

УДК 621.315.592

ЭФФЕКТЫ ВЫСОКОЙ ПЛОТНОСТИ В ТОНКОЙ СТРУКТУРЕ ЭКСИТОННОГО РЕЗОНАНСА КРИСТАЛЛА CdS

Д. К. Нельсон, Б. С. Разбирин

Исследовались спектры экситонной люминесценции кристалла CdS при высокой плотности возбуждения в поляризации $E \parallel c$. Установлено, что при повышении интенсивности возбуждения P до 100 кВт/см^2 положение узкой линии запрещенного экситона A_F (Γ_6) остается неизменным с точностью до 0.05 мэВ , что свидетельствует о неизменном положении экситонного уровня. В то же время обнаружено длинноволновое смещение линии продольного экситона A_L (Γ_{5L}) при повышении плотности накачки. При $P=100 \text{ кВт/см}^2$ величина этого смещения составляет 0.5 мэВ . Данное смещение связывается с уменьшением величины продольно-поперечного расщепления и соответственно силы осциллятора экситонного перехода, обусловленным экранированием кулоновского взаимодействия в системе экситонов и носителей высокой плотности. Отмечается, что наблюдаемый эффект может служить методом оценки уменьшения энергии связи экситона при повышении плотности возбуждения.

Хорошо известно, что при повышении плотности возбуждения ширина запрещенной зоны полупроводникового кристалла уменьшается вследствие влияния коллективных взаимодействий. При этом из-за экранирования кулоновского взаимодействия уменьшается и энергия связи экситона. Расчеты показывают [1], что уменьшение энергии связи экситона практически компенсируется соответствующим уменьшением ширины запрещенной зоны, так что энергетическое положение экситонного уровня не претерпевает заметного изменения при повышении плотности накачки. В то же время расчеты не позволяют ответить на вопрос, является ли эта компенсация совершенно точной или же положение экситонного терма должно испытывать небольшой сдвиг при повышении концентрации электронно-дырочных пар в кристалле. Так, например, согласно теоретической работе Ханамуры [2], посвященной исследованию возможности бозе-эйнштейновской конденсации экситонного газа, экситонный уровень испытывает фиолетовый сдвиг с ростом накачки. Расчеты Хеннебергера в сотрудничестве с Циммермана и др. [4] сдвиг оказывается зависящим от ряда параметров, в частности от температуры, и может быть как «фиолетовым», так и «красным» или равняться нулю в зависимости от значения параметров. Таким образом, выяснить, смещается или не смещается экситонный уровень при росте интенсивности возбуждения, можно только экспериментально.

Экспериментальные исследования экситонного спектра при высокой плотности возбуждения, проведенные рядом авторов в различных полупроводниковых кристаллах, показывают, что экситонный уровень в грубом приближении не испытывает сколько-нибудь заметного сдвига во всем исследованном интервале возбуждений, вплоть до исчезновения экситонной структуры из спектра.¹ Исследованию кристалла CdS посвящена,

¹ Мы не рассматриваем здесь тривиальный сдвиг экситонного уровня, вызванный разогревом кристаллической решетки.

в частности, работа [5]. Следует отметить, что в этой работе, как и в ряде других работ, исследование проводилось в разрешенной поляризации. Наблюдающиеся при этом широкие экситонные линии ограничивают точность измерений. Так, в работе [5] точность определения положения экситонного уровня не превышала 0.5 мэВ. В настоящей работе исследовались спектры люминесценции кристалла CdS в запрещенной поляризации $E \parallel c$. В этой поляризации в спектрах поглощения и люминесценции наблюдаются две узкие линии A_L (4853 Å) и A_F (4857 Å), соответствующие переходам из состояний продольного Γ_{5L} и запрещенного Γ_6 экситонов. Исследуемые образцы представляли собой выращенные из газовой фазы кристаллические пластинки толщиной 5—10 мкм, ось кристалла лежала в плоскости пластинки. Для охлаждения образцы погружались в жидкий гелий, температура образца составляла 1.8 К. Возбуждение люминесценции производилось сфокусированным в пятно диаметром 0.5 мм пучком азотного лазера ЛГИ-505, плотность возбуждения лежала в диапазоне 10—1000 кВт/см². Спектры регистрировались в геометрии «на отражение» фотографической методикой на спектрографе ДФС-3 с дисперсией 4 Å/мм.

