

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

КОЛЛЕКТИВНЫЕ ПРОЦЕССЫ
В ПРИМЕСНОМ РЕКОМБИНАЦИОННОМ ИЗЛУЧЕНИИ
ПРЯМОЗОННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

Клоканов А. А., Сенокосов Э. А., Федоров В. М.

Коллективные многочастичные эффекты в полупроводниках приводят к уширению и расщеплению полос люминесценции (ЛМ) свободных экситонов [1], электронно-дырочной жидкости [2] и электронно-дырочной плазмы (ЭДП) [3, 4]. Если в работах [1-3] наблюдались одноплазменные процессы, то авторам работы [4] впервые удалось обнаружить многоплазменную структуру в собственном излучении ЭДП.

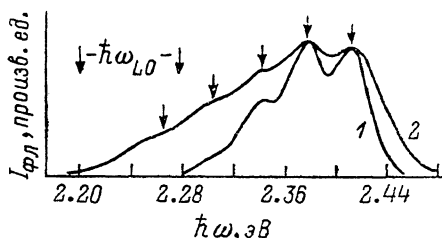


Рис. 1. Полоса зеленой ЛМ эпитаксиальной пленки (0001) $\text{CdS}/\text{Al}_2\text{O}_3$ при решеточной температуре 77 К.

1 — $I=10^{-2} I_0$, 2 — $I=I_0$ (образец 1).

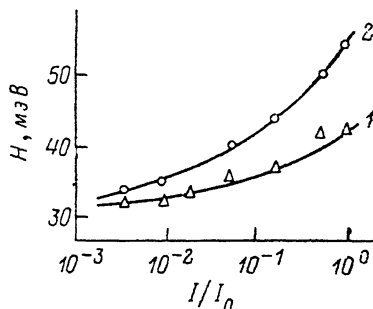


Рис. 2. Зависимость полуширины линий зеленой полосы ЛМ эпитаксиальных пленок (0001) $\text{CdS}/\text{Al}_2\text{O}_3$ от уровня возбуждения при решеточной температуре 77 К.

Образцы: 1 — 2, 2 — 1.

В данной работе исследовалась многоплазменная структура примесной (зеленой) ЛМ в эпитаксиальных пленках (0001) $\text{CdS}/\text{Al}_2\text{O}_3$, выращенных по технологии квазизамкнутого объема. Эксперимент проводился при температуре 77 К и возбуждении образцов с помощью импульсного азотного лазера ЛГИ-21 ($\lambda_r=337.1$ нм). Длительность импульсов была равной 8 нс, а частота их следования — 100 Гц. Максимальный уровень возбуждения составлял $I_0=3 \cdot 10^{22}$ фот/см²·с. Исследовались два типа пленок: низкоомные (образцы 1), у которых при 77 К концентрация равновесных электронов и их подвижность составляли соответственно $N_0=8.5 \cdot 10^{16}$ см⁻³ и $\mu_n=125$ см²/В·с, и высокоомные (образцы 2), у которых при 77 К эти параметры имели значения $N_0 \sim 10^{13}$ см⁻³ и $\mu_n=20-30$ см²/В·с.

На рис. 1 показаны спектры зеленой ЛМ образца 1, снятые при двух различных интенсивностях I оптического возбуждения. Видно, что полоса состоит из бесфоновой линии (514 нм), обусловленной излучательным захватом электронов из зоны проводимости на акцепторный уровень CdS [5, 6], и ее LO -фононных повторений ($\hbar\omega_{LO} \approx 37$ мэВ). При высоких уровнях возбуждения происходит уширение линий полосы, приводящее к сглаживанию LO -фононной структуры. Раскладывая полосу на гауссианы с равной полушириной H , отстоящие друг от друга на величину энергии LO -фононов, можно определить зависимость H

от уровня возбуждения (рис. 2). В области сильного возбуждения, как видно, полуширина растет с I и тем быстрее, чем больше у образцов концентрация равновесных носителей заряда (ср. кривые 1, 2 на рис. 2). Такая закономерность в поведении кривых $H(I)$ коррелирует с характером зависимости концентрации неравновесных носителей заряда ΔN от I при высоких уровнях возбуждения в низкоомных ($\Delta N \sim I$) и высокоомных ($\Delta N \sim \sqrt{I}$) кристаллах CdS.

