

Рассеяние света электронами в области экситонного поглощения GaAs

© С.О. Когновицкий, В.В. Травников, Я. Аавиксоо, И. Рейманд

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
Институт физики Академии наук Эстонии,
EE-2400 Тарту, Эстония

(Поступила в Редакцию 14 августа 1996 г.
В окончательной редакции 4 октября 1996 г.)

Исследовано влияние дополнительной генерации фотовозбужденных электронов на спектры экситонного поглощения и люминесценции сверхчистых образцов GaAs при $T = 2$ К. Показано, что обнаруженное увеличение коэффициента поглощения для основного ($n = 1$) экситонного состояния связано с поляритонным характером энергетического спектра этого состояния и обусловлено увеличением поляритонного затухания. Рост затухания при генерации электронов вызывается процессами рассеяния поляритонов на горячих электронах в процессе термализации последних. При этом происходит нагрев поляритонов. Причиной изменений, обнаруженных в спектрах люминесценции, является обратный процесс—нагрев электронов и охлаждение поляритонов.

Энергетические состояния экситонов и свободных носителей формируют энергетический спектр в области собственного поглощения полупроводников. При фотовозбуждении носители и экситоны могут взаимодействовать между собой. Это взаимодействие носит двоякий характер. С одной стороны, воздействие свободных носителей за счет экранирования кулоновского взаимодействия может изменять энергетический спектр полупроводника (положение края запрещенной зоны, энергию связи и силу осциллятора экситона и т.д.). С другой стороны, экситон-электронное взаимодействие может приводить к рассеянию экситонов и электронов друг на друге в пределах своих зон. Экранирование обычно проявляется при больших интенсивностях фотовозбуждения. В частности, в спектрах поглощения экранирование может приводить к полному исчезновению экситонных линий [1–3]. Рассеяние экситонов и электронов друг на друге проявляется при умеренных интенсивностях возбуждения. До сих пор оно исследовалось при изучении спектров люминесценции и проявлялось в основном либо в особенностях формы линий излучения основного экситонного состояния [4,5], либо в особенностях кинетики излучения этого состояния [6,7]. Целью данной работы являлось выяснение влияния экситон-электронного рассеяния на спектры поглощения света.

1. Экспериментальные результаты

В настоящей работе исследовались тонкие (~ 500 nm) кристаллы GaAs, которые получались путем полировки и последующего химического травления из образцов, аналогичных сверхчистым образцам, использованным в работах [6–8]. Спектры поглощения исследовались при $T = 2$ К в спектральной полосе "пробного" пучка света, выделяемой монохроматором МДР-12 из сплошного спектра лампы накаливания. Полоса подбиралась

таким образом, чтобы свести к минимуму возбуждение свободных носителей и надежно измерять линии поглощения основного ($n = 1$) и возбужденного ($n = 2$) экситонных состояний. Накачка свободных носителей осуществлялась двумя способами. В первом случае она выполнялась с помощью непрерывного гелий-неонового или аргонового лазера ($\lambda = 632.8$ или 514.5 nm). Излучение в этом случае регистрировалось с помощью стандартной методики счета фотонов. Во втором случае для генерации носителей использовался импульс лазера на красителе длительностью 5 ps, а полуширина аппаратной функции системы регистрации составляла 300 ps. Импульсное возбуждение и регистрация использовались нами также и при исследовании временной кинетики люминесценции. Накачка носителей приводит не только к изменению пропускания, но и к появлению в области экситонных резонансов люминесценции, интенсивность которой в некоторых случаях была сравнимой с интенсивностью сигнала пропускания. Далее представлены результаты измерения "чистого" пропускания, которые получались вычитанием сигнала люминесценции из суммарного регистрируемого сигнала.

На рис. 1 спектр 1 является исходным спектром пропускания, полученным без дополнительной подсветки. Спектр 2 получен в тех же условиях, но при одновременной генерации носителей непрерывным He–Ne-лазером (интенсивность фотовозбуждения (I_{ex}) в этом случае равнялась $I_{ex} = 1$ W/cm²). Дополнительная генерация носителей существенным образом меняет спектр пропускания. Характер изменения поглощения для основного и возбужденного состояний диаметрально противоположен. В области основного состояния поглощение при генерации свободных носителей увеличивается, а в области максимума возбужденного состояния оно уменьшается. Аналогичные результаты получены и при импульсной подсветке.

