

УДК 535.343

РЕЛАКСАЦИЯ ГОРЯЧИХ ЭКСИТОНОВ В InBr И InI

Р. Риера, О. Сотолонго Коста, К. Траллеро Гинер,
И. Г. Ланг, С. Т. Павлов

Вычислены вероятность W_{2s} рассеяния и вероятность W_{21} перехода в основное внутреннее состояние ($n=1$) экситона Ванье—Мотта с квантовыми числами $n=2$, $l=1$, $m=0$, взаимодействующего с оптическими (LO) фононами в широком интервале значений кинетических энергий при $T=0$ К в случае, когда эффективная масса электрона равна эффективной массе дырки (как в полупроводниках InBr и InI). При таких же условиях вычислена вероятность W_{2d} распада экситона. Показано, что W_{2d} больше, чем W_{2s} и W_{21} .

При облучении ряда полупроводников (особенно типа $A^{III}B^{VI}$) светом частоты ω_l в области фундаментального поглощения наблюдается серия узких линий рассеянного излучения при частотах $\omega_l - N\omega_{LO}$, где ω_{LO} — частота LO-фонона, N — целое число [1]. Чтобы объяснить это явление, называемое многофононным резонансным комбинационным рассеянием света (МРКРС), Гросс с сотрудниками [2] предложил идею о каскадных процессах, происходящих с участием горячих экситонов. Такой процесс при температуре ниже дебаевской происходит следующим образом. Квант первичного света рождает экситон непрямым образом (в сопровождении испускания LO-фонона) в основном состоянии, т. е. с главным квантовым числом $n=1$ и с импульсом центра тяжести $\hbar\mathcal{K}$. Затем экситон испускает $N-2$ фононов, и, наконец, происходит непрямая аннигиляция экситона, сопровождаемая квантом вторичного излучения $\hbar\omega_s = \hbar\omega_l - N\hbar\omega_{LO}$ и испусканием последнего фонона.

В [3, 4] показано, что для сечения σ_N в теории МРКРС с участием горячих экситонов необходимо вычислить отношение $W_s(E)/W(E)$, где W_s — вероятность рассеяния экситона как целого без изменения внутреннего состояния с испусканием одного LO-фонона, W — полное обратное время жизни экситона с кинетической энергией E . В [5-7] вычислены вероятности рассеяния экситона без изменения основного внутреннего состояния ($n=1$), вероятности рассеяния с переходом из основного в возбужденные состояния ($n \geq 2$) и с переходом в состояния, принадлежащие к непрерывному энергетическому спектру относительного движения электрона и дырки («вероятность распада»). Эти результаты были использованы в [4, 8, 9] для вычисления сечений σ_N МРКРС.

Сравнительно недавно в полупроводниках класса $A^{III}B^{VI}$, а именно в InBr [10-12] и InI [13], обнаружены спектры МРКРС при облучении лазером за краем фундаментального поглощения. Эти спектры обладают двумя особенностями: во-первых, наблюдается очень большое число линий (N достигает 20 и более); во-вторых, интенсивность линий четного порядка ($N=2, 4, \dots$) больше, чем интенсивность линий нечетных ($N=3, 5, 7, \dots$).¹ В работах [14, 15] было теоретически предсказано, что последняя особенность должна быть присуща спектрам МРКРС в полупроводниках при условии равенства эффективных масс электрона и дырки.

¹ В случае полупроводников $A^{III}B^{VI}$ интенсивность линий рассеяния убывает слабо и монотонно с ростом порядка N рассеяния.

Покажем, что при условии $m=m_h$, где $m(m_h)$ — эффективная масса электрона (дырки) в принятых ранее в работах [4-9] приближениях для величин сечений МРКРС нечетного порядка, получается нулевой результат. Этот вывод является достаточно общим и не зависит от того, какие состояния электронно-дырочных пар (ЭДП) рассматриваются в качестве промежуточных в процессе МРКРС — принадлежащие к дискретному спектру энергии, т. е. экситоны, или к непрерывному, т. е. свободные ЭДП. Таким образом, мы покажем, что независимо от вида механизма МРКРС — экситонного (см., например, [4]) или электронно-дырочного (см., например, [16]) — при нечетном N сечении $\sigma_N=0$.

