

УДК 535.343

© 1990

К ТЕОРИИ РОЖДЕНИЯ ЭКСИТОНОВ В ПОЛЯРНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

И. Г. Ланг, С. Т. Павлов, А. В. Прохоров

Вычислен линейный по интенсивности возбуждающего света вклад в скорость рождения экситонов Ванье—Мотта в полярных полупроводниках при частотах возбуждающего света, немного превышающих пириную запрещенной зоны. Рассмотрен процесс с участием электронно-дырочных пар (ЭДП) в качестве промежуточных состояний кристалла. Показано, что конечная величина линейного вклада в скорость связывания ЭДП с образованием экситонов обусловлена пространственной корреляцией электронов и дырок, сохраняющейся после испускания некоторого числа LO -фононов. Показано, что при $N \geq 4$ скорость рождения экситонов пропорциональна третьей степени фреиховской константы взаимодействия электронов (дырок) с LO -фононами и с ростом числа N убывает только численно. Кинетическая энергия рожденных экситонов равна $E_{\text{экс } N} = \hbar \omega_1 - E_1 - N \hbar \omega_{LO}$, где ω_1 — частота возбуждающего света, E_1 — энергия экситона, отсчитанная от основного состояния кристалла. Описанный механизм рождения экситонов может быть использован для объяснения происхождения наблюдаемых на эксперименте [10] осцилляций в спектрах возбуждения экситонной эмиссии в полярных полупроводниках. Включение сильного магнитного поля приводит к резкому увеличению скорости рождения экситонов, что должно проявиться в росте интенсивности экситонной люминесценции.

Хорошо известно, что при облучении полярных полупроводников светом в области собственного поглощения происходит образование экситонов Ванье—Мотта. В теоретических работах [1-5] рассматриваются процессы связывания ЭДП с образованием экситонов, если электроны и дырки расположены в пространстве независимо друг от друга. Очевидно, что в этом случае вероятность связывания пропорциональна квадрату концентрации электронов (дырок) и квадратична по интенсивности возбуждающего света.

В настоящей работе (см. также [6]) вычисляется вероятность связывания ЭДП в экситоны в линейном приближении по интенсивности возбуждающего света. Заранее ясно, что линейные процессы возможны только в том случае, если электрон и дырка, рожденные светом в одной точке, сохраняют память друг о друге до момента связывания в экситон. Другими словами, существует пространственная корреляция между электронами и дырками. ЭДП сохраняет в пространстве конечный объем от момента ее образования до момента связывания. Идея о конечном объеме ЭДП, рожденной в кристалле возбуждающим светом, впервые высказана в [7, 8], где построена теория многофононного резонансного комбинационного рассеяния света (МРКРС) в полярных полупроводниках с участием ЭДП в качестве промежуточных состояний кристалла. Как в [8], так и в настоящей работе для простоты не учитывается влияние кулоновского взаимодействия электронов и дырок на состояния ЭДП, относящиеся к непрерывному спектру энергии (инфинитному относительному движению). Так что пространственная корреляция электронов и дырок обусловлена отнюдь не кулоновскими силами, а взаимодействием электронов и дырок с LO -фононами. Заранее ясно, что конечный объем ЭДП должен приводить к конечной вероятности образования экситонов в линейном приближении по концентрации ЭДП, так же как он приводит к конечной ве-

роятности излучательной аннигиляции пар в этом же приближении [8]. Использование диаграммной методики подтвердит это предположение.

Будем рассматривать модель прямозонного полупроводника с изотропными эффективными массами электронов и дырок. Предполагается, что температура намного ниже дебаевской. Спин электронов не учитывается. Цель настоящей работы — качественное описание линейных процессов, поэтому для получения наиболее наглядных результатов ниже используются некоторые дополнительные упрощающие предположения.

Рассмотрим следующий процесс: возбуждающий свет с частотой ω_l рождает ЭДП вследствие прямого перехода, затем эта пара последовательно испускает $N-1$ LO-фонон. После этого происходит связывание пары в экситон с одновременным испусканием последнего N -го фонона. В результате образуется экситон с кинетической энергией в интервале от 0 до $\hbar\omega_{LO}$, если частота возбуждающего света лежит в интервале

$$E_1/\hbar + N\omega_{LO} < \omega_l < E_1/\hbar + (N+1)\omega_{LO}, \quad (1)$$

где $E_1 = E_g - \Delta E$ — энергия основного состояния экситона, E_g — ширина запрещенной зоны, ΔE — энергия связи экситона, ω_{LO} — частота продольных оптических колебаний решетки (дисперсией пренебрегаем). Возбужденные состояния экситона (с главными квантовыми числами $n \geq 2$) при расчетах для простоты учитываться не будут.

Предстоит вычислить величину $dW_{\text{exc}N}/d\omega_l$ — число экситонов, рождаемых при стационарном облучении полупроводника возбуждающим светом заданной интенсивности в единицу времени в единице объема на единичный интервал частоты возбуждающего света после испускания N LO-фононов.

1. Вычисление скорости образования экситонов

Поскольку методика для вычисления скорости рождения экситонов не разработана, мы используем следующий прием. Вычислим вначале тензор рассеяния света $S_{\alpha\gamma\beta\lambda}$ [9], соответствующий диаграмме, пример которой изображен на рис. 1, а затем, используя полученный результат, определим искомую величину $dW_{\text{exc}N}/d\omega_l$.

