

УДК 621.315.592

© 1991

КРАЕВОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ZnSe ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА И ПЛАЗМОН-ФОНОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ

В. С. Вавилов, А. А. Клюканов, Э. А. Сенокосов,
Л. Э. Чиботару, М. В. Чукичев

Исследована катодолюминесценция эпитаксиальных пленок ZnSe при высоких уровнях возбуждения в широком температурном интервале. Показано, что спектральное положение полос излучения определяется взаимодействием электронно-дырочной пары с продольными оптическими фононами и плазмонами. Рассчитана форма бесплазменной полосы и ее LO -фононного повторения и найдено, что при высоких температурах интенсивность однофононного повторения становится выше интенсивности бесфононной полосы. Развита теория многоплазменной люминесценции с учетом смешивания фононов и плазмонов и показано, что при низких концентрациях электрон и дырка взаимодействуют как с нижней, так и с верхней ветвью плазмон-фононных колебаний, тогда как при высоких концентрациях свободных носителей заряда взаимодействие с нижней ветвью исчезает благодаря экранировке полей ионов плазмой. Благодаря кулоновскому взаимодействию в плазме обе полосы при высоких уровнях возбуждения являются широкими настолько, что LO -фононная структура не разрешается.

Уширение полос люминесценции (ЛМ) в полупроводниках при высоких уровнях возбуждения обусловлено в основном кулоновским взаимодействием рекомбинирующих электронов и дырок с низкочастотной модой плазменных колебаний [1-5]. В работах [1-4] исследовалась многоплазменная ЛМ в эпитаксиальных пленках ZnSe и ZnTe при сравнительно невысоких концентрациях N электронно-дырочных ($e-h$) пар, когда выполняется неравенство $\omega_p < \omega_0$; $\omega_p = [4\pi Ne^2/\epsilon_0\mu]^{1/2}$, ω_0 — частоты плазмона и LO -фонона. В этом случае связыванием фононов и плазмонов можно пренебречь. Действительно, при $N=10^{17}$ см⁻³ в ZnSe энергия плазмонов равна $\hbar\omega_p=12$ мэВ, а $\hbar\omega_0=31$ мэВ, тогда как корни полной диэлектрической функции [5] дают $\hbar\omega_+=32.1$ и $\hbar\omega_-=11.6$ мэВ. Тем не менее ситуация, когда $\omega_p \geq \omega_0$, в настоящее время экспериментально вполне достижима. Побочная смешанная плазмон-фононная полоса наблюдалась, например, в кристаллах CdS [6]. Поэтому представляет интерес обобщение результатов работ [1-4] на случай достаточно высоких концентраций свободных носителей заряда, при которых $\omega_p \geq \omega_0$ и излучательные переходы сопровождаются поглощением или излучением смешанных плазмонов и фононов. Данная работа посвящена исследованию интерференции плазмонного и LO -фононного механизмов взаимодействия $e-h$ пар в разогретой электронно-дырочной плазме (ЭДП) эпитаксиальных пленок ZnSe. Концентрация и подвижность равновесных электронов составляли при 293 К соответственно $N_0 \approx 10^{10}$ см⁻³ и $\mu=190 \div 250$ см²/В·с. Условия возбуждения слоев были такими же, как и в работах [2-4].

На рис. 1 представлены спектры катодолюминесценции (КЛ) при максимальной плотности тока возбуждения и различных температурах кристалла (T , К: 1 — 40, 2 — 66, 3 — 195, 4 — 303). Особенности крайних полос излучения являются их аномально большая ширина и смеще-

ние с j в длинноволновую область спектра. Согласно результатам работ [3, 4], моттовский переход в ЭДП осуществляется при выполнении неравенства

$$a_B/\lambda_D > 0.5, \quad a_B = \hbar^2 \epsilon_0 / \mu e^2, \quad \lambda_D = [\epsilon_0 k_0 T_e / 8\pi N e^2]^{1/2}. \quad (1)$$

