фононов I_{PH}^0 , пропорциональна $1 - \eta$. Перейдем к анализу экспериментов, выполненных в условиях лазерной генерации.

При увеличении уровня возбуждения в спектрах люминесценции в отсутствие неравновесных фононов (рис. 1) возникает ряд наблюдавшихся ранее изменений [3, 4], включая лазерную генерацию при высоких накачках. Однако достаточно убедительных экспериментальных данных, свидетельствующих о природе этих особенностей, на наш взгляд, до сих пор не получено [4, 3]. Загадочной является причина перестройки спектра, заключающаяся в появлении линии излучения, получившей название M -полосы, интенсивность которой сверхлинейным образом возрастает, положение максимума смещается в длинноволновую сторону и ширина монотонно увеличивается с ростом возбуждения. Сравним эволюцию спектров в зависимости от накачки в отсутствие неравновесных фононов с изменениями в дифференциальной люминесценции. Из данных рис. 1 видна отчетливая корреляция в поведении M -полосы и дифференциального отклика люминесценции, обусловленного неравновесными фононами, в зависимости

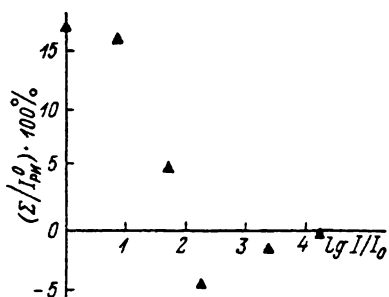


Рис. 2. Зависимость интегральной интенсивности дифференциальной люминесценции связанного экситона $I_{\Sigma} - \Sigma$, нормированной на интегральную интенсивность рекомбинационного излучения в отсутствие неравновесных акустических фононов I_{PH}^0 от интенсивности оптического возбуждения.

от интенсивности накачки. При этом следует подчеркнуть то, что дифференциальный сигнал на M -полосе положителен и определяется числами заполнения акустических фононов. Отмеченные факты позволяют идентифицировать механизм излучения на M -полосе как люминесценцию связанного экситона с эмиссией акустического фонона.

Обратимся к зависимости величины Σ/I_{PH}^0 от интенсивности возбуждения (рис. 2). Видно, что, оставаясь постоянной при малых накачках, величина внутреннего квантового выхода претерпевает резкое увеличение при $I > 500$ Вт/см². Следует, однако, заметить, что в этой области значений плотности возбуждения отношение Σ/I_{PH}^0 вследствие больших различий коэффициента поглощения (усиления) как функции длины волны рекомбинационного излучения уже несет только качественную информацию о величине внутреннего квантового выхода. Вместе с данными по исследованию оптического усиления на M -полосе [3, 4] наблюдаемое перераспределение рекомбинационного потока между излучательным и безизлучательным каналами распада связанного экситона с увеличением накачки (рис. 2) является отражением стимулированного характера процесса излучения рекомбинационных фотонов.

Наряду с отмеченным выше нелинейным возрастанием интенсивности излучения с участием фононов одновременно наблюдается увеличение спектральной ширины положительного дифференциального сигнала $\Delta\Omega$, соответствующего стоксовому ФК — M -полосе ($\Omega = E - E_b$, E_b — энергия рекомбинации связанного экситона, E — текущая энергия в спектре люминесценции). При этом в области больших накачек величина $\Delta\Omega$ превосходит ширину области однофононных состояний и достигает, как видно из рис. 1, значений $\Delta\Omega > 2\Omega_D$ (в CdS дебаевская энергия $\Omega_D \sim 130$ К [11]). С другой стороны, в этих условиях величина $\Delta\Omega$ более чем на порядок начинает превосходить и спектральную ширину «пробного» распределения $\Delta\tilde{\Omega}$. Такое поведение свидетельствует об усилении вклада в люминесценцию связанного экситона рекомбинационных процессов с участием нескольких фононов одновременно; причем степень многофононности, обу-