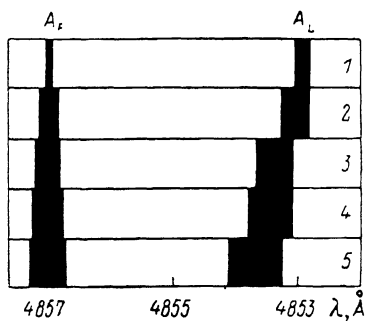


Рис. 1. Схема спектров поглощения (1) и люминесценции (2—5) кристалла CdS в области экситонного резонанса, полученных при фотографической регистрации в поляризации $E \parallel c$.

P , кВт/см²: 2 — 10, 3 — 50, 4 — 75, 5 — 100.

С целью исследования уширения линий люминесценции при повышении плотности возбуждения использовалась также фотоэлектрическая регистрация на спектрометре ДФС-12. Интенсивность линии излучения почти продольного экситона A_L зависит от угла между оптической осью кристалла и волновым вектором света. Вследствие этого геометрия эксперимента выбиралась такой, чтобы линия A_L была достаточно узкой, но при этом имела заметную интенсивность. Угол между нормалью к плоскости кристалла и направлением наблюдения составлял при этом 5—10°. В результате принятия перечисленных выше мер нам удалось достичь хорошей точности в определении энергетического положения экситонных линий, которая составила величину не хуже 0.05 мэВ.

Вид спектров поглощения невозбужденного кристалла и спектров люминесценции при различных уровнях возбуждения представлен схематически на рис. 1.² С увеличением плотности возбуждения обе линии (A_L и A_F) расширяются, ослабевают и исчезают из спектра: сначала линия A_F , затем A_L . При этом положение линии запрещенного экситона остается неизменным во всем интервале исследованных возбуждений, вплоть до ее исчезновения. В то же время линия A_L при повышении плотности возбуждения P испытывает заметный сдвиг в длинноволновую сторону, который при $P=100$ кВт/см² достигает 0.5 мэВ. Наблюдающееся смещение A_L с ростом накачки, очевидно, не может быть связано с нагревом кристалла лазерным излучением, так как в этом случае аналогичным образом должна была бы смещаться и линия A_F . Эффект смещения A_L обратим. Обратимость эффекта проверялась следующим образом. Сначала снимался спектр люминесценции при большой плотности возбуждения, при этом наблюдалось смещение A_L . Затем от той же точки кристалла снимался спектр при слабой накачке, в этом случае смещение отсутствовало. Следовательно, наблюдаемый эффект не связан с каким-либо необратимым воздействием лазерного излучения на образец, например его частичным разрушением.

² Поскольку оригинальные спектрограммы имеют малый контраст, мы в качестве иллюстрации приводим схематическое изображение спектров.

Отсутствие какого-либо смещения линии A_F указывает на то, что и положение уровня основного состояния экситона A (Γ_{5T}), от которого состояние Γ_{5L} отделено малой величиной обменного расщепления Δ_{TF} (для CdS $\Delta_{TF}=0.25$ мэВ), также остается неизменным при повышении интенсивности возбуждения. Состояние Γ_{5L} отщеплено от состояния Γ_{5T} за счет обменного дальнего действия, так что энергетическое положение линии A_L определяется положением уровня основного состояния экситона и величиной продольно-поперечного расщепления Δ_{LT} . Так как положение экситонного уровня, как это отмечено выше, остается неизменным во всем исследованном интервале возбуждений, то можно полагать, что наблюдаемое смещение линии A_L с ростом интенсивности накачки связано с уменьшением величины продольно-поперечного расщепления и соответственно с уменьшением силы осциллятора экситонного перехода.