Диаграмма на рис. 1 соответствует процессу, описанному выше, плюс еще одна ступень: непрямая излучательная аннигиляция экситона в сопровождении испускания еще одного ($N+1$ -го) LO-фонона. С другой стороны, эта диаграмма описывает один из вкладов в процесс МРКРС $N+1$ -го порядка, т. е. процесс рассеяния, для которого частота рассеянного света равна $\omega_s = \omega_l - (N+1)\omega_{LO}$. Правила диаграммной методики сформулированы в [6, 8]. Вычисляя вклад диаграммы типа изображенной на рис. 1 (см. [6]), убеждаемся в том, что после испускания N LO-фононов рождаются экситоны с кинетической энергией

$$E_{\text{exc}N} = \hbar\omega_l - E_1 - N\hbar\omega_{LO}. \quad (2)$$

Этот результат справедлив для любых чисел N , начиная с единицы, и важен для истолкования экспериментальных данных, полученных в [10]. Заметим, что факт рождения экситонов с определенной кинетической энергией подтверждается и при учете других диаграмм, отличающихся от диаграммы рис. 1 тем, что один или более фононов испускается дыркой, а не электроном. Речь идет о диаграммах без пересечения внешних фононных линий. Прочие диаграммы (с пересекающимися фононными линиями) в случае $N \geq 4$ дают вклады более высокого порядка по параметру α .

Тензор рассеяния $S_{\alpha\gamma\beta\lambda}$, вычисленный нами с помощью диаграммы рис. 1, связан с числом \bar{W}_s фононов вторичного излучения, испускаемых в единицу времени, следующим образом

$$\bar{W}_s = \frac{(2\pi)^3}{V_0} \frac{u_l u_s}{c^2 n_l n_s} \omega_l \omega_s e_{\alpha\alpha}^* e_{l\gamma} e_{s\beta} e_{i\lambda}^* S_{\alpha\gamma\beta\lambda}. \quad (3)$$

где V_0 — нормировочный объем, ω_s — частота рассеянного света, u_i (u_s), n_i (n_s), e_i (e_s) — групповая скорость, коэффициент преломления и вектор поляризации возбуждающего (рассеянного) света соответственно. Величина \bar{W}_s нормирована на один фотон возбуждающего света. Выражение для $\sum_{\mathbf{x}_s} \bar{W}_s^{(N+1)}$ приводится к виду

$$\sum_{\mathbf{x}_s} \bar{W}_s^{(N+1)} = \int dE P_{\text{exc}N}(E) \gamma_I(E), \quad (4)$$

где \mathbf{x}_s — волновой вектор вторичного света, $P_{\text{exc}N}(E)$ — функция распределения¹ по энергии экситонов, родившихся после испускания N фононов, $\gamma_I(E)$ — обратное время жизни экситона с кинетической энер-

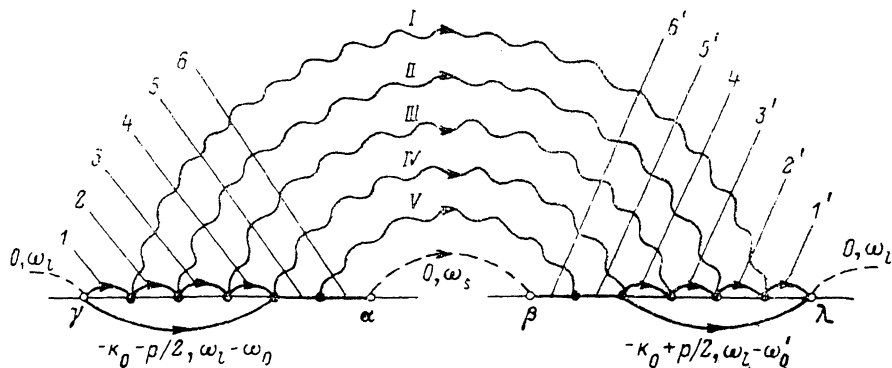


Рис. 1. Основная диаграмма, описывающая процесс рождения экситонов в сопровождении испускания $N=4$ фононов с последующей непрямой палучательной аннигиляцией экситона. Диаграмма соответствует одному из вкладов в МРКРС 5-го порядка.

Волновые векторы и частоты, соответствующие линиям: $k_0 + p/2, \omega_0$ (1); $k_1 + p/2, \omega_0 - \omega_1$ (2); $k_2 + p/2, \omega_0 - \omega_1 - \omega_2$ (3); $k_3 + p/2, \omega_0 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3$ (4); $k, \omega_1 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3 - \omega_4$ (5); $0, \omega_s$ (6); $k_0 - p/2, (1')$, ω_0 ; $k_1 - p/2, \omega_0 - \omega_1$ (2'); $k_2 - p/2, \omega_0 - \omega_1 - \omega_2$ (3'); $k_3 - p/2, \omega_0 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3$ (4'); $k, \omega_1 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3 - \omega_4$ (5'); $0, \omega_s$ (6'); $k_0 - k_1, \omega_1$ (I); $k_1 - k_2, \omega_2$ (II); $k_2 - k_3, \omega_3$ (III); $k_3 - k_0 - k, \omega_4$ (IV); $k, \omega_1 - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3 - \omega_4 - \omega_s$ (V).