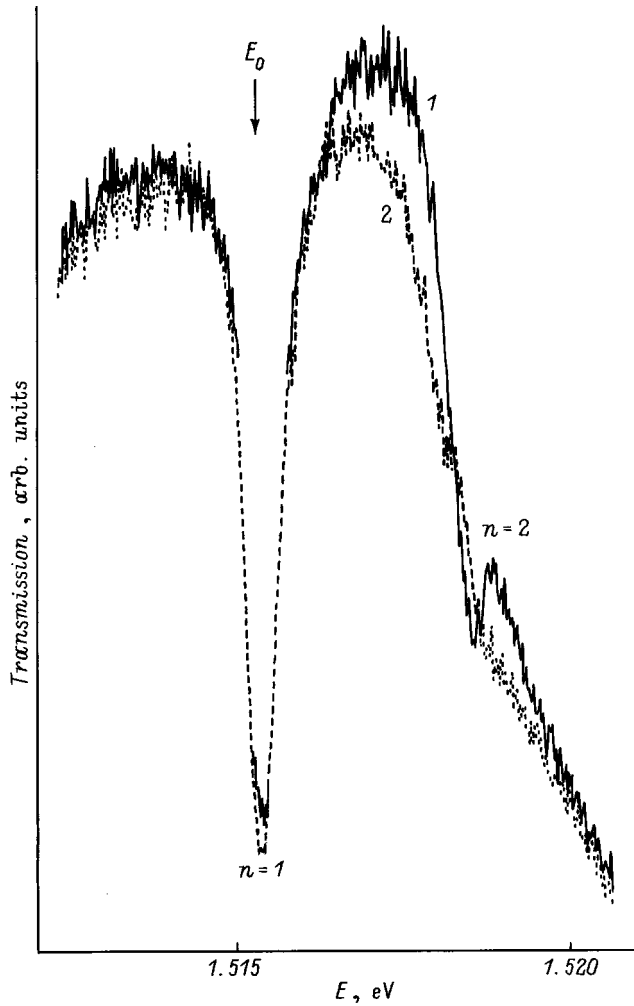


Рис. 1. Спектр пропускания тонкого образца GaAs без (1) и при (2) одновременной добавочной фотогенерации носителей. Стрелка E_0 соответствует энергии дна зоны основного экситонного состояния.

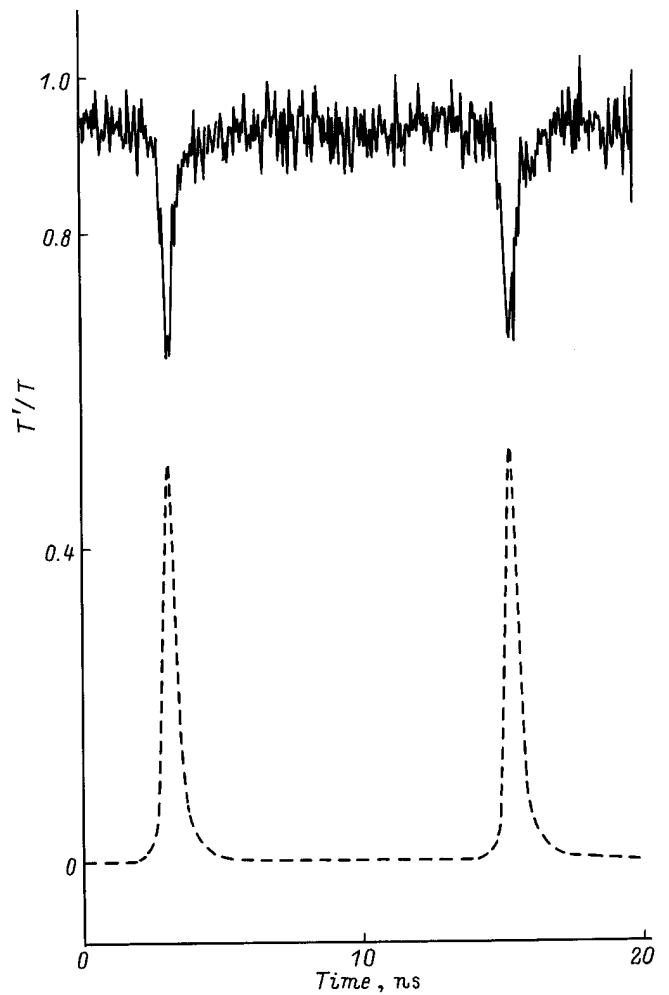


Рис. 2. Временная зависимость отношения сигнала пропускания с подсветкой к величине сигнала пропускания без подсветки. Штриховой линией представлен импульс возбуждающего лазера.