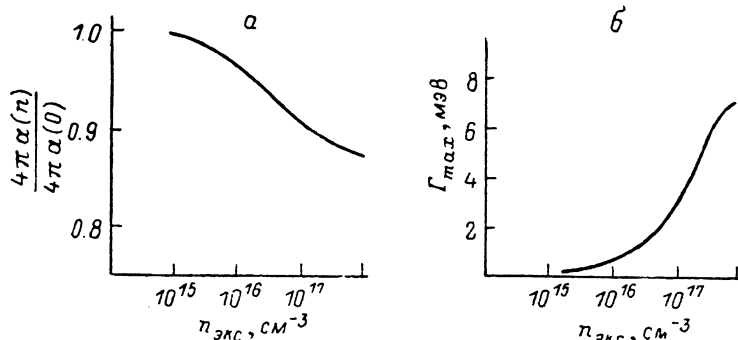


Рис. 2. Зависимость экситонной поляризуемости $4\pi\alpha$ и затухания Γ от концентрации экситонов n в кристалле CdS. Теоретические расчеты работы [7].

Ожидать уменьшения Δ_{LT} при повышении плотности возбуждения можно, если учесть, что в квазикубической модели гексагонального кристалла [6]

$$\Delta_{LT} \sim E_{\text{экс}}^2 / E_g,$$

где $E_{\text{экс}}$ — энергия связи экситона, E_g — ширина запрещенной зоны. Как было отмечено выше, при повышении концентрации электронно-дырочных пар в кристалле вследствие экранирования кулоновского взаимодействия уменьшаются ширина запрещенной зоны и энергия связи экситона. Так как эти изменения одинаковы, а $E_g \gg E_{\text{экс}}$, то можно приблизительно считать $\Delta_{LT} \sim E_{\text{экс}}^2$ и соответственно продольно-поперечное расщепление должно уменьшаться при увеличении накачки.

Продольно-поперечное расщепление Δ_{LT} непосредственно связано с силой осциллятора или, иначе говоря, с поляризуемостью экситонного состояния $\omega_L = \omega_0 \sqrt{1 + 4\pi\alpha}$, где ω_L — энергия продольного экситона, ω_0 — энергия основного состояния экситона, $4\pi\alpha$ — экситонная поляризуемость. Таким образом, $\Delta_{LT} = \omega_L - \omega_0 \approx 4\pi\alpha/2$. Теоретически изменение экситонной поляризуемости при увеличении концентрации экситонов в кристалле CdS было рассмотрено в работе [7]. На рис. 2 приведены теоретические зависимости экситонной поляризуемости $4\pi\alpha$ и затухания Γ от концентрации экситонов в CdS, полученные в этой работе. Расчет показывает (рис. 2, а), что при повышении концентрации экситонов в кристалле величина экситонной поляризуемости действительно уменьшается.

Для того чтобы более детально сравнить результаты нашего эксперимента с теоретическими кривыми работы [7], рассмотрим спектры (рис. 3). Эти спектры получены в условиях, аналогичных условиям рис. 1, и позволяют проследить, как при увеличении плотности возбуждения линия A_L (линия A_F на этих спектрах неразличима на фоне шумов) уширяется,³

³ Уширение резонансных экситонных линий в интервале возбуждений 10^3 – 10^4 Вт/см² исследовалось нами в работе [8].

полностью исчезая из спектра при $P \gg 1$ МВт/см². При $P \approx 100$ кВт/см² полуширина линии A_L составляет величину около 1 мэВ. Если сопоставить эту величину с зависимостью $\Gamma(n)$ из рис. 2, б, то можно видеть, что значение $\Gamma=1$ мэВ соответствует концентрации экситонов $n \approx \approx 3 \cdot 10^{16}$ см⁻³. Возвращаясь к зависимости $4\pi\alpha(n)$ (рис. 2, а), мы для концентрации $n=3 \cdot 10^{16}$ см⁻³ имеем $4\pi\alpha(n)/4\pi\alpha(0)=0.95$, т. е. уменьшение экситонной поляризуемости составляет 5 %. В нашем эксперименте, как следует из рис. 1, экситонная поляризуемость уменьшается при $P=100$ кВт/см² примерно на 20 % или, иначе, $4\pi\alpha(n)/4\pi\alpha(0)=0.8$. Таким образом, теоретические расчеты работы [7] качественно согласуются с нашими экспериментальными данными, однако количественно теория дает более слабую зависимость $4\pi\alpha(n)$, чем это наблюдается на эксперименте.