гией E по отношению к не прямой (с испусканием одного LO -фонона) излучательной аннигиляции. Существенно, что

$$P_{\text{exc}N}(E) \sim \delta(E - E_{\text{exc}N}). \quad (5)$$

Далее используем соотношение

$$P_{\text{exc}N}(E) = (dW_{\text{exc}N}/dE)/\gamma_{\text{exc}N}, \quad (6)$$

где $dW_{\text{exc}N}/dE$ — число экситонов, рожденных в единицу времени в объеме V_0 на единичный интервал их кинетической энергии E после испускания N LO -фононов при нормировке на один фотон возбуждающего излучения, $\gamma_{\text{exc}N} = \gamma_{\text{exc}}(E_{\text{exc}N})$ — обратное время жизни экситона с энергией $E_{\text{exc}N}$ в данном состоянии. Введем интенсивность $dI_I/d\omega_I$ возбуждающего света, на единичный интервал частоты. Тогда для скорости рождения экситонов в единице объема имеем

$$\frac{dW_{\text{exc}N}}{d\omega_I} = \frac{W_{\text{exc}N}}{\hbar u_I \omega_I} \frac{dI_I}{d\omega_I}, \quad (7)$$

где

$$W_{\text{exc}N} = \int dE (dW_{\text{exc}N}/dE).$$

¹ $P_{\text{exc}N} dE$ — число экситонов в объеме V_0 с кинетической энергией от E до $E+dE$ (нормированное на один фотон возбуждающего излучения).

Для получения наиболее простых и качественно наглядных результатов для дальнейших вычислений используем простейшую модель и заменим истинное фреilihовское взаимодействие взаимодействием

$$C_q^z = -i\hbar\omega_{l,0} (4\pi A l^3/V_0)^{1/2}, \quad l = (\hbar/2m\omega_{l,0})^{1/2}, \quad (8)$$

не зависящим от величины волнового вектора фонона (см. [8, 11]). Как и в [8], будем считать, что отношение эффективной массы электрона к эффективной массе дырки мало, что справедливо для большого числа полярных полупроводников. Окончательно получаем

$$\frac{d^2\mathcal{W}_{\text{exc}N}}{d\omega_l} = \frac{64}{\pi} \frac{dI_l}{d\omega_l} \frac{a^3}{\hbar^3\omega_l^3 c n_l} \left(\frac{e}{m_0}\right)^2 |\mathbf{e}_l \mathbf{p}_{cv}|^2 m_{\text{exc}} \mathcal{K}_{\text{exc}N} \Psi_N \left(\frac{A}{l}\right)^N \int_0^\infty dp p^{-N+2} \times \\ \times \left\{ \prod_{j=0}^{N-1} \arctg p \lambda_j \right\}, \quad (9)$$

где $a = \hbar^2 \kappa_0 / \mu e^2$ — радиус экситона, κ_0 — статическая диэлектрическая проницаемость, $\mu = m m_h (m + m_h)^{-1}$ — приведенная масса экситона, e — заряд электрона, m_0 — масса свободного электрона, \mathbf{p}_{cv} — междузонный матричный элемент импульса, $m_{\text{exc}} = m + m_h$,

$$\mathcal{K}_{\text{exc}N} = \hbar^{-1} (2m_{\text{exc}} E_{\text{exc}N})^{1/2}, \quad (10)$$

$$\lambda_j = \hbar \mathcal{K}_j / m \gamma_j \quad (11)$$

— длина свободного пробега электрона, ограниченная возможностью испускания LO -фонона, причем $\gamma_j = \gamma(E_j)$,

$$\mathcal{K}_j = \hbar^{-1} (2mE_j)^{1/2}, \quad E_j = \hbar\omega_l - E_g - j\hbar\omega_{l,0}. \quad (12)$$

Для модельного взаимодействия (8) имеем

$$\lambda_j = (l/A) (E_j/E_{j+1})^{1/2}. \quad (13)$$

Величина Ψ_N из правой части (9) равна

$$\Psi_N = (1 + z_{N-1}^2)^{-1} + (12z_0 z_{\text{exc}})^{-1} \{ [1 + (z_0 - z_{\text{exc}})^2]^{-1} - [1 + (z_0 + z_{\text{exc}})^2]^{-1} \} - \\ - [2z_0 z_{\text{exc}} (1 + z_{N-1}^2)^2]^{-1} \{ [1 + (z_0 - z_{\text{exc}})^2]^{-1} - [1 + (z_0 + z_{\text{exc}})^2]^{-1} \}, \quad (14) \\ z_0 = \mathcal{K}_0 a, \quad z_{N-1} = \mathcal{K}_{N-1} a, \quad z_{\text{exc}} = \mathcal{K}_{\text{exc}N} a.$$

Выражение (9) получено с использованием малости параметров

$$pa \ll 1, \quad a \mathcal{K} m / m_{\text{exc}} \ll 1. \quad (15)$$

2. Анализ результатов и пределы применимости теории. Численные расчеты

Прежде всего заметим, что все переходы, предшествующие рождению экситонов на диаграмме рис. 1, происходят с сохранением энергии, т. е. являются квазиреальными. Это следует из того, что квазиимпульс рожденного экситона равен по модулю величине $\hbar \mathcal{K}_{\text{exc}N}$, а волновые вектора электронов в промежуточных состояниях — величинам \mathcal{K}_j , с точностью до малых величин p порядка λ^{-1} . Неопределенность волнового вектора электрона соответствует ограниченному в пространстве объему ЭДП, порядок которого λ^3 . Если эффективная масса дырки много больше эффективной массы электрона, как мы предполагаем, то процессы испускания LO -фононов дырками не могут идти с сохранением энергии. Это означает, что все прочие диаграммы, кроме диаграммы рис. 1, дают малый вклад в величину скорости рождения экситонов.