Обычно используемый критерий перехода $a_B/\lambda_D > 1.19$ [7] более жесткий, так как в нем не учитывается сдвиг $\Delta\omega_g$ ширины запрещенной зоны, обусловленный взаимодействием $e-h$ пары с невырожденной плазмой [2, 4]

$$\Delta\omega_g = \frac{a}{2} \omega_p, \quad a = 2 \frac{e^2}{\epsilon_0 \lambda_D \hbar \omega_p} = 4 \left[\frac{R}{k_0 T_e} \right]^{1/2}, \quad R = \frac{\mu e^4}{2 \hbar^2 \epsilon_0^2}. \quad (2)$$

Для вырожденной плазмы в формуле (1) λ_D необходимо заменить на радиус Томаса—Ферми. Согласно (1), при $N < 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $T_e > 100 \text{ К}$

полосы излучения ZnSe (рис. 1) обусловлены рекомбинацией $e-h$ пар в невырожденной ЭДП. Однако объяснить спектральное положение этих полос с помощью только многоплазмонного механизма ЛМ (2) невозможно.

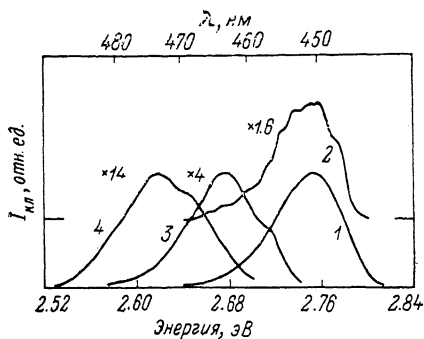


Рис. 1. Спектры краевого излучения эпитаксиального слоя ZnSe при различных температурах образца и плотности тока возбуждения $j=20 \text{ А/см}^2$ ($E=50 \text{ кВ}$).

Учет взаимодействие $e-h$ пары с полным зарядом ρ_{-x}

$$V(r) = \sum_x v_x \rho_x \rho_{-x}, \quad \rho_x = e [e^{ixr\hbar} - e^{ixr_e}], \quad v_x = 4\pi/\epsilon_\infty V x^2, \quad (3)$$

которое включает как взаимодействие с плазмой ρ_x^{pl} , так и с колебаниями решетки ρ_x^{ph} в сплошной среде с высокочастотной диэлектрической проницаемостью ϵ_∞ ($\rho_x = \rho_x^{pl} + \rho_x^{ph}$). При малых плазменных частотах $\omega_p < \omega_0$ правильный учет поляризации решетки должен привести к замене ϵ_∞ на статическую диэлектрическую проницаемость ϵ_0 в кулоновском взаимодействии $e-h$ пары с плазмой. Дальнейший расчет функции формы полосы ЛМ выполнен по схеме, подробно изложенной в работах [3, 4]. В соответствии с этой схемой производим усреднение по термодинамическому состоянию плазмы и фононов и приходим к замене их взаимодействия с $e-h$ парой (3) фазой влияния, т. е. запаздывающим взаимодействием $e-h$ пары с самой собой. В отличие от работ [3, 4] фаза влияния определяется через парную корреляционную функцию полной плотности заряда ρ_x , а не ρ_x^{pl} , как в [3, 4]. Выражая $\langle \rho_x(t_1) \rho_{-x}(t_2) \rangle$ с помощью флуктуационно-диссипационной теоремы через полную продольную диэлектрическую функцию $\epsilon(x, \omega)$ [8], характеризующую отклик системы на продольное возмущение, находим

$$g^{(2)}(t) = - \sum_x \frac{v_x}{\hbar \pi} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \rho_x(t_1) \rho_{-x}(t_2) \int_0^\infty T_\omega(t_1 - t_2) \text{Im} \left[\frac{\epsilon_\infty}{\epsilon^*(x, \omega)} \right] d\omega, \\ T_\omega(t) = n_\omega e^{-i\omega t} + (n_\omega + 1) e^{i\omega t}, \quad n_\omega = [\exp(\lambda \hbar \omega) - 1]^{-1}, \quad \lambda = 1/k_0 T_e. \quad (4)$$

В общем случае фаза влияния (4) включает в себя как эффект смешивания плазмонов и фононов, так и динамическое экранирование. Выражение (4) для второй кумулянты $g^{(2)}(t)$ является точным и не связано с каким-либо выбором $\epsilon(x, \omega)$.