На рис. 2 представлена развертка во времени величины отношения сигнала пропускания с подсветкой (T') к величине сигнала пропускания без подсветки (T). Сигнал пропускания регистрировался на длине волны, соответствующей максимуму поглощения основного состояния. Из рис. 2 видно, что при импульсной подсветке, как и в случае непрерывной, поглощение в области основного состояния возрастает.

С ростом накачки наряду с изменениями в спектре пропускания происходят изменения и в спектре люминесценции исследованных тонких образцов. На рис. 3 представлены спектры люминесценции одного из тонких образцов при двух значениях интенсивности возбуждающего света. Спектр 1 соответствует спектру люминесценции тонкого образца, полученному при минимально возможной интенсивности подсветки, когда никаких изменений в спектре поглощения не наблюдается. Спектр 2 получен при $I_{ex} = 7 \text{ W/cm}^2$, когда изменения в спектре поглощения весьма существенны.

Рис. 3 показывает, что интенсивности подсветки, существенно меняющие спектр поглощения, изменяют заметным образом и спектр люминесценции. Несмотря на некоторые отличия (связанные в основном с уменьшением относительной интенсивности излучения связанных экситонов [9]) общей формы спектров люминесценции тонких образцов от формы спектров люминесценции толстых образцов, исследованных нами ранее [8], общие закономерности изменения спектров люминесценции с ростом накачки одинаковы. Наиболее примечательной особенностью этого изменения является возникновение в области ниже энергии E_0 (E_0 — энергия дна экситонной зоны основного состояния) интенсивного длинноволнового хвоста линии поляритонной люминесценции (спектр 2 на рис. 3). При минимальной I_{ex} этот хвост практически отсутствует (спектр 1). В толстых образцах хвост проявляется как "подставка" для линий D^0X , D^+X , A^0X , соответствующих излучению связанных экситонов. Спектральное положение линий излучения связанных

экситонов для кристаллов GaAs на рис. 3 указано стрелками. Сопоставление с положением стрелок показывает, что появляющийся с ростом I_{ex} хвост длинноволнового излучения располагается в спектральной области, соответствующей излучению связанных экситонов. Чтобы исключить сомнения, обусловленные возможной связью рассматриваемого хвоста с излучательной рекомбинацией связанных экситонов, мы провели исследование временной кинетики люминесценции одного из тонких образцов, в спектре люминесценции которого присутствовала отчетливая линия D^+X . Интегрированный по времени спектр люминесценции этого образца, полученный при импульсном возбуждении, представлен на вставке к рис. 4. Стрелками a, b, c, d на этой вставке указаны точки спектра, для которых исследовалась временная кинетика. Импульс люминесценции 1 на рис. 4 соответствует кинетике поляритонного излучения на энергии E_0 (стрелка a), а импульс 2 — кинетике излучения связанного экситона D^+X (стрелка c). Кинетика излучения в точках, отмеченных стрелками b и d , практически неотличима от кинетики резонансного поляритонного излучения (импульс 1), и поэтому соответствующие им-