Для определения порядка основного результата (9) по A вместо p введем новую безразмерную переменную интегрирования $x = pl/A$. Тогда

легко находим, что $d^2\mathcal{W}_{\text{exc } N}/d\omega_l \sim A^3$. В случае фреilihовского взаимодействия [12] получаем

$$d^2\mathcal{W}_{\text{exc } N}/d\omega_l \sim a^3, \quad (16)$$

где

$$a = (\kappa_\infty^{-1} - \kappa_0^{-1}) (e^2/2lh\omega_{LO}), \quad (17)$$

κ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость. Как и в теории МРКРС [8], использование фреilihовского взаимодействия приводит к усложнению интегрирования по углам, определяющим направления векторов $\mathcal{K}_0, \mathcal{K}_1, \dots, \mathcal{K}_{N-1}$ и $\mathcal{K}_{\text{exc } N}$. В результате величина (9) принимает громоздкий вид, и мы ее не приводим.

Рассмотрим пределы применимости (9). Эти пределы определяются сходимостью интегралов по p при больших значениях p . При $p \gg \lambda^{-1}$ подынтегральное выражение из правой части (9) ведет себя как p^{-N+2} , поэтому очевидно, что интегралы сходятся только при $N \geq 4$. При мень-

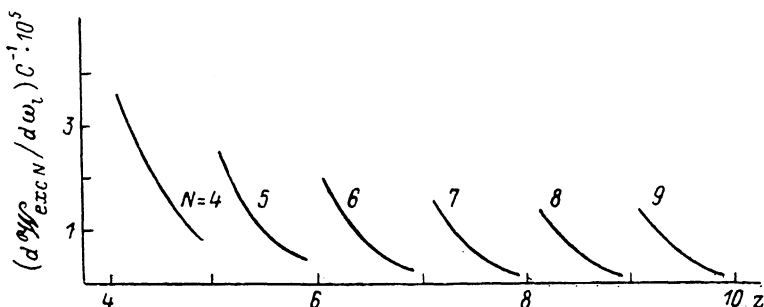


Рис. 2. Результаты численного расчета зависимости скорости $d^2\mathcal{W}_{\text{exc } N}/d\omega_l$ рождения экситонов с кинетической энергией в интервале от 0 до $\hbar\omega_{LO}$ от безразмерной частоты $z = (\omega_l - E_1/\hbar)/\omega_{LO}$ возбуждающего света.

Цифры около отрезков кривой соответствуют числу испущенных LO -фононов. Кинетическая энергия рожденных экситонов равна $E_{\text{exc } N} = \hbar\omega_l - E_1 - N\hbar\omega_{LO}$. Использованы параметры (22) кристалла CdS .

ших значениях $N \leq 3$ предложенный метод расчета неприменим, поскольку в интегралах по p существенны большие, чем λ^{-1} , значения p , а именно

$$p \simeq \mathcal{L}^{-1} \gg \lambda^{-1}, \quad (18)$$

где $\mathcal{L} \simeq \mathcal{K}^{-1} = (\hbar/2mE)^{1/2}$ — величина порядка длины волны электрона, E — кинетическая энергия электрона.

При $N=1$ и $N=2$ получаем вместо (16)

$$d\mathcal{W}_{\text{exc } 1}/d\omega_l \sim a, \quad \frac{d^2\mathcal{W}_{\text{exc } 2}}{d\omega_l} \sim a^2, \quad (19)$$

как и в случае применимости теории возмущений.

Итак, скорость рождения экситонов пропорциональна a^3 при $N \geq 4$.

Как отмечалось во введении, нас интересует рождение экситонов с кинетической энергией в интервале от 0 до $\hbar\omega_{LO}$. Если экситон с энергией в этом интервале рождается после испускания N LO -фононов, то частота возбуждающего света должна лежать в области (1), которая разбивается на две («а» и «б»), а именно

$$E_1/\hbar + N\omega_{LO} < \omega_l < E_g/\hbar + N\omega_{LO}, \quad (20a)$$

$$E_g/\hbar + N\omega_{LO} < \omega_l < E_1/\hbar + (N+1)\omega_{LO}, \quad (20б)$$

для которых из (9) получаются качественно различные результаты. Дело в том, что для области «а» кинетическая энергия экситона после испускания $N-1$ LO -фонона меньше, чем $\hbar\omega_{LO}$, поэтому вероятность γ_{N-1} испускания электроном LO -фонона стремится к нулю, а входящая в (9) вели-