При низких концентрациях примесей и высоких температурах полоса свободно связанных излучательных переходов в случае невырожденных электронов должна иметь максвелловскую форму с максимумом в точке $\omega_m = \omega_a - \omega_a + +0.5 T$ и полушириной $H=1.8 T$, где ω_a — ширина запрещенной зоны, ω_a — энергия ионизации акцептора, $\hbar = k_0 = 1$. Однако из-за кулоновского взаимодействия носителей, их рассеяния на колебаниях и примесях кристалла такая простая картина редко реализуется на практике. Даже при низких уровнях возбуждения полуширина зеленой полосы в пленках CdS/Al₂O₃ значительно больше величины 1.8 T. С увеличением уровня возбуждения это различие, как видно, усиливается.

Наблюдаемые закономерности можно было бы связать с механизмом примесной излучательной рекомбинации в сильно легированных полупроводниках [7], в которых флуктуация концентрации доноров приводит к «размытию» акцепторного уровня. Повышение температуры или интенсивности возбуждения должно приводить в этом случае к заполнению акцепторных уровней, соответствующему уширению линии ЛМ и ее сдвигу в коротковолновую область спектра. Однако, как видно из рис. 1, с ростом уровня возбуждения не наблюдается сдвига максимума полосы. Кроме того, исследованные пленки CdS нельзя считать сильно легированными, так как при концентрации доноров $N_d \sim 10^{17}$ см⁻³ произведение $N_d a_0^3 \ll 1$, где $a_0 = \hbar^2 \epsilon_0 / m_e e^2 = 2.6 \cdot 10^{-7}$ см. Значит, коротковолновый край зеленой полосы ЛМ должен характеризовать электронную температуру T_e . Как следует из рис. 1, она увеличивается с ростом уровня возбуждения и для образца 1 составляет $T_e = 78$ К при $I = 10^{-2} I_0$ (кривая 1) и $T_e = 150$ К при $I = I_0$ (кривая 2).

Нами установлено, что ширина зеленой полосы ЛМ в пленках CdS/Al₂O₃ обусловлена в основном кулоновским взаимодействием носителей заряда при многоплазмонных оптических переходах. Теория многоплазменной ЛМ для собственных излучательных переходов была развита в работах [8, 9], а для свободно связанных переходов — в [10, 11]. Расчет спектров ЛМ в работах [8–11] проводился с использованием метода коллективных переменных [12], в котором вводятся дополнительные плазменные переменные. Для сохранения неизменным полного числа степеней свободы на волновую функцию системы накладываются дополнительные условия. Однако определить волновую функцию, удовлетворяющую этим условиям, в методе [12] невозможно. Следовательно, невозможно строго определить рамки его применимости.

В данной работе рассчитана форм-функция $F(\omega)$ спектра примесной ЛМ без использования метода коллективных переменных

$$F(\omega) = \exp\left(-\frac{\omega}{T_e}\right) \sum_f |\langle \delta(r_e - r_h) | \Psi_f \rangle|^2 \int_{-\infty}^{\infty} \exp\{-i(\omega - \omega_p - \omega_f)t\} I_f(t) dt. \quad (1)$$

Здесь r_e и r_h — координаты электрона и дырки, ω — частота света. В случае рекомбинации свободного электрона с дыркой на акцепторе (объем кристалла принят равным единице) функция

$$\Psi_f(r_e, r_h) = e^{ik \cdot r_e} (\pi a_0^3)^{-1/2} e^{-r_h/a_h}, \quad \omega_f = \frac{k^2}{2m_e} - \omega_a, \quad a_h = \frac{e^2}{2\epsilon_0 \omega_a}. \quad (2)$$

Производящая функция $I_f(t)$ определяется выражением

$$I_f(t) = \langle \Psi_f | \left\langle T \exp \left[\frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{V}(t_1) dt_1 \right] \right\rangle | \Psi_f \rangle, \quad (3)$$

где T — символ хронологического упорядочения, $\langle \dots \rangle$ — усреднение на матрице плотности электронной плазмы, $\hat{V}(t)$ — оператор кулоновского взаимодействия электрона и дырки с плазмой в представлении Гайзенберга

$$V = \sum_x \rho_x \varphi_{-x}, \quad \rho_x^{\pm} = e \sum_n \left(e^{ix \cdot r_n^{\pm}} - e^{ix \cdot r_n^{\mp}} \right), \quad \varphi_x^{\pm} = \frac{4\pi e}{\epsilon_0 x^2} \left(e^{ix \cdot r_n^{\pm}} - e^{ix \cdot r_n^{\mp}} \right). \quad (4)$$