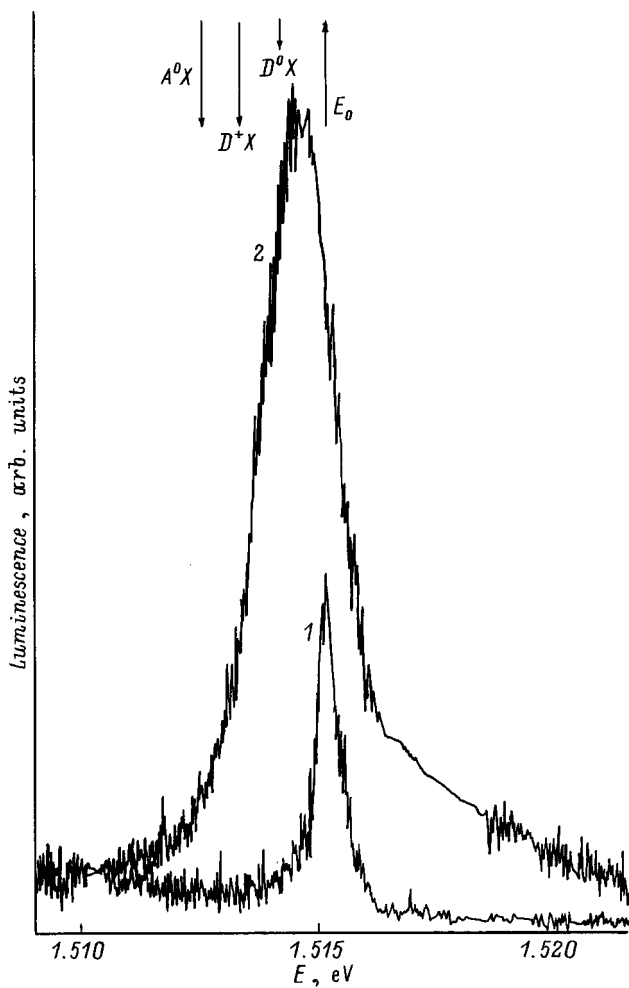


Рис. 3. Спектры люминесценции тонкого образца при двух значениях интенсивности возбуждающего света.

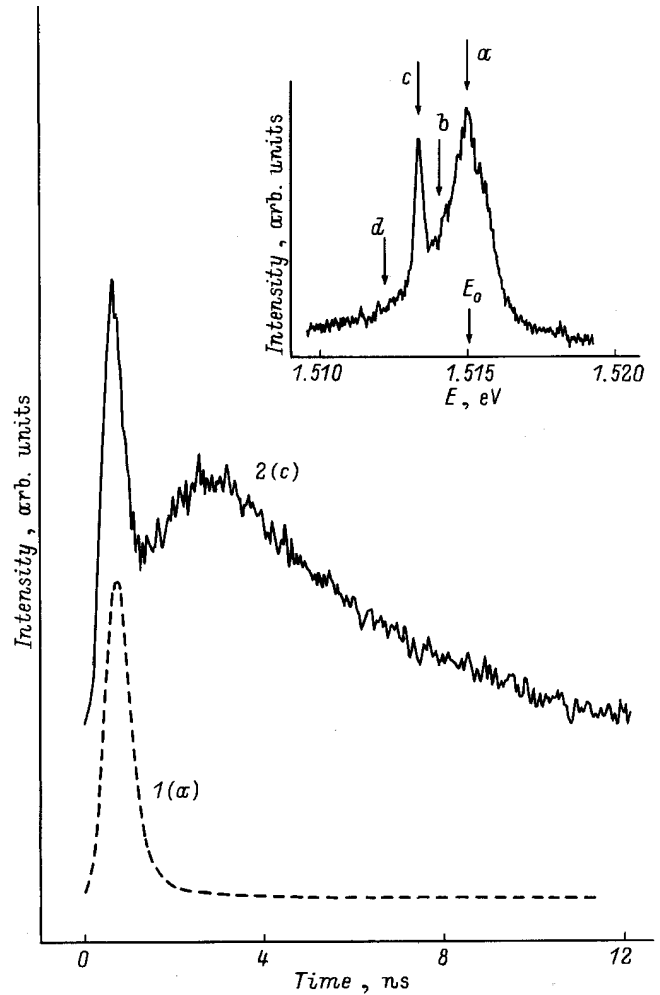


Рис. 4. Кинетика излучения для разных участков спектра поляритонной люминесценции одного из исследованных тонких образцов GaAs. На вставке представлен спектр люминесценции образца. Стрелками указаны участки спектра, для которых измерялась временная зависимость интенсивности излучения.

пульсы на рис. 4 не представлены. Затянутый во времени спад излучения D^+X соответствует большим временам излучательной рекомбинации, характерным для связанных экситонов [10]. Одинаковость кинетики для излучения, соответствующего разным точкам длинноволнового хвоста, и излучения из области резонанса свидетельствует в пользу их одинакового происхождения.

2. Обсуждение результатов

Результаты по изменению поглощения при генерации носителей являются довольно необычными. В выполненных ранее экспериментах дополнительная подсветка фотонами с энергией $E > E_g$ приводила не к увеличению, а к уменьшению поглощения в области максимума основного экситонного состояния. Это наблюдалось как при воздействии короткими импульсами большой интенсив-

ности [1–3], так и при модуляции поглощения на малых частотах слабо интенсивными потоками фотонов [11].