чина λ_{N-1} соответственно обращается в бесконечность. Для области «б» величины λ_{N-1} и γ_{N-1} конечны. Однако формально для области «а» в правой части (9) величину $\operatorname{arctg} p \lambda_{N-1}$ можно заменить на $\pi/2$, что не приводит к расхождению интегралов ни при больших, ни при малых значениях p . На рис. 2 представлены результаты численного расчета зависимости скорости $d\mathcal{W}'_{\text{exc}N}/d\omega_l$ рождения экситонов с кинетической энергией в интервале от 0 до $\hbar\omega_{LO}$ от частоты ω_l возбуждающего света. Использована формула (9). По оси абсцисс отложено $z = (\omega_l - E_1/\hbar)/\omega_{LO}$, по оси ординат — безразмерная величина $d\mathcal{W}'_{\text{exc}N}/C d\omega_l$, где

$$C = \frac{64\sqrt{2}}{\pi\hbar^{1/2}} \left(\frac{l}{m_0}\right)^2 |e_l p_{cv}|^2 \left(\frac{A}{l}\right)^3 \frac{a^3 m_{\text{exc}}^{3/2}}{c\omega_{LO}^3 n_l} \frac{dI_l}{d\omega_l}. \quad (21)$$

При расчете использованы значения параметров для CdS [13]

$$m = 0.2m_0, \quad m_h = m_0, \quad \alpha_0 = 9, \quad \alpha_\infty = 5.4, \quad \Delta E = 0.028 \text{ эВ}, \\ \hbar\omega_{LO} = 0.038 \text{ эВ}, \quad E_g = 2.47 \text{ эВ}. \quad (22)$$

Отдельные отрезки кривой на рис. 2 соответствуют разным числам N испущенных фононов: слева направо $N=4, 5, 6$ и т. д. С ростом числа N скорость рождения экситонов убывает. Кинетическая энергия рожденных экситонов равна $E_{\text{exc}N} = \hbar\omega_l - E_1 - N\hbar\omega_{LO}$ и колеблется в пределах от 0 до $\hbar\omega_{LO}$ при плавном изменении частоты ω_l . Точки $z=4, 5, 6 \dots$ на рис. 2 при подходе к ним справа налево соответствуют рождению экситонов вблизи дна экситонной зоны. Заметим, что скорость рождения экситонов вблизи дна зоны стремится к нулю из-за множителя $\mathcal{K}_{\text{exc}N}$ в правой части (9). На рис. 2 видно, что по мере приближения кинетической энергии рожденного экситона к нулю скорость рождения экситонов сначала плавно возрастает, а затем резко падает в узкой области значений z . Поэтому при плавном изменении частоты ω_l должны наблюдаться осцилляции скорости рождения экситонов.

3. Связь скорости рождения экситонов с пространственным распределением электронов и дырок

Используя введенное в [8] понятие функции распределения ЭДП по относительному расстоянию между электроном и дыркой, перепишем (9) в виде

$$\frac{d\mathcal{W}'_{\text{exc}N}}{d\omega_l} = \frac{d\nu_{N-1}}{d\omega_l} V_0 f_{N-1}(0) W_{\text{EHP} \rightarrow \text{exc}N}, \quad (23)$$

где $d\nu_N/d\omega_l$ — число ЭДП, испустивших N LO -фононов, в единице объема при стационарном облучении возбуждающим светом на единичный интервал частоты возбуждающего света, $f_N(\mathbf{r})$ — нормированная на единицу функция распределения ЭДП, испустивших N LO -фононов, по относительному расстоянию между электроном и дыркой [8], $W_{\text{EHP} \rightarrow \text{exc}N}$ — число переходов в единицу времени ЭДП в экситон с испусканием LO -фонона в объеме V_0 при наличии одной пары в объеме V_0 , если волновой вектор электрона в составе ЭДП равен по модулю \mathcal{K}_{N-1} , а волновой вектор дырки — \mathcal{K}_0 . Приведем явные выражения для величин в правой части (23)

$$\frac{d\nu_N}{d\omega_l} = \frac{n_N}{\hbar\omega_l u_l} \frac{dI_l}{d\omega_l}, \quad (24)$$

где n_N — число испустивших N фононов ЭДП в объеме V_0 , нормированное на один фотон возбуждающего света, причем, согласно [8],

$$n_N = W_l/\gamma_N, \quad (25)$$

$$W_l = \frac{2}{\hbar^2} \left(\frac{e}{m_0}\right)^2 |e_l p_{cv}|^2 \frac{m_l u_l \mathcal{K}_0}{c n_l \omega_l} \quad (26)$$

— число ЭДП, рождаемых светом в единицу времени в объеме V_0 , нормированное на один фотон возбуждающего света.² Выражение $f_N(\mathbf{r})$ имеет вид

$$f_N(\mathbf{r}) = (2\pi)^{-3} \int d\mathbf{p} e^{i\mathbf{p}\mathbf{r}} \prod_{j=0}^N \frac{\arctg p\lambda_j}{p\lambda_j} = \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \dots d\mathbf{r}_N W_0(\mathbf{r}_1) W_1(\mathbf{r}_2 \dots \mathbf{r}_1) \times \\ \times W_2(\mathbf{r}_3 \dots \mathbf{r}_2) \dots W_N(\mathbf{r} \dots \mathbf{r}_N), \quad (27)$$

где

$$W_j(\mathbf{r}) = (4\pi r^2 \lambda_j)^{-1} e^{-r/\lambda_j}. \quad (28)$$

Физический смысл формулы (27) раскрыт в [8]. Наконец, с помощью теории возмущений легко получить, что

$$W_{\text{ЭДП} \rightarrow \text{экс } N} = 64\pi \frac{a^3 A}{V_0 l} \frac{\hbar m_{\text{экс}} c \lambda_{\text{экс } N}}{m^2} \psi_N. \quad (29)$$

Легко проверить, что, подставив (24), (27) и (29) в правую часть (23), мы снова придем к выражению (9).