Процесс рождения и аннигиляции экситона (или ЭДП) в качестве промежуточного состояния включает только s -состояния ($l=0$, где l — орбитальное квантовое число), поскольку матричный элемент, соответствующий рождению экситона из основного состояния кристалла, содержит $\Phi_n(0)$ — волновую функцию внутреннего состояния экситона при $\rho=r_1-r_2=0$ [9], которая не равна нулю только для s -состояний.

Далее заметим, что фреilihовское взаимодействие электронов и дырок с LO -фононами является нечетной функцией от ρ при $m=m_h$. Действительно, фреilihовское взаимодействие имеет вид

$$\mathcal{H}_{\text{int}} = \sum_{\mathbf{q}} C_{\mathbf{q}} (e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_1} - e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_2}) b_{\mathbf{q}} + \text{к. с.}, \quad (1)$$

где

$$C_{\mathbf{q}} = -i\hbar\omega_{LO} \left(\frac{4\pi\alpha l^3}{V_0} \right)^{1/2} \frac{1}{ql},$$

$$\alpha = \frac{e^2}{2\hbar\omega_{LO}l} (\kappa_{\infty}^{-1} - \kappa_0^{-1}), \quad l = (\hbar/2m\omega_{LO})^{1/2},$$

\mathbf{r}_1 (\mathbf{r}_2) — радиус-вектор электрона (дырки), κ_0 (κ_{∞}) — статическая (высокочастотная) диэлектрическая проницаемость, $b_{\mathbf{q}}$ ($b_{\mathbf{q}}^{\dagger}$) — оператор уничтожения (рождения) фонона, V_0 — нормировочный объем.

Вводя векторы

$$\rho = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2, \quad \mathbf{R} = (m\mathbf{r}_1 + m_h\mathbf{r}_2)/(m + m_h).$$

и приравнивая эффективную массу электрона к эффективной массе дырки, получаем

$$\mathcal{H}_{\text{int}, m=m_h} = -2i \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}} C_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}} \sin \frac{\mathbf{q}\rho}{2} + \text{к. с.} \quad (2)$$

Поскольку взаимодействие (2) нечетно по ρ , оно может вызывать переходы только из четных по l состояний экситонов (ЭДП) в нечетные, или наоборот. Легко понять, что непрямым образом (с испусканием одного фонона) может родиться только экситон в нечетном состоянии (поскольку промежуточное состояние — s) и аналогично-аннигилировать непрямым образом может только экситон в нечетном состоянии. После рождения и до аннигиляции в процессе МРКРС экситон, испуская последовательно $N-2$ фононов, $N-2$ раза меняет четность своего состояния. Теперь очевидно, что возможны только процессы с четным числом N , что и требовалось доказать.

Если при теоретическом описании процессов МРКРС в полупроводниках с сильно различающимися эффективными массами электронов и дырок достаточно было ограничиться рассмотрением экситонов только в основном состоянии ($n=1$), то в случае полупроводников при $m=m_h$ необходимо учитывать также первое возбужденное состояние $n=2$. Авторы [12] предложили модель, согласно которой экситон, рождаясь в состоянии $n=2$, затем совершает переходы типа $2-1-2-1 \dots -2$, где 1 и 2 — главные квантовые числа. Однако возможна альтернатива — релаксация экситона по зоне $n=2$ с переменной только орбитальных кван-

товых чисел l . Для выяснения преобладающего механизма рассеяния в процессах МРКРС необходимо в первую очередь вычислить вероятности переходов экситонов при $n=2$ в различные конечные состояния, чему и посвящена настоящая работа. Будут вычислены вероятности перехода из состояния $n=2, l=1, m=0$ в состояние $n=2, l=0, m=0$ (W_{2s}), в состояние $n=1, l=0, m=0$ (W_{21}) и в состояние непрерывного спектра (вероятность распада W_{2d}) как функции кинетической энергии экситона при $m=m_h$.