Результаты предыдущих работ [3, 4] можно получить следующим образом. При $\omega_p \ll \omega_0$ интеграл по ω в (4) разбиваем на две части

$\left(\int_0^\infty = \int_0^{\omega_{rp}} + \int_{\omega_{rp}}^\infty \right)$ так, что $\omega_{rp} \gg \omega_p$, но $\omega_{rp} < \omega_0$. При высоких частотах $\omega > \omega_{rp}$ вкладом зонных электронов и дырок в $\epsilon(\kappa, \omega)$ [8] можно пренебречь и получить фазу влияния LO -фононов на $e-\hbar$ пару. В интеграле по низким частотам $\omega < \omega_{rp}$ диэлектрическая функция определяется формулой (17) из работы [8], а предел интегрирования можно устремить к бесконечности, так как $\omega_{rp} \gg \omega_p$, и получить фазу влияния плазмонов на $e-\hbar$ пару из работ [3, 4]. Отметим, что в приближении случайных фаз, в котором используется простейшее «расщепление» [8], кумулянты более высокого порядка $g^{(3)}(t)$ и т. д. равны нулю. С помощью выражения для $\epsilon(\kappa, \omega)$ в длинноволновом приближении [8], пренебрегая затуханием плазмон-фононных возбуждений, находим

$$g^{(2)}(t) = - \sum_{\kappa} \frac{v_{\kappa}}{\hbar\pi} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \rho_{\kappa}(t_1) \rho_{-\kappa}(t_2) \times \\ \times \left[T_{\omega_+}(t_1 - t_2) \omega_+ \frac{\omega_+^2 - \omega_{T0}^2}{\omega_+^2 - \omega_-^2} + T_{\omega_-}(t_1 - t_2) \omega_- \frac{\omega_{T0}^2 - \omega_-^2}{\omega_+^2 - \omega_-^2} \right]. \quad (5)$$

Формула (5) определяет фазу влияния смешанных плазмонов и фононов на $e-\hbar$ пару. В пределе малых концентраций $e-\hbar$ пар верхняя ветвь колебаний начинается как оптический фонон и $\omega_+ \rightarrow \omega_0$, а нижняя представляет собой плазмон и $\omega_- \rightarrow \omega_p$. При этом первое слагаемое в $g^{(2)}(t)$ (5) переходит в фазу влияния LO -фононов, а второе описывает взаимодействие с плазмонами. В этом пределе $(\omega_{T0}^2 - \omega_-^2)/(\omega_+^2 - \omega_-^2) \rightarrow \epsilon_\infty/\epsilon_0$. Следовательно, ϵ_∞ в v_{κ} (3), (5) заменяется на ϵ_0 (ионная экранировка). В пределе высоких частот $\omega_p > \omega_0$, т. е. при высоких концентрациях носителей заряда, первое слагаемое в (5) характеризует взаимодействие с плазмон-подобной ветвью колебаний ($\omega_+ \rightarrow \omega_p$ ($\epsilon_0/\epsilon_\infty$)^{1/2}), а второе слагаемое стремится к нулю ($\omega_- \rightarrow \omega_{T0}$), так как электроны и дырки полностью экранируют поля ионов. Взаимодействие с нижней ветвью отсутствует. Используя формулы (4), (5) и результаты работ [3, 4] с соответствующими заменами констант связи и частот, можно рассчитать форму контура полосы излучения с учетом смешивания фононов и плазмонов при произвольных концентрациях $e-\hbar$ пар.