В экспериментах по фотопоглощению [11] наблюдаемая модуляция пропускания объяснялась изменением эффективной глубины поглощения в результате изменения приповерхностного поля за счет перезарядки поверхностных центров. Изменение приповерхностного поля довольно медленный процесс [11], и в нашем случае оно вряд ли может отвечать за основной эффект воздействия подсветки, поскольку, как это видно из рис. 2, максимальная модуляция пропускания происходит за короткие времена, сопоставимые с временным разрешением установки. Следует, однако, отметить, что существует и длинновременная компонента воздействия подсветки на спектр пропускания. На это указывает отличие величины T'/T от единицы в промежутке между импульсами возбуждения. В данной работе мы не будем обсуждать механизм этой длинновременной модуляции пропускания. Что же касается быстрой компоненты воздействия подсветки, то остается предположить, что она связана с воздействием носителей на объемный коэффициент поглощения.

Основным параметром, определяющим коэффициент экситонного поглощения, является затухание экситонов Γ . Для выделенного экситонного резонанса в зависимости от соотношения величины Γ и некоторой критической величины затухания Γ_c , определяемой силой осциллятора рассматриваемого экситонного резонанса, существуют две альтернативные возможности рассмотрения свойств экситонного резонанса [12,13]. При $\Gamma < \Gamma_c$ необходим учет поляритонного эффекта. Коэффициент поглощения поляритонов α прямо пропорционален величине затухания Γ [14]

$$\alpha = \Gamma/v, \quad (1)$$

где v — групповая скорость поляритонов. Если $\Gamma > \Gamma_c$, экситоны и фотоны в кристалле могут рассматриваться как независимые квазичастицы. В этом случае линия экситонного поглощения аппроксимируется лоренцевским контуром, и величина коэффициента поглощения на частоте резонанса обратно пропорциональна величине Γ ($\alpha(E_0) \sim 1/\Gamma$).

Результаты, представленные на рис. 1, с учетом вышесказанного однозначно указывают на то, что генерация носителей приводит к увеличению затухания экситонов. Для состояния $n = 1$ реализуется поляритонный подход ($\Gamma < \Gamma_c$) [8], и поэтому генерация носителей приводит к возрастанию коэффициента поглощения. Для возбужденного состояния ситуация соответствует случаю $\Gamma > \Gamma_c$. Это и понятно, поскольку сила осциллятора состояния $n = 2$ в 8 раз меньше силы осциллятора состояния $n = 1$, а его затухание за счет возможности перехода в $n = 1$ существенно больше. В дальнейшем мы будем анализировать лишь изменения, происходящие в области состояния $n = 1$, для которого справедлив поляритонный подход и для которого возможна оценка параметров, определяющих величину экситонного коэффициента поглощения.

Для экспериментальной оценки изменения величины экситонного затухания ($\Delta\Gamma$) нами измерена величина изменения экситонного поглощения на частоте, соответствующей максимуму поглощения линии $n = 1$. Оказалось, что коэффициент поглощения при $I_{\text{ex}} = 5 \text{ W/cm}^2$ увеличивается на величину, равную $\Delta\alpha = 0.5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$. При оценке величины $\Delta\alpha$ нами учитывалось измеренное изменение коэффициента отражения, которое также имеет место при подсветке. Используя значение групповой скорости для поляритонов нижней ветви на энергии, соответствующей максимуму поглощения, находим, что затухание в области резонанса возрастает на величину, равную $\Delta\Gamma = 7.4 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$.

Величина экситонного затухания определяется всеми процессами ухода поляритонов из состояния с заданной энергией и волновым вектором. Схематически процессы, определяющие затухание поляритонов, представлены на рис. 5. Обычно (см., например, [14,15]) при рассмотрении процессов, определяющих Γ , учитывались процессы ухода в другие поляритонные состояния за счет неупругого рассеяния на фононах (акустических (LA) и оптических (LO)) и упругого рассеяния на примесях (imp), а также процессы безызлучательной (nr) гибели экситонов (рис. 5,а):

$$\Gamma = \Gamma_{LA} + \Gamma_{LO} + \Gamma_{\text{imp}} + \Gamma_{\text{nr}}. \quad (2)$$