1. Вероятность рассеяния

Прямой расчет вероятности рождения экситона показывает, что в случае $m=m_h$ рождается экситон с магнитным квантовым числом $m=0$. Поэтому в качестве исходного состояния рассмотрим $n=2, l=1, m=0$. Волновой вектор экситона в начальном состоянии обозначим как \mathcal{K} . Единственным возможным конечным состоянием экситона для перехода без изменения главного квантового числа является состояние $n=2, l=0, m=0$. Волновая функция для начального состояния

$$\psi_i = \frac{1}{\sqrt{V_0}} e^{i\mathcal{K}\mathbf{R}} \psi_{2p, m=0}(\rho), \quad (3)$$

для конечного состояния

$$\psi_f = \frac{1}{\sqrt{V_0}} e^{i(\mathcal{K}-\mathbf{q})\mathbf{R}} \psi_{2s}(\rho), \quad (4)$$

где

$$\psi_{2p, m=0}(\rho) = i(8\pi)^{-1/2} \frac{\rho e^{-\rho/2a}}{2a^{5/2}} \cos \theta, \quad (5)$$

$$\psi_{2s}(\rho) = (8\pi)^{-1/2} \frac{e^{-\rho/2a}}{a^{3/2}} \left(1 - \frac{\rho}{2a}\right), \quad (6)$$

$$a = \frac{\hbar^2 x_0}{\mu e^2}, \quad \mu = \frac{mm_h}{m_{\text{exc}}}, \quad m_{\text{exc}} = m + m_h. \quad (7)$$

Энергия экситона в начальном состоянии равна

$$E_i = \frac{\hbar^2 \mathcal{K}^2}{2m_{\text{exc}}} - \frac{\Delta E}{4} + E_g, \quad \Delta E = \frac{\mu e^4}{2\hbar^2 x_0^2} \quad (8)$$

(E_g — ширина запрещенной зоны), в конечном состоянии

$$E_f = \frac{\hbar^2 (\mathcal{K} - \mathbf{q})^2}{2m_{\text{exc}}} - \frac{\Delta E}{4} + E_g. \quad (9)$$

Используя «золотое правило» Ферми, как в [5], получаем вероятность W_{2s} как функцию от кинетической энергии экситона $E = \hbar^2 \mathcal{K}^2 / 2m_{\text{exc}}$

$$W_{2s} = \frac{9}{2} \alpha_{\text{exc}} \omega_{LO} \eta^{-1} x^{-3/2} \int_{y_1}^{y_2} \frac{dy}{y} \frac{|y^2 + (\eta - 1)y - \eta|^2}{(y + 1)^3}, \quad (10)$$

где

$$y_{1,2} = \eta (\sqrt{x} \mp \sqrt{x-1})^2, \quad \eta = \frac{\hbar \omega_{LO}}{\Delta E}, \quad x = \frac{E}{\hbar \omega_{LO}},$$

$$\alpha_{\text{exc}} = \frac{e^2}{2\hbar \omega_{LO} l_{\text{exc}}} (x_{\infty}^{-1} - x_0^{-1}), \quad l_{\text{exc}} = (\hbar / 2m_{\text{exc}} \omega_{LO})^{1/2}. \quad (11)$$

2. Вероятность перехода из состояния $n=2$ в состояние $n=1$

Начальное состояние экситона $n=2, l=1, m=0$ описывается волновой функцией (3) и имеет энергию (8). Конечному состоянию $n=1, l=0, m=0$ соответствуют волновая функция

$$\psi_f = \frac{1}{\sqrt{V_0}} e^{i(\mathbf{K}-\mathbf{q})\mathbf{R}} \psi_1(\boldsymbol{\rho}), \quad \psi_1(\boldsymbol{\rho}) = \frac{e^{-\zeta|\boldsymbol{\rho}|}}{\sqrt{\pi} a^{3/2}} \quad (12)$$

и энергия

$$E_f = \frac{\hbar^2 (\mathcal{K} - \mathbf{q})^2}{2m_{\text{exc}}} - \Delta E + E_g. \quad (13)$$

Для вероятности перехода получаем результат

$$W_{21} = 36\alpha_{\text{exc}}\omega_{L0}x^{-3/2} \int_{y'_1}^{y'_2} \frac{dy}{(y+9/4)^6} \left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{y}{\eta}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\eta}{y}} - \frac{3}{8\sqrt{\eta y}} \right)^2, \quad (14)$$

$$y'_{1,2} = \eta (\sqrt{x} \mp \sqrt{x+3/4\eta-1})^2. \quad (15)$$

3. Вероятность распада состояния $n=2, l=1, m=0$.