Многоплазменная структура полос наблюдается [1-4] в сравнительно небольшом температурном интервале при высоких уровнях возбуждения, когда затухание плазмонов невелико. Более распространенной экспериментальной ситуацией (рис. 1) является обратная, когда многоплазменная структура сглажена. Рассмотрим эволюцию таких спектров ЛМ с изменением уровня возбуждения и температуры с учетом LO -фононного повторения. В приближении случайных фаз [8] плазма реагирует на полный потенциал как газ невзаимодействующих частиц и волновыми функциями электронов и дырок являются плоские волны $|k\rangle$. С учетом диагональных матричных элементов производящей функции

$$I_{\mathbf{k}}(t) = \langle \mathbf{k} | \exp \{ g^{(2)}(t) \} | \mathbf{k} \rangle \simeq \exp \{ \langle \mathbf{k} | g^{(2)}(t) | \mathbf{k} \rangle \} \quad (6)$$

вычислим форм-функцию спектра излучения $F(\omega)$ [4]. В формуле (6) $g^{(2)}(t)$ имеет вид (5). Рассмотрим предел сильного плазмовыделения, когда многоплазменная структура не разрешается, и будем считать $\omega_p < \omega_0$. Именно этот случай соответствует результатам эксперимента (рис. 1). Тогда для вклада от взаимодействия с плазмонами (нижняя ветвь ω_-) можем записать

$$\langle \mathbf{k} | g_-^{(2)}(t) | \mathbf{k} \rangle = 1/2 \sigma_2 (\omega_0 t)^2, \quad \sigma_2 = (a/\beta_p) [\omega_p/\omega_0]^2, \quad \beta_p = \hbar\omega_p/k_0 T_s. \quad (7)$$

Для вклада от LO -фононов $\langle \mathbf{k} | g_+^{(2)}(t) | \mathbf{k} \rangle$ легко получить все известные результаты [9, 10]. Линейное по времени слагаемое в показателе экспоненты в формуле (6) описывает поляронный эффект при слабой связи

$$\omega_g = \omega_{g0} - \alpha \omega_0 (\gamma_e^{1/2} + \gamma_h^{1/2}), \quad \alpha = \mu^{1/2} e^2 / \varepsilon^* \hbar^3 / 2 (\omega_0)^{1/2}, \quad \gamma_{e, h} = m_{e, h} / \mu. \quad (8)$$

$\hbar \omega_{g0}$ — ширина запрещенной зоны без учета взаимодействия носителей заряда с LO -фононами. Бесфононная полоса имеет форму

$$F_0(\bar{\omega}) = \exp[-\beta \bar{\omega} - \bar{\omega}^2 / 4\sigma_2] \mathcal{D}_{-3/2}[\bar{\omega}^2 / \sqrt{\sigma_2}], \quad \bar{\omega} = (\omega - \omega_g) / \omega_0, \quad \beta = \hbar \omega_0 / k_0 T_e. \quad (9)$$

$\mathcal{D}_{-3/2}(z)$ — функция параболического цилиндра. Частотная зависимость однофононного стоксового повторения определяется выражением

$$F_1(\bar{\omega}) = \alpha \left[\frac{\gamma_e \gamma_h}{\pi} \right]^{1/2} \frac{1 + n_{\omega_0}}{\sigma_2^{3/4}} \int_0^1 \frac{dx}{\sqrt{1-x}} \left[\frac{1}{(1+\gamma x)^{1/2}} + \frac{1}{(1+x/\gamma)^{1/2}} \right] \times \\ \times \exp \left[-\beta(\bar{\omega} + 1) - \frac{(\bar{\omega} + 1 - x)^2}{2\sigma_2} \right], \quad (10)$$

в котором $\gamma = \gamma_e / \gamma_h$. Функции (9), (10) для определенного полупроводника, например рассматриваемого $ZnSe$, зависят от двух переменных параметров β и σ_2 .

На рис. 2 представлены результаты расчета бесфононной полосы (9) и ее LO -фононного повторения (10) при 50 К, $T_e = 140$ К и $\sigma_2 = 0.9$ с исполь-

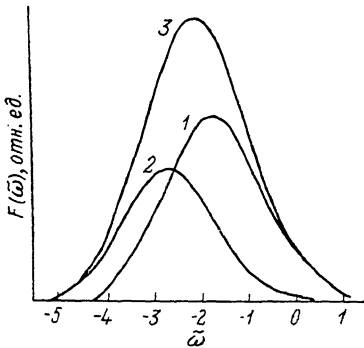


Рис. 2. Форм-функция спектра излучения $ZnSe$ при 50 К и $\sigma_2 = 0.9$.