В принципе дополнительное возбуждение носителей может изменять все указанные в уравнении (2) парциальные величины Γ . За счет антистоксовых процессов рассеяния на фононах (LA^+ , LO^+) (рис. 5,а), рождающихся в ходе энергетической релаксации свободных носителей, могут увеличиваться значения Γ_{LO} и Γ_{LA} . Однако использованные нами небольшие интенсивности возбуждения не могут привести к существенному изменению чисел заполнения в фоновой подсистеме [16], и поэтому взаимодействие с фононами вряд ли может быть причиной увеличения Γ . При дополнительной генерации носителей могут меняться и величины затухания, обусловленные взаимодействием экситонов с примесями. С одной стороны, с ростом концентрации фотовозбужденных носителей происходит насыщение центров безызлучательной гибели экситонов, и величина Γ_{nr} может уменьшаться. С другой стороны, может возрастать величина Γ_{imp} , обусловленная упругим рассеянием экситонов на различных центрах, поскольку после локализации на них носителей они из центров захвата могут превращаться в центры упругого рассеяния [8,17]. Оценить изменение затухания за счет взаимодействия экситонов с примесями практически невозможно, поскольку нам неизвестны ни тип, ни концентрация центров, определяющих величины Γ_{nr} и Γ_{imp} . Можно лишь сказать, что подходящее для объяснения экспериментальных результатов увеличение Γ_{imp} должно компенсироваться соответствующим уменьшением величины Γ_{nr} , что ставит под сомнение объяснение наблюдаемого эффекта и за счет взаимодействия с примесями.

При генерации носителей в полупроводнике вклад в затухание поляритонов помимо рассмотренных процессов могут вносить также процессы ухода поляритонов