Обсуждая причины такого расхождения теории и эксперимента, укажем, что в эксперименте авторов [7] по исследованию спектров отражения кристалла CdS в условиях высокой плотности возбуждения также наблюдалось более сильное, чем это следовало из расчетов, уменьшение экситонной поляризуемости. Авторы объясняли это тем, что в теории не учиты-

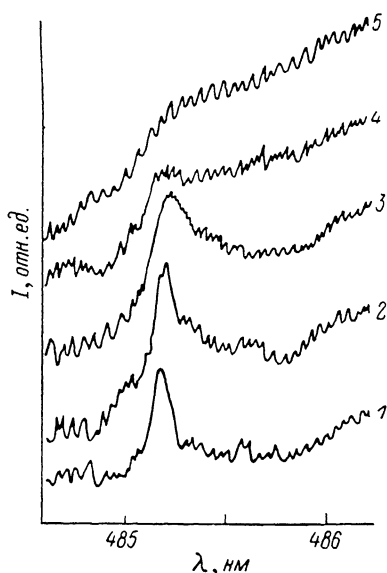


Рис. 3. Спектры люминесценции кристалла CdS в поляризации $E \parallel c$.

Фотоэлектрическая регистрация. P , кВт/см²: 1 — 100, 2 — 300, 3 — 500, 4 — 800, 5 — 1100.

вались возбужденные состояния экситона при описании междуэкситонных взаимодействий. Более существенным представляется, однако, тот факт, что авторы работы [7] учитывали только взаимодействия между экситонами и не принимали во внимание влияния свободных носителей. В то же время хорошо известно, что экранирование в системе заряженных носителей гораздо более эффективно, нежели в диэлектрическом экситонном газе. Так, в работе [9] было экспериментально показано, что в кристалле GaAs эффективность экранирования в чисто экситонной системе на два порядка меньше, чем в смешанном газе экситонов и свободных носителей. Поэтому учет в расчетах наряду с междуэкситонными взаимодействиями экситонов со свободными носителями позволит, как нам кажется, улучшить согласие между теорией и экспериментом.

Итак, результаты нашей работы показывают, что положение экситонного уровня в CdS при повышении плотности возбуждения остается неизменным с точностью до 0.05 мэВ. Наблюдающееся при этом смещение линии излучения продольного экситона A_L связано с уменьшением величины продольно-поперечного расщепления и соответственно, согласно квазикубической модели, с уменьшением энергии связи экситона. Измерение величины длинноволнового сдвига линии A_L представляет собой в настоящее время, по-видимому, наиболее прямой метод оценки изменения энергии связи экситона при повышении мощности накачки. Данные нашей работы дают для плотности возбуждения $P=100$ кВт/см² по сравнению с невозбужденным кристаллом уменьшение величины продольно-поперечного расщепления на 20 % и соответственно уменьшение энергии связи экситона на 10 %.

Авторы благодарят С. А. Москаленко, А. В. Селькина, и особенно А. И. Бобрышеву, за неоднократные полезные обсуждения.

- [1] *Gay J. G.* Phys. Rev. B, 1971, vol. 4, N 8, p. 2567—2575.
[2] *Hanamura E. J.* Phys. Soc. Jap., 1970, vol. 29, N 1, p. 50—57.
[3] *Boldt F., Henneberger K., May V.* Phys. St. Sol. (b), 1985, vol. 130, N 2, p. 675—687.
[4] *Ropke G., Seifert T., Stolz H., Zimmermann R.* Phys. St. Sol. (b), 1980, vol. 100, N 1, p. 215—226.
[5] *Лысенко В. Г., Ревенко В. И.* ФТТ, 1978, т. 20, № 7, с. 2144—2147.
[6] *Пикус Г. Е., Бур Г. Л.* ФТП, 1973, т. 7, № 1, с. 119—131.
[7] *Rückmann I., May V., Voigt J.* Phys. St. Sol. (b), 1980, vol. 102, N 1, p. 97—109.
[8] *Михайлов Г. В., Разбирин Б. С., Нельсон Д. К.* ФТП, 1983, т. 17, № 6, с. 1060—1063.
[9] *Fehrenbach G. W., Schäfer W., Treusch J., Ulbrich R. G.* Phys. Rev. Lett., 1982, vol. 49, N 17, p. 1281—1284.

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

Поступило в Редакцию
7 апреля 1988 г.