1 — полоса $F_0(\bar{\omega})$ (9), 2 — полоса $F_1(\bar{\omega})$ (10), 3 — суммарная полоса $F(\bar{\omega}) = F_0(\bar{\omega}) + F_1(\bar{\omega})$.

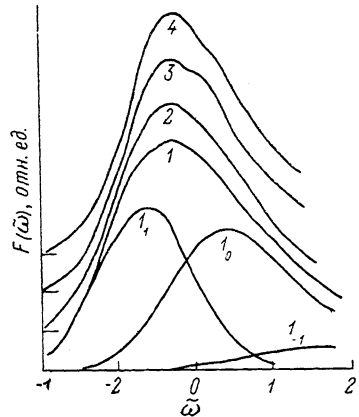


Рис. 3. Высокотемпературная форм-функция спектра излучения $ZnSe$ при 303 К и различных уровнях возбуждения.

1 — $\sigma_2 = 0.3$, 2 — 0.25, 3 — 0.2, 4 — 0.16. Кривая I_0 рассчитана по формуле (9) при $\sigma_2 = 0.3$; I_1 — стоксовский спутник (10), I_{-1} — антистоксовский спутник при $\sigma_2 = 0.3$.

зованием параметров кристалла $ZnSe$. Основной вклад в интеграл (10) дают значения x порядка единицы, что приводит благодаря множителю $\exp\{-\frac{(\bar{\omega} + 1 - x)^2}{2\sigma_2}\}$ к смещению LO -фононного повторения в коротковолновую область спектра. Поэтому расстояние между бесфононной полосой и LO -спутником оказывается меньше, чем ω_0 . При слабом затухании фононов и плазмонов многоплазменная структура будет наблюдаться четко при дополнительном условии совпадения порогов плазменных спутников обеих полос. Именно несовпадение порогов приводит, по-видимому, к наблюдавшемуся нами нарушению эквидистантности и правильной формы пиков на некоторых спектрах (кривая 2 на рис. 1; см. также работу [4]).

На рис. 3 показаны спектры излучения, полученные с использованием параметров $ZnSe$ при температуре $T_e = 303$ К и различных уровнях возбуждения. С его уменьшением уменьшаются величина ω_p и константа σ_2 . Критерий сильного выделения плазмонов $a/\beta_p \gg 1$ выполняется тем лучше, чем выше T_e и меньше ω_p . Например, кривая 1 на рис. 3 вычислена при

$a/\beta_p = 32.6$, хотя величина $\sigma_2 = 0.3$ меньше, чем в случае низких температур (50 К, $\sigma_2 = 0.9$). С ростом температуры константа плазмовыделения a (2) уменьшается по корневому закону. Кроме того, рост T при фиксированной плотности тока возбуждения приводит к уменьшению концентрации $e-h$ пар. Поэтому уменьшение ширины запрещенной зоны, обусловленное взаимодействием с плазмонами (2), при высоких температурах оказывается пренебрежимо малым. Сдвиг максимума максвелловской функции распределения в глубину зоны приводит к тому, что при высоких температурах максимум бесфононной полосы (рис. 3) расположен при $\omega > \omega_g$. Наиболее существенной особенностью высокотемпературных спектров (рис. 3) является эффект возгорания LO -фононного стоксового повторения. Его интенсивность оказывается выше интенсивности бесфононной полосы. С уменьшением уровня возбуждения относительная величина LO -спутника возрастает, а максимум сдвигается в коротковолновую область спектра. Обе полосы (9) и (10) благодаря многоплазмонным переходам являются широкими, и LO -фононная структура не разрешается. Хотя при некоторых уровнях возбуждения возможно появление излома на кривой излучения в виде «плеча» (кривая 3 на рис. 3). Такие особенности нами наблюдаются в краевом излучении эпитаксиальных слоев $ZnSe$ (кривая 4 на рис. 1).