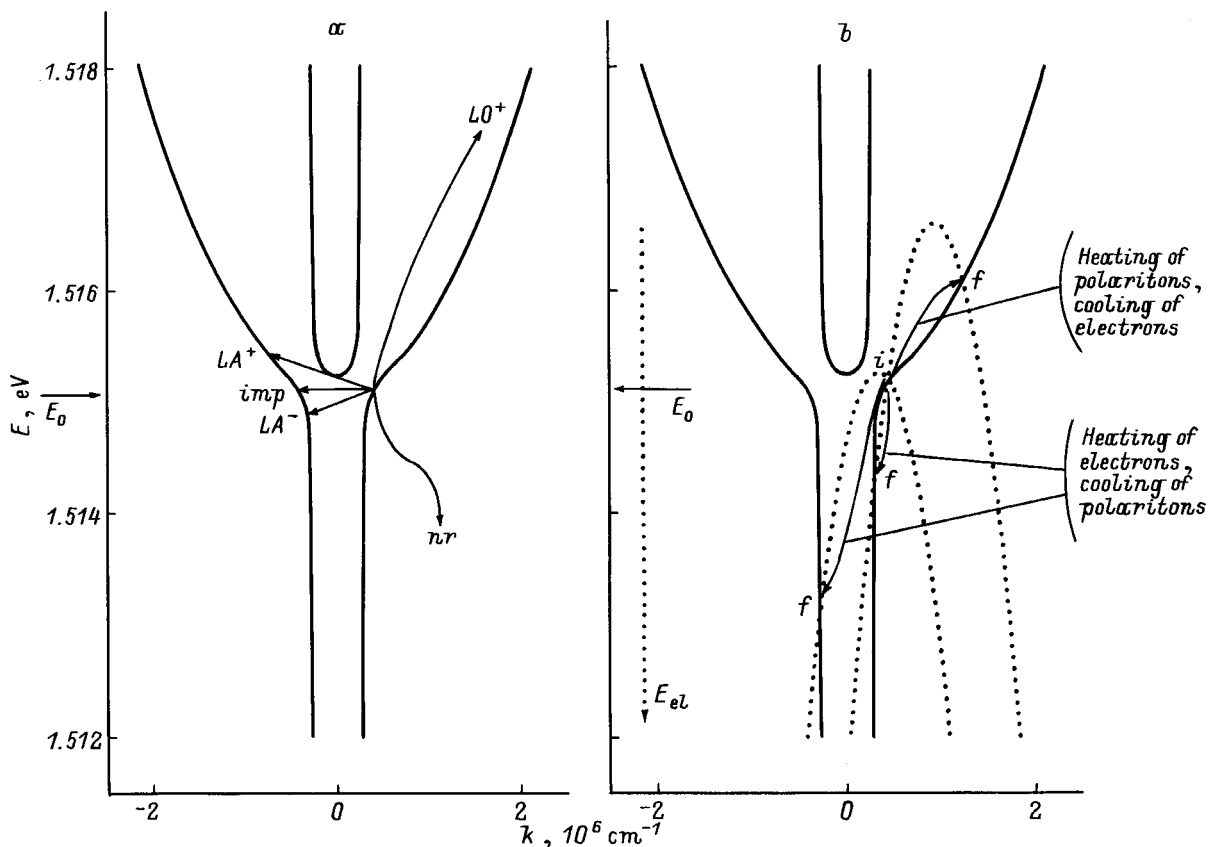


Рис. 5. Энергетическая диаграмма процессов, ответственных за затухание поляритонов. Сплошными линиями представлены дисперсионные кривые поляритонов, а пунктиром — параболы, соответствующие зоне проводимости.

в другие состояния за счет непосредственного рассеяния поляритонов на носителях. В первом приближении величина соответствующего затухания может быть оценена как вероятность рассеяния экситона (без учета поляритонных эффектов) на носителях [7,18]

$$\Gamma = 20\hbar a_x n / m, \tag{3}$$

где a_x — борковский радиус экситона, n и m — концентрация и эффективная масса носителя. Формула (3) показывает, что эффективность взаимодействия возрастает с увеличением борковского радиуса и уменьшением эффективной массы носителя. В GaAs борковский радиус экситона довольно велик ($a_x = 14$ nm), а эффективная масса электрона мала ($m_e = 0.06m_0$), она существенно меньше эффективной массы дырки ($m_h = 0.5m_0$). Это приводит к эффективному взаимодействию экситонной и электронной подсистем в GaAs, наблюдавшемуся ранее в особенностях временной кинетики экситонной люминесценции примерно при таких же интенсивностях фотовозбуждения [6,8], которые использованы нами для дополнительной подсветки.

Оценим, каким концентрациям электронов соответствует измеренное значение $\Delta\Gamma$, если предположить, что оно полностью обусловлено экситон-электронным взаимодействием. Для этого воспользуемся формулами

(1), (3), взяв величину групповой скорости на энергии, соответствующей максимуму поглощения. В результате получаем $n = 1.5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Это вполне разумное значение концентрации для использованных нами интенсивностей накачки. Для $I_{ex} = 5 \text{ W/cm}^2$ такая концентрация электронов соответствует времени жизни свободных электронов, равному $\tau = 1 \cdot 10^{-11} \text{ s}$. Это время заметно меньше величины τ , использованной нами ранее для толстого образца. Такое уменьшение обусловлено, очевидно, увеличением влияния поверхностной рекомбинации на время жизни в тонком образце.

Таким образом, приведенные оценки разумно согласуются с предположением о том, что наблюдаемые при генерации носителей изменения в спектре поглощения обусловлены экситон-электронным рассеянием.

Веским доводом в пользу того, что наблюдаемые в эксперименте изменения спектров экситонного поглощения связаны с экситон-электронным рассеянием, а не с процессами взаимодействия экситонов с фононами и примесями, является и то, что ни один из этих процессов не может объяснить возникновение длинноволнового хвоста излучения, появляющегося при генерации носителей. В то же время в рамках модели экситон-электронного рассеяния появление хвоста находит естественное объяснение.

Схематически процессы рассеяния, приводящие к образованию хвоста, представлены на рис. 5, *b*. На этом рисунке для наглядности начальная точка для процесса рассеяния в зоне проводимости и начальная точка на нижней поляритонной ветви совмещены в точке *i*. В связи с тем, что в силу закона сохранения энергии знаки изменения энергии поляритонов и электронов противоположны, ось кинетической энергии электронов на рисунке направлена вниз. Рис. 5, *b* ясно показывает, что в результате взаимодействия с электронами поляритоны могут непрерывным образом заселять состояния в области существенно ниже резонанса, формируя таким образом хвост линии поляритонной люминесценции. Поскольку заселение участков в области ниже резонанса происходит за счет рассеяния поляритонов, скапливающихся в области резонанса, кинетика излучения поляритонов в различных участках длинноволнового хвоста должна быть примерно одинаковой, что и наблюдается в эксперименте.