Статистическое усреднение оператора эволюции (3) выполним, используя метод кумулянтных разложений [13], согласно которому

$$\left\langle T \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{V}(t_1) dt_1 \right\} \right\rangle = \exp \{ g(t) \}, \quad (5)$$

и ограничимся второй кумулянтной (кумулянта первого порядка по V равна нулю)

$$g(t) = \left(\frac{i}{\hbar} \right)^2 \sum_x \int_0^t \int_0^{t_1} dt_2 \varphi_x(t_1) \varphi_{-x}(t_2) \langle \rho_x(t_1) \rho_{-x}(t_2) \rangle. \quad (6)$$

С помощью флуктуационно-диссипационной теоремы [14] находим

$$\langle \rho_x^{\pm}(t_1) \rho_{-x}(t_2) \rangle = \frac{x^2 \epsilon_0}{4\pi^2} \int_0^{\infty} T_{\omega}(t_1 - t_2) \operatorname{Im} \left\{ \frac{\epsilon_0}{\epsilon^*(x, \omega)} \right\} d\omega, \quad (7)$$

где $\epsilon(x, \omega)$ — продольная диэлектрическая проницаемость плазмы [14], характеризующая отклик плазмы на продольные возмущения в линейном приближении,

$$T_{\omega}(t) = n_{\omega} e^{-i\omega t} + (n_{\omega} + 1) e^{i\omega t}, \quad n_{\omega} = [\exp(\omega/T_e) - 1]^{-1}. \quad (8)$$

В длинноволновом пределе [14]

$$\operatorname{Im} \left\{ \frac{\epsilon_0}{\epsilon^*(x, \omega)} \right\} = \frac{\pi}{2} \omega_x \delta(\omega - \omega_x). \quad (9)$$

Здесь ω_x — частота длинноволнового плазмона с волновым вектором x .

Подставляя формулы (9) в (7) и (7) в (6), получим выражение (4) из работы [10] для производящей функции $I_f(t)$ (3). Однако в отличие от работ [10, 11], в которых расчет был выполнен с использованием метода коллективных переменных [12], развитый здесь подход (5)–(7) позволяет учесть не только дальнюю часть кулоновского взаимодействия, которая ответственна за плазменные колебания, но и короткодействующую. Формулы (5)–(7) автоматически учитывают дисперсию и затухание плазмонов, тогда как в длинноволновом пределе (9) затуханием пренебрегают. Таким образом, результаты работ [8–11] могут быть получены из формул (5)–(7) в длинноволновом приближении (9). Следовательно, рамки применимости расчетов [8–11] и приближения (9) [14] совпадают.

В длинноволновом пределе (9), согласно работе [10], полоса ЛМ, связанной с рекомбинацией свободных электронов с дырками, локализованными на акцепторах, состоит из бесплазмонной линии (БПЛ) и ее многоплазмонных повторений. Форма БПЛ и плазмонных повторений является максвелловской. При больших константах плазмовыделения полоса формируется из ~ 10 повторений, отстоящих друг от друга на частоту плазмона. Именно многоплазмонная структура обуславливает ее большую ширину. При высоких температурах ($T_e > \omega_p$) и сильном затухании плазмонов структура полосы не разрешается.

Теперь рассмотрим огибающую плазмонных спутников в пределе сильного плазмовыделения, когда производящую функцию можно представить в виде

$$I_f(t) = \exp \left(-\frac{1}{2} \sigma_2 t^2 \right), \quad \sigma_2 = \frac{4e^2}{\pi^2 \epsilon_0} \int_0^{\infty} dx \int_0^{\infty} \operatorname{cth} \left(\frac{\omega}{2T_e} \right) \operatorname{Im} \left\{ \frac{\epsilon_0}{\epsilon^*(x, \omega)} \right\} d\omega. \quad (10)$$

Интеграл по ω в (10) можно вычислить в классическом пределе [15]

$$\int_0^{\infty} \operatorname{cth}\left(\frac{\omega}{2T_e}\right) \operatorname{Im}\left\{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon^*(x, \omega)}\right\} d\omega = \pi T_e [1 + x^2 \lambda_D^2]^{-1}, \quad \lambda_D = \left(\frac{4\pi N e^2}{\varepsilon_0 T_e}\right)^{-1/2} \quad (11)$$