словливающаяся нелинейность эволюции спектра люминесценции по числам заполнения фононов, с ростом накачки заметно возрастает. Отметим, что такой характер кинетики люминесценции может иметь место в свою очередь только в случае значительного увеличения в процессе рекомбинации фононных чисел заполнения в некоторой спектральной области по сравнению с «фоновыми» значениями, определяемыми равновесными фононами, и фононами, рождающимися в процессах безызлучательной рекомбинации и релаксации неравновесных $e-h$ -пар, а также неравновесными «пробными» фононами. Отражением этого факта, по нашему мнению, является и увеличение деполаризации люминесценции при изменении длины волны в низкоэнергетическую область спектра в стоксовой области относительно БФЛ I_2 .²

Таким образом, вся совокупность полученных экспериментальных данных подтверждает высказанное выше предположение о возможности генерации акустических фононов, обусловленной индуцированным распадом локализованного на примесном центре экситона. При этом числа заполнения рождающихся в таком процессе акустических фононов достигают, как видно из экспериментальных данных, значений $n_2 \gg 1$ в некоторой спектральной области Ω . Вторым результатом работы является непосредственная идентификация природы люминесценции в спектральной области M -полосы [3, 4, 12] как результата процесса индуцированного излучательного распада связанного экситона с участием акустических фононов. В дальнейшем представляется интересным определить спектральные характеристики генерируемых в полупроводниковом лазере с оптической накачкой акустических фононов, а также исследовать кинетику фононной неравновесности и ее влияние на процессы излучения фотонов в лазере.

Авторы благодарны О. Н. Таленскому за предоставление для исследований монокристаллов сульфида кадмия.

Л и т е р а т у р а

- [1] Grill W., Hirschbiegel L. Phys. Rev. B, 1985, vol. 31, N 12, p. 8148—8152.
- [2] Броуде В. Л., Машкевич В. С., Приголько А. Ф., Прокопюк И. Ф., Соскин М. С. ФТТ, 1962, т. 4, № 10, с. 2976—2978.
- [3] Дите А. Ф., Ревенко В. И., Тимофеев В. Б., Алтугов П. Д. Письма в ЖЭТФ, 1973, т. 18, № 9, с. 579—583.
- [4] Klingshirn C., Haug H. Phys. Rept., 1981, vol. 70, N 5, p. 315—398.
- [5] Гуревич В. Л. Кинетика фононных систем. М.: Наука, 1980.
- [6] Зиновьев Н. Н., Ковалев Д. И., Козуб В. И., Ярошецкий И. Д. ЖЭТФ, 1987, т. 92, № 4, с. 1331—1350.
- [7] Осадько И. С. УФН, 1979, т. 128, № 1, с. 31—67.
- [8] Arakin V. I., Zinov'ev N. N., Parmanbekov U., Yaroshetskii I. D. Sol. St. Commun., 1985, vol. 55, N 8, p. 733—735.
- [9] Зиновьев Н. Н., Ковалев Д. И., Ярошецкий И. Д. ФТТ, 1986, т. 28, № 12, с. 3595—3602.
- [10] Thomas D. G., Hopfield J. J. Phys. Rev., 1962, vol. 128, N 5, p. 2135—2148.
- [11] Nusimovici M. A., Birman J. L. Phys. Rev., 1967, vol. 156, N 3, p. 925—938.
- [12] Видмонт Н. А., Максимов А. А., Тартаковский И. И., Эдельштейн В. М. ЖЭТФ, 1984, т. 87, № 6 (12), с. 2244—2248.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
1 декабря 1986 г.
В окончательной редакции
17 сентября 1987 г.

² В недавно появившейся работе [12] авторы исследовали зависимость степени поляризации люминесценции в стоксовой области БФЛ I_2 (M -полоса). Было найдено, что степень поляризации люминесценции уменьшается с увеличением длины волны в стоксовую область. Полученные данные связывались авторами [12] с процессами рекомбинации при межчастичных взаимодействиях в $e-h$ -плазме.