Для конечного состояния используем функцию

$$\psi_f = \frac{1}{\sqrt{V_0}} e^{i(\mathcal{K}-\mathbf{q})\mathbf{R}} \psi_{\mathbf{k}}(\boldsymbol{\rho}), \quad (16)$$

где

$$\psi_{\mathbf{k}}(\boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{\sqrt{V_0}} e^{i\mathbf{k}\boldsymbol{\rho}} \quad (17)$$

— функция свободной электронно-дырочной пары вместо точных функций [17], соответствующих непрерывному спектру в случае кулонова притяжения. Энергия конечного состояния ЭДП равна

$$E_f = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} + \frac{\hbar^2 (\mathcal{K} - \mathbf{q})^2}{2m_{\text{exc}}}. \quad (18)$$

Получаем результат в виде

$$W_{2d} = \frac{2^8}{\pi^2} \alpha_{\text{exc}}\omega_{L0}x^{-1/2} \int_0^{z_2} dz z^2 \int_{t_1}^{t_2} \frac{dt}{t} (I_1 - I_2), \quad (19)$$

$$I_1 = \frac{2\pi}{(2zt)^6} \left\{ C_2 \left[\frac{1}{3} ((L-1)^{-3} - (L+1)^{-3}) - \frac{L}{2} ((L-1)^{-4} - (L+1)^{-4}) + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{L^2}{5} ((L-1)^{-5} - (L+1)^{-5}) \right] + C_1 \left[-\frac{1}{4} ((L-1)^{-4} - (L+1)^{-4}) + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{L}{5} ((L-1)^{-5} - (L+1)^{-5}) \right] + \frac{C_0}{5} [(L-1)^{-5} - (L+1)^{-5}] \right\}, \quad (20)$$

$$I_2 = \frac{4\pi}{(2zt)^6} \frac{1}{8L^3} \left\{ C_2 \left[-L^2 ((L-1)^{-2} - (L+1)^{-2}) - \right. \right. \\ \left. \left. - L ((L-1)^{-1} - (L+1)^{-1}) + \ln \frac{L-1}{L+1} \right] + C'_0 \left[-\frac{1}{2} ((L-1)^{-2} - (L+1)^{-2}) - \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{3}{2L} ((L-1)^{-1} - (L+1)^{-1}) + \frac{3}{2L^3} \ln \frac{L-1}{L+1} \right] \right\}, \quad (21)$$

$$C_1 = -2ztA^2, \quad C_2 = \frac{z^2}{2} (3A^2 - 1), \quad C_0 = \frac{z^2}{2} + A^2 \left(t^2 - \frac{z^2}{2} \right),$$

$$C'_0 = \frac{z^2}{2} - A^2 \left(t^2 + \frac{z^2}{2} \right), \quad L = \frac{1+z^2+t^2}{2zt}, \quad A = \frac{t^2+z^2+4\eta+1}{4t\sqrt{\eta x}},$$

$$z_2 = \sqrt{4\eta(x-1)-1}, \quad t_{1,2} = 2\sqrt{\eta x} \mp \sqrt{z_2^2 - z^2}. \quad (22)$$

Полное обратное время релаксации экситона в состоянии $n=2, l=1, m=0$ описывает суммарный эффект рассеяния, перехода в состояние $n=1$ и распада, т. е.

$$W_2 = W_{2s} + W_{21} + W_{2d}. \quad (23)$$

4. Обсуждение результатов

Итак, для возбужденного внутреннего состояния экситона $n=2, l=1, m=0$ вычислены вероятность W_{2s} рассеяния при переходе в $n=2, l=0, m=0$, вероятность W_{21} перехода в состояние $n=1$ и вероятность W_{2d} рас-