Антистоксово повторение определяется выражением, аналогичным (10), но его вклад

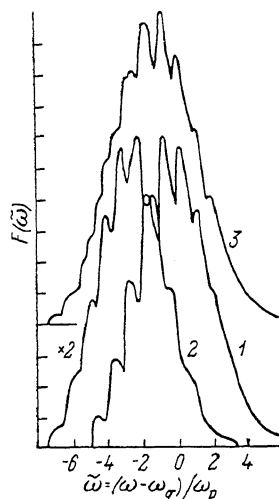


Рис. 4. Влияние однофононного LO -повторения полосы ЛМ на форму спектра излучения.

1 — бесфононная полоса, 2 — LO -фононная побочная полоса, 3 — суммарная полоса излучения при $a=2$, $\beta_p=1$, построение с использованием формул из работ [3, 4].

даже при 303 К пренебрежимо мал (кривая I_{-1} на рис. 3). Порог антистоксового спутника оказывается размытым и не приводит к особенностям на кривых излучения.

При 50 К ширина запрещенной зоны равна $\hbar\omega_{g0} = 2.818$ эВ. Поляронный эффект (8) уменьшает ее величину на $\Delta\hbar\omega_{g0}^L = 38.4$ мэВ. Взаимодействии с плазмонами при $T_g = 140$ К и $N = 1.3 \cdot 10^{17}$ см $^{-3}$ дает $\Delta\hbar\omega_g = \hbar\omega_p a/2 = 32$ мэВ. Величина $\hbar\omega = \hbar(\omega_{g0} - \Delta\omega_{g0}^L - \Delta\omega_g) = 2.747$ эВ хорошо согласуется с положением максимума полосы излучения (рис. 1, 1, 2). При 303 К величина $\hbar\omega_{g0} = 2.712$ эВ, тогда как максимум полосы излучения лежит при $\hbar\omega = 2.630$ эВ, т. е. сдвинут на 82 мэВ (рис. 1, 4). Учет поляронного эффекта (8) и однофононного повторения (рис. 3, 1) оказывается недостаточным для объяснения такого большого сдвига полосы излучения в длинноволновую область спектра. При высоких температурах, по-видимому, существенный вклад дают двухфононные и трехфононные повторения бесфононной полосы. Это предположение коррелирует с эффектом возгорания однофононного спутника.

Таким образом, интерференция LO -фононного и многоплазмонного механизмов излучения позволяет объяснить многие тонкие особенности спектров ЛМ полупроводников при высоких уровнях возбуждения.

Список литературы

- [1] Вавилов В. С., Ключанов А. А., Сенокосов Э. А., Чиботару Л. Э., Чукичев М. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 2. С. 614—617.
 [2] Ву Зоан Мьен, Сенокосов Э. А., Стойкова В. Г., Усатый А. Н., Чукичев М. В. // ФТП. 1985. Т. 19. № 9. С. 1571—1576.

- [3] Klyukanov A. A., Senokosov E. A., Chiboraur L. E. // Phys. St. Sol. (b). 1989. V. 155. N 1. P. 295—308.
- [4] Вавилов В. С., Ключанов А. А., Павленко Н. М., Сабри Джесин Мухаммед, Сенюкосов Э. А., Стойкова В. Г., Чукичев М. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 10. С. 132—139.
- [5] Балтрамеюнас Р., Жукаускас А., Степанкевичус В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1832—1834.
- [6] Saito H., Göbel E. D. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 4. P. 2360—2369.
- [7] Casella R. C. // J. Appl. Phys. 1963. V. 34. N 6. P. 1703—1705.
- [8] Платцман Ф., Вольф П. Волны и взаимодействия в плазме твердого тела. М.: Мир, 1975. 436 с.
- [9] Синявский Э. П. Кинетические эффекты в электрон-фононных системах в поле лазерного излучения. Кишинев: Штиинца, 1976. 170 с.
- [10] Чайковский И. А. // ФТП. 1972. Т. 6. № 1. С. 3—10.

Молдавский государственный университет
им. В. И. Ленина
Кишинев

Поступило в Редакцию
25 мая 1990 г.