Физический смысл (23) можно пояснить следующим образом. Очевидно, что если бы электроны и дырки были расположены в пространстве независимо друг от друга, или, другими словами, объем пары был бы порядка V_0 , то вместо (23) мы получили бы формулу, в правой части которой отсутствовал бы множитель $V_0 f_{N-1}(0)$. Поскольку величина $W_{\text{ЭДП} \rightarrow \text{экс } N}$ из правой части (23) пропорциональна V_0^{-1} (см. (29)), то для вклада в скорость рождения экситонов, линейного по интенсивности возбуждающего света, мы получили бы нулевой результат. Множитель $V_0 f_{N-1}(0)$ по порядку величины равен $V_0/V_{\text{ЭДП}, N-1}$, где $V_{\text{ЭДП}, N}$ — объем пары после испускания N LO фононов. Поскольку величина $V_{\text{ЭДП}, N}$ конечна, то для линейного вклада в скорость рождения экситонов получаем конечный результат (23). Заметим, что в правой части (23) величина $W_{\text{ЭДП} \rightarrow \text{экс } N}$ пропорциональна A , $dv_{N-1}/d\omega_l \sim A^{-1}$, $f_{N-1}(0) \sim A^3$, и в итоге получаем $d\mathcal{W}_{\text{экс } N}/d\omega_l \sim A^3$.

Вышеизложенная трактовка результата (23) полностью применима только к областям «б» для частот возбуждающего света (см. (20)). Качественная картина процесса рождения экситонов для области «а» (см. (20)) имеет некоторые особенности [8]. Заметим, что формула (23) точна только в приближении $m/m_h \ll 1$ и при модельном взаимодействии (8). При отклонении от приближения $m/m_h \ll 1$ и (или) использовании истинного фреilihовского взаимодействия в правой части (23) появляются некоторые дополнительные численные множители.

4. Сопоставление с экспериментом.

Обсуждение результатов

Сопоставим полученные нами теоретические результаты с данными эксперимента [10] (см. также [14]). В [10] были исследованы так называемые «спектры возбуждения» свободной эмиссии экситонов в кристаллах CdS при 4.2 и 77 К для трех бесфононных линий ($n=1A$, $n=1B$ и $n=2A$) и для линии экситонной эмиссии с одновременным испусканием LO -фонона. (A_1-LO). «Спектром возбуждения» называется зависимость интенсивности линии излучения с фиксированной частотой ω_s от частоты возбуждающего света ω_l . Для всех изученных линий была обнаружена отчетливо выраженная осцилляционная структура спектров возбуждения. Максимумы интенсивности линий бесфононного излучения наблюдались при

$$\omega_l = E_1/\hbar + N\omega_{LO}. \quad (30)$$

² Выражение (26) совпадает с (70) из [8], если в нем пренебречь временной дисперсией света и положить $u_l/c \simeq n_l^{-1}$.

Что касается спектров возбуждения линии (A_1-LO), то максимумы в этих спектрах расположены при частотах

$$\omega_l = E_1/\hbar + E^*/\hbar + N\omega_{LO}, \quad (31)$$

где E' — кинетическая энергия аннигилирующего экситона (в интервале частот от 0 до $\hbar\omega_{LO}$), которую можно задавать, исследуя спектры возбуждения для определенных значений ω_s в пределах достаточно широких линий (A_1-LO) излучения. Осцилляции появляются при условии неполной термализации экситонов за время их жизни. Авторы [10] объясняют осцилляции в спектрах возбуждения, используя концепцию горячих экситонов, т. е. предполагая, что в исследуемых процессах участвуют экситоны с кинетической энергией до 0.2 эВ. Они предполагают следующую физическую картину: свет с частотой ω_l в результате непрямого перехода с одновременным испусканием одного LO -фонона рождает экситон с кинетической энергией $\hbar\omega_l - E_1 - \hbar\omega_{LO}$, затем этот горячий экситон последовательно сбрасывает еще $N-1$ фонон, пока его кинетическая энергия не станет меньше, чем $\hbar\omega_{LO}$. Образуется экситон с фиксированной кинетической энергией $E_{exc N}$ (см. (2)). Дальнейшая судьба экситона определяется двумя факторами: процессами безызлучательной рекомбинации и взаимодействием с акустическими фононами. В случае неполной термализации интенсивность линии экситонной эмиссии должна быть максимальной при условиях (30) и (31), что подробно объяснено в [16]. Однако описанный в настоящей работе механизм связывания ЭДП также приводит к рождению экситонов с фиксированной энергией $E_{exc N}$, так что результаты эксперимента [10] могут быть объяснены с помощью этого механизма, в котором не участвуют экситоны с кинетической энергией, превышающей $\hbar\omega_{LO}$.³