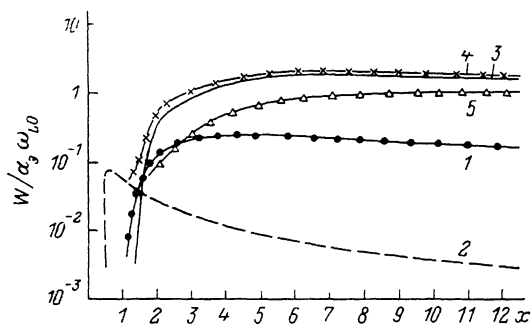


Рис. 1. Вероятности W_{2s} рассеяния, W_{21} перехода и W_{2d} распада горячего экситона в состоянии $n=2, l=1, m=0$ при равных эффективных массах электрона и дырки как функции безразмерной кинетической энергии $x = \hbar\omega_{LO}^2/2m_{\text{exc}}\omega_{LO}$ для InBr при $T=0$ К.

Величины W_2, W_1 — полные обратные времена жизни экситона в состояниях $n=2, l=1, m=0$ и $n=1, l=0, m=0$ соответственно. Используются параметры (24). 1 — $W_{2s}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$, 2 — $W_{21}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$, 3 — $W_{2d}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$, 4 — $W_2/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$, 5 — $W_1/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$.

На этих рисунках для сравнения представлены также обратные времена W_1 жизни экситонов в состоянии $n=1$, выражения для которых получены в [5]. При расчетах использованы параметры [18]

$$\Delta E = 1.16 \cdot 10^{-2} \text{ эВ}, \quad \hbar\omega_{LO} = 1.64 \cdot 10^{-2} \text{ эВ} \text{ для InBr}, \quad (24)$$

$$\Delta E = 4.2 \cdot 10^{-3} \text{ эВ}, \quad \hbar\omega_{LO} = 1.38 \cdot 10^{-2} \text{ эВ} \text{ для InI}. \quad (25)$$

В обоих случаях использовано равенство $m = m_h$, предложенное в [12]. Величина W_{2s} отличается от нуля при $x > 1$, что очевидно; W_{21} отлично от нуля при $x > 1 - 3/4$ ($\Delta E/\hbar\omega_{LO}$).

Это объясняет существование малой области низких энергий экситона, в которой величина W_{21} преобладает над W_{2s} . В широкой области энергии W_{2s} преобладает над W_{21} (рис. 1, 2). Отметим, что для основного внутреннего состояния экситона ($n=1$) при $m \simeq m_h$ в [6, 7] получен противоположный результат, т. е. вероятность перехода W_{12} всегда больше, чем W_s . Это понятно, поскольку вероятность рассеяния без изменения основного внутреннего состояния ($n=1$) при $m = m_h$ точно равна 0, а в случае $n=2$ возможны переходы с изменением четности, но без изменения энергии, которые дают вклад в W_{2s} . Из рис. 1, 2 также видно, что полное обратное время релаксации экситона в InBr и InI в возбужденном состоянии с $n=2, l=1, m=0$ больше, чем в состоянии с $n=1, l=0, m=0$.

Полученные результаты позволяют прийти к выводу, что при построении теории МРКРС света в полупроводниках типа InBr и InI с участием горячих экситонов необходимо включать не только переходы, описываемые вероятностями W_{21} и W_{12} , но и внутризонные переходы в состоянии $n=2$, описываемые вероятностями W_{2s} . Последние переходы, по-видимому, более эффективны в формировании экситонного вклада в процессы МРКРС при близких значениях эффективных масс электронов и дырок.

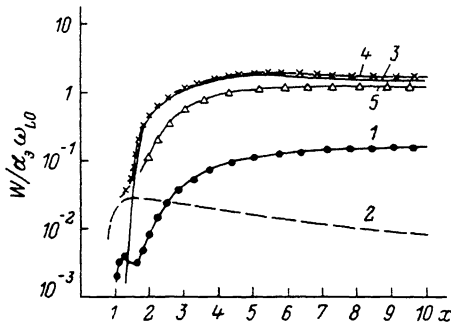


Рис. 2. То же, что и на рис. 1, для InI. Используются параметры (25).