и для второго момента полосы σ_2 получить выражение

$$\sigma_2 = \frac{2e^2 T_e}{\varepsilon_0 \lambda_D}, \quad \frac{\sigma_2}{\omega_p^2} \gg 1, \quad T_e > \omega_p, \quad \omega_p = \left(\frac{4\pi N e^2}{\varepsilon_0 m_e}\right)^{1/2}. \quad (12)$$

В пределе сильного плазмывыделения ($\sigma_2/\omega_p^2 \gg 1$) кумулянтами более высокого порядка по степеням V и t можно пренебречь. При этом форм-функция $F(\omega)$ (1) с $I_f(t)$ (10) принимает вид

$$F(\omega) = \exp\left(-\frac{\omega}{T_e}\right) \int_0^{\infty} \exp\left\{-\frac{\left(\omega - \omega_g + \omega_a - \frac{k^2}{2m_e}\right)^2}{2\sigma_2}\right\} \frac{k^2 dk}{(1 + k^2 a_h^2)^4}. \quad (13)$$

Считая $ka_h \ll 1$, интеграл (13) можно вычислить точно аналитически. Форма полосы ЛМ (13) близка к гауссовой с полушириной

$$H = 2\sqrt{2\sigma_2 \ln 2}, \quad H \sim (NT_e)^{1/4}. \quad (14)$$

С ростом уровня возбуждения увеличиваются концентрация электронов N и температура плазмы T_e , что приводит к увеличению полуширины полосы $H \sim (NT_e)^{1/4}$ в соответствии с экспериментальными данными, представленными на рис. 2. При $N = 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и $T_e = 78 \text{ К}$ отношение $\sigma_2/\omega_p^2 = 7$. Тогда вклад в полуширину полосы ЛМ, обусловленной многоплазмонными процессами рекомбинации, равен $H \sim 30 \text{ мэВ}$. Экспериментальное значение полуширины $H = 33 \text{ мэВ}$.

Таким образом, значения полуширины полосы примесной ЛМ в эпитаксиальных пленках $\text{CdS}/\text{Al}_2\text{O}_3$ и характер ее зависимости от уровня возбуждения согласуются с теоретическими результатами (13), (14). Следовательно, многоплазмонный механизм ее уширения является доминирующим как при высоких, так и низких уровнях возбуждения.

Л и т е р а т у р а

- [1] Зиновьев Н. Н., Яропецкий И. Д. — Письма ЖЭТФ, 1981, т. 33, в. 2, с. 109—112.
- [2] Кукушкин И. В. — ЖЭТФ, 1983, т. 84, в. 5, с. 1840—1847.
- [3] Лукашевич П. Г. — ФТП, 1986, т. 20, в. 9, с. 1731—1733.
- [4] Ву Зоан Мьен, Сенокосов Э. А., Стойкова В. Г., Усатый А. Н., Чукичев М. В. — ФТП, 1985, т. 19, в. 9, с. 1571—1576.
- [5] Ермолович И. Б., Любченко А. В., Шейнкман М. К. — ФТП, 1968, т. 2, в. 11, с. 1639—1643.
- [6] Ленсверидзе Д. С., Моин М. Д., Сальков Е. А., Хвостов В. А., Шенельский Г. А. — ФТП, 1975, т. 9, в. 10, с. 1983—1986.
- [7] Леванюк А. П., Осипов В. В. — УФН, 1981, т. 133, в. 3, с. 427—477.
- [8] Клюканов А. А., Сенокосов Э. А. — ФТП, 1987, т. 21, в. 11, с. 2103—2106.
- [9] Вавилов В. С., Клюканов А. А., Сенокосов Э. А., Чиботару Л. Э., Чукичев М. В. — ФТТ, 1988, т. 30, в. 2, с. 614—617.
- [10] Клюканов А. А. — ФТТ, 1987, т. 29, в. 5, с. 1529—1532.
- [11] Клюканов А. А., Сенокосов Э. А., Сергеев С. А., Федоров В. М. — Деп. в МолдНИ-ИНТИ, № 715-М. Кишинев, 1986. 5 с.
- [12] Bohm D., Pines D. — Phys. Rev., 1953, v. 92, N 3, p. 609—625.
- [13] Kubo R. — J. Phys. Soc. Japan, 1962, v. 17, N 7, p. 1100—1120.
- [14] Платцман Ф., Вольф П. Волны и взаимодействия в плазме твердого тела. М., 1975. 436 с.
- [15] Климонтович Ю. Л. — УФН, 1987, т. 151, в. 2, с. 309—332.

Кишиневский государственный университет
им. В. И. Ленина

Получено 4.01.1987
Принято к печати 28.07.1988