Для количественного сопоставления эффективности механизмов, предложенных в [10] и в настоящей работе, приведем выражение для величины $d^2W_{exc N}^{exc} / d\omega_l$, соответствующее чисто экситонному процессу [15-17]

$$\frac{d^2W_{exc N}^{exc}}{d\omega} = \frac{d^2W_{exc 1}}{d\omega_l} \prod_{j=1}^{N-1} \frac{\gamma_{sj}}{\gamma_{exc j}}, \quad (32)$$

где $d^2W_{exc 1} / d\omega_l$ — число экситонов, рождаемых в единицу времени в единице объема на единичный интервал частоты возбуждаемого света в результате непрямого поглощения кванта света $\hbar\omega_l$ с одновременным испусканием одного LO -фонона,

$$\gamma_{sj} = \gamma_s(E_{exc j}) \quad (33)$$

— обратное время жизни экситона по отношению к рассеянию без изменения внутреннего состояния с испусканием одного LO -фонона, $\gamma_{exc j}$ — полное обратное время жизни экситона в данном состоянии. В качественных рассуждениях в [10] не учитывается множитель

$$X = \prod_{j=1}^{N-1} (\gamma_{sj} / \gamma_{exc j}), \quad (34)$$

из правой части (32), физический смысл которого очевиден: он описывает каскадный процесс последовательного «сбрасывания» экситоном квантов $\hbar\omega_{LO}$, причем на каждой степени каскада возможен распад экситона, что делает величину множителя X существенно меньше единицы. Действительно, согласно [15-17],

$$\gamma_{exc} \approx \gamma_s + \gamma_d, \quad (35)$$

³ Возможны также комбинированные процессы, когда, например, ЭДП, рожденная светом, сначала испускает N_1 фонон, затем связывается в экситон с испусканием еще одного фонона, после чего экситон сбрасывает N_2 фононов, так что $N_1 + N_2 + 1 = N$.

где γ_d — вероятность распада экситона с испусканием одного LO -фонона. Величины γ_s , γ_d и γ_{exc} определены и вычислены в [18].

Итак, осцилляции в спектрах возбуждения, экспериментально наблюдаемые в [10], могут быть обусловлены двумя типами процессов образования экситонов, один из которых описывается формулой (32), а другой — формулами (9) или (23). Заметим, что величина (32) пропорциональна константе α в первой степени, а величина (9) пропорциональна α^3 . Качественные черты образования экситонов благодаря обоим механизмам совпадают, а именно скорость рождения экситонов линейна по интенсивности возбуждающего света, экситоны рождаются с фиксированной энергией E_{exc} , что обеспечивает существование осцилляций в спектрах возбуждения, абсолютный максимум вероятности рождения экситонов приходится на частоты ω_l , немного заходящие за край фундаментального поглощения, с ростом частоты ω_l наблюдается в среднем падение вероятности рождения экситонов с кинетической энергией в интервале от 0 до $\hbar\omega_{l,0}$. На последнем пункте остановимся несколько подробнее. Для обоих механизмов падение вероятности рождения экситонов обусловлено главным образом ростом числа N испущенных LO -фононов. В случае ЭДП механизма при увеличении N численно уменьшается величина $d\mathcal{W}_{N-1}(0)/d\omega_l = (d\mathcal{W}_{N-1}/d\omega_l)_{\omega_l=0}$ из правой части (23), описывающая вероятность возврата пары в точку $\mathbf{r}=0$ после испускания $N-1$ фононов, где \mathbf{r} — относительное расстояние между электроном и дыркой, рожденных светом в одной и той же точке. В случае чисто экситонного механизма с ростом частоты ω_l уменьшается не только множитель $d\mathcal{W}_{exc1}/d\omega_l$ из правой части (32), как отмечено в [10], но из-за увеличения числа N падает величина множителя (34). При достаточно больших частотах ω_l вероятность линейных по интенсивности возбуждающего света процессов рождения экситонов в области $0 < E_{exc} < \hbar\omega_{l,0}$ становится пренебрежимо малой. При частотах ω_l далеко за краем фундаментального поглощения образование экситонов гораздо менее интенсивно, причем экспериментально обнаружено [10], что скорость рождения экситонов становится квадратичной по интенсивности возбуждающего света, т. е. экситоны образуются преимущественно из термализованных ЭДП, в которых электрон и дырка в результате многократных актов взаимодействия с акустическими фононами полностью потеряли память друг о друге и расположены в пространстве независимо друг от друга.

В процессах МРКРС также конкурируют два механизма — ЭДП [8, 11] и экситонный [15-17]. Некоторые результаты сопоставления теории МРКРС с экспериментальными данными приведены в [16].