В [6,7] показано, что электрон-экситонное рассеяние может приводить к существенному гашению поляритонной люминесценции на ранних стадиях энергетической релаксации горячих электронов. На рис. 5, *b* этому соответствуют процессы, представленные в верхней части рисунка. Эти процессы сопровождаются охлаждением электронов и разогревом экситонной подсистемы. За формирование длинноволнового хвоста поляритонного излучения отвечает обратный процесс – разогрев электронов и охлаждение экситонной подсистемы (нижняя часть рисунка). Несмотря на то что этот обратный процесс весьма заметно проявляется в наблюдаемых спектрах люминесценции, основное влияние на величину экситонного затухания оказывает, очевидно, процесс разогрева экситонной подсистемы, поскольку плотность конечных состояний для этого процесса существенно превышает плотность фотоподобных состояний в области ниже резонанса.

Эффекты экситон-электронного рассеяния играют, по видимому, существенную роль и при больших плотностях возбуждения, когда влияние на спектр экситонного поглощения оказывают эффекты экранирования [1–3]. Экранирование уменьшает энергию связи экситона, приводя к увеличению его боровского радиуса, что наряду с увеличением концентрации электронов приводит к увеличению вероятности экситон-электронного рассеяния.

Таким образом, в отличие от ранее выполненных экспериментов при подсветке фотонами, создающими носители, обнаружено существенное уменьшение пропускания света в области основного экситонного состояния кристаллов GaAs. Наблюдаемый эффект объясняется ростом величины затухания экситонов за счет их рассеяния на электронах. Отличие от выполненных ранее экспериментов связано с тем, что в использованном диапазоне интенсивностей подсветки в наших сверхчистых образцах для основного состояния реализуется поляритонный подход, в котором увеличение затухания приводит к росту коэффициента поглощения.

Авторы признательны Л.М. Федорову за предоставленные для исследований сверхчистые кристаллы GaAs и Н.Д. Ильинской за изготовление тонких образцов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Международного научного фонда.

Список литературы

- [1] J. Shah, R.F. Leheny, W. Wiegmann. Phys. Rev. **B16**, 4, 1577 (1977).
- [2] C.V. Shank, R.L. Fork, R.F. Leheny, J. Shah. Phys. Rev. Lett. **42**, 2, 112 (1979).
- [3] G.W. Fehrenbach, W. Schafer, J. Treusch, R.G. Ulbrich. Phys. Rev. Lett. **49**, 17, 1281 (1982).
- [4] K. Aoki, T. Kinugasa, K. Yamamoto. Phys. Lett. **72A**, 1, 63 (1979).
- [5] E. Gobel, K.L. Shaklee, R. Epworth. Solid State Commun. **17**, 9, 1185 (1975).
- [6] J. Aaviksoo, I. Reimand, V.V. Rossin, V.V. Travnikov. Phys. Rev. **B45**, 3, 1473 (1992).
- [7] Я. Аавиксоо, И. Рейманд, В.В. Россин, В.В. Травников. ФТТ **36**, 5, 1470 (1994).
- [8] Ю.В. Жилиев, Г.Р. Маркарян, В.В. Россин, Т.В. Россина, В.В. Травников. ФТТ **28**, 9, 2688 (1986).
- [9] W.L. Bloss, E.S. Koteles, E.M. Brody, B.J. Sowell, J.P. Salerno, J.V. Cormly. Solid State Commun. **54**, 1, 103 (1985).
- [10] Э.И. Рашба. ФТП **8**, 7, 1241 (1974).
- [11] А.В. Варфоломеев, Р.П. Сейсян, Ю.Л. Шелехин. ФТП **10**, 6, 1063 (1976).
- [12] W.C. Tait. Phys. Rev. **B5**, 2, 648 (1972).
- [13] M. Matsushita, I. Wicksted, H.Z. Cummins. Phys. Rev. **B29**, 6, 3362 (1984).
- [14] W.C. Tait, R.L. Weiher. Phys. Rev. **178**, 3, 1404 (1969).
- [15] В.В. Травников, В.В. Криволапчук. ЖЭТФ **85**, 12, 2087 (1983).
- [16] J. Shah. Sol. State Electron. **21**, 1, 43 (1978).
- [17] В.В. Травников, В.В. Криволапчук. ФТТ **28**, 4, 1210 (1986).
- [18] R.C.C. Leite, J. Shah, J.P. Gordon. Phys. Rev. Lett. **23**, 23, 1332 (1969).