пада. На рис. 1, 2 представлены графики зависимостей $W_{2s}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$, $W_{21}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$ и $W_{2d}/\alpha_{\text{exc}}\omega_{LO}$ от кинетической энергии экситона для InBr и InI при $T=0$ К.

Однако самая характерная черта, которую можно увидеть на рис. 1, 2, — это очень близкое расположение кривых W_{2d} и W_2 при $x \geq 2$. Это означает, что подавляюще большой вклад в величину W_2 вносит вероятность распада экситона, т. е. эта вероятность приблизительно на порядок превышает сумму вероятностей прочих переходов (см. (23)). Этот результат, по-видимому, исключает возможность объяснения наблюдаемых спектров МРКРС в полупроводниках InBr и InI с помощью только экситонного механизма. Действительно, в этих веществах интенсивность линий не убывает вплоть до очень больших порядков N , что возможно только при достаточно малых вероятностях распада экситона (см., например, [3, 4]). Поэтому для объяснения экспериментальных фактов нужно дополнительно привлекать другой механизм МРКРС — рассеяние с участием свободных ЭДП в качестве промежуточных состояний. В [16] соответствующая теория построена для случая сильно различающихся масс электрона и дырки, а именно при условии $m/m_h \ll 1$. Необходимо построить теорию электронно-дырочного вклада в процессы МРКРС при условии $m = m_h$.

Список литературы

- [1] Leite R. C. C., Scott J. F., Damen T. C. // Phys. Rev. Lett. 1969. V. 22. N 15. P. 780—782.
- [2] Gross E., Permogorov S., Travnikov V., Selkin A. // J. Phys. Chem. Sol. 1970. V. 31. N 12. P. 2595—2606.
- [3] Bendow B. // Proc. First Soviet-American Symp. «The theory of light scattering in solids». Moscow, 1976. V. 1. P. 328—351.
- [4] Траллеро Гинер К., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1981. Т. 23. № 5. С. 1265—1275.
- [5] Aristova K. A., Trallero Giner C., Lang I. G., Pavlov S. T. // Phys. St. Sol. (b). 1978. V. 85. N 1. P. 351—357.
- [6] Траллеро Гинер К., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1980. Т. 21. № 7. С. 2028—2035.
- [7] Траллеро Гинер К., Сотолонго Коста О., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 9. С. 2724—2731.
- [8] Траллеро Гинер К., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 4. С. 1230—1233.
- [9] Trallero Giner C., Lang I. G., Pavlov S. T. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 100. N 2. P. 631—640.
- [10] Nakamura K., Ohno N., Yoshida M., Nakai Y. // Sol. St. Comm. 1980. V. 36. N 1. P. 211—214.
- [11] Yoshida M., Watanabe H., Ohno N., Mitsutaka H., Nakamura K., Nakai Y. // J. Luminescence. 1984. V. 31/32. Pt. 1. P. 488—490.
- [12] Yoshida M., Ohno N., Mitsutake H., Nakamura K., Nakai Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1985. V. 54. N 7. P. 2754—2761.
- [13] Ohno N., Yoshida M., Nakamura K., Nakai Y. // Sol. St. Comm. 1985. V. 53. N 7. P. 569—572.
- [14] Генкин В. М. // ЖЭТФ. 1970. Т. 58. № 6. С. 2005—2011.
- [15] Клочихин А. А., Пермогоров С. А., Резницкий А. Н. // ЖЭТФ. 1976. Т. 71. № 6. С. 2230—2251.
- [16] Goltsev A. V., Lang I. G., Pavlov S. T., Bryzhina M. F. // J. Phys. C.: Sol. St. Phys. 1983. V. 16. N 2. P. 4221—4242.
- [17] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Квантовая механика. М.: ГИФМЛ, 1963.
- [18] Ohno N., Yoshida M., Nakamura K., Nakamura J., Kobayashi K. // J. Phys. Soc. Jap. 1984. V. 53. N 3. P. 1548—1556.

Гаванский университет
Куба

Поступило в Редакцию
27 января 1989 г.

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