Диаграмма на рис. 1 описывает третий — смешанный — процесс МРКРС, с участием ЭДП и экситонов. Сечение МРКРС ($N+1$ -го порядка определяется выражением

$$\sigma_{N+1} = \frac{V_0}{u_l} W_{exc N} \frac{\gamma_l(E_{exc N})}{\gamma_{exc}(E_{exc N})}, \quad (36)$$

причем связь между скоростью $W_{exc N}$ рождения экситонов, нормированной на один фотон возбуждающего света, и величиной $d\mathcal{W}_{exc N}/d\omega_l$ определена в (7). Из (36) следует, что при условии $E_{exc N} > \hbar\omega_{l,0}$, когда величина $\gamma_{exc}(E_{exc N})$ определяется вероятностью реального испускания LO -фонона и при $N \geq 4$, получаем

$$\sigma_{N+1} \sim \alpha^3, \quad (37)$$

поскольку $W_{exc N} \sim \alpha^3$, $\gamma_l(E_{exc N}) \sim \alpha$, $\gamma_{exc}(E_{exc N}) \sim \alpha$.

Таким образом, для смешанного механизма МРКРС сечение пропорционально α^3 , как и в случае чистого ЭДП механизма.

Результаты работ [19], посвященных теории МРКРС в присутствии сильного магнитного поля (СМП), позволяют предположить, что включение СМП должно приводить к резкому увеличению скорости рождения

экситонов, что должно проявляться в росте интенсивности экситонной люминесценции. В [19] теоретически было показано, что сечение МРКРС при включении СМП становится величиной первого порядка по фрелиховской константе α связи вместо второго порядка при $N=2$ и третьего порядка при $N \geq 4$. Для InSb, например, $\alpha \approx 0.014$, и сечение при $N=2$ (двухфононного рассеяния) в СМП в $\alpha^{-1} \approx 10^2$ раз больше, чем при $H=0$, а сечение при $N \geq 4$ соответственно в $\alpha^{-2} \approx 10^4$ раз больше. Физическая причина изменения порядка по α состоит в том, что в СМП движение электронов становится квазиодномерным и объем ЭДП пропорционален α^{-1} вместо α^{-3} при $H=0$. Аналогичное изменение порядка по α должно быть и для скорости рождения экситонов: отличие последнего процесса от МРКРС состоит в том, что электрон и дырка связываются в экситон вместо того, чтобы претерпевать излучательную аннигиляцию. Процессы обоих типов обратно пропорциональны объему ЭДП. Излучательная аннигиляция происходит при встрече электрона и дырки в одной точке [8]. При связывании в экситон электрон и дырка сходятся в объеме экситона, который много меньше, чем объем ЭДП.

В эксперименте [20] наблюдалось усиление экситонной люминесценции в СМП в кристаллах InSb, возможно, обусловленное описанным выше механизмом.

Список литературы

- [1] Липник А. А. // ФТТ. Сборник статей. 1959. С. 36—46; ФТТ. 1960. Т. 2. № 9. С. 2044—2047; 1961. Т. 3. № 8. С. 2322—2330; 1964. Т. 6. № 4. С. 1068—1074.
- [2] Нолле Э. Л. // ФТТ. 1967. Т. 9. № 1. С. 122—130.
- [3] Barrau J., Heckmann M., Collet J., Brousseau M. // J. Phys. Chem. Sol. 1973. V. 34. N 9. P. 1567—1577.
- [4] Алварес Р. П., Ланг И. Г., Павлов С. Т., Траллеро Гинер К. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 9. С. 2685—2694.
- [5] Абакумов В. Н., Перель В. И., Яссневич И. Н. // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. № 3. С. 1240—1252.
- [6] Ланг И. Г., Павлов С. Т., Прохоров А. В. // Препринт ФТИ им. А. Ф. Иоффе АН СССР. 1988. № 1277.
- [7] Гольцев А. В., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 9. С. 2766—2771.
- [8] Goltsev A. V., Lang I. G., Pavlov S. T., Bryzhina M. F. // J. Phys. C. 1983. V. 16. N 2. P. 4221—4241.
- [9] Lang I. G., Pavlov S. T., Prokaznikov A. V., Goltsev A. V. // Phys. St. Sol. (b). 1985. V. 127. N 1. P. 187—200.
- [10] Gross E., Permogorov S., Travnikov V., Selkin A. // J. Phys. Chem. Sol. 1970. V. 31. N 12. P. 2595—2601.
- [11] Zeyher R. // Sol. St. Comm. 1975. V. 16. N 1. P. 49—55.
- [12] Fröhlich H. // Adv. Phys. 1954. V. 3. N 11. P. 325—361.
- [13] Balkanski M. // Optical Properties of Solids / Ed. F. Abeles. Amsterdam, 1972.
- [14] Planel R., Bonnot A. // Benoit a la Guillaume C. Phys. St. Sol. (b). 1973. V. 58. N 1. P. 251—266.
- [15] Trallero Giner C., Lang I. G., Pavlov S. T. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 100. N 2. P. 631—640.
- [16] Траллеро Гинер К., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1981. Т. 23. № 5. С. 1265—1275.
- [17] Bendow B. // Proc. First Soviet—American Symp. «The theory of light scattering in solids.» Moscow, 1976. V. 1. P. 328—351.
- [18] Aristova K. A., Trallero Giner C., Lang I. G., Pavlov S. T. // Phys. St. Sol. (b). 1978. V. 85. N 1. P. 351—357.
- [19] Белицкий В. И., Гольцев А. В., Ланг И. Г., Павлов С. Т. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 3. С. 1224—1225; ЖЭТФ. 1984. Т. 86. № 1. С. 272—286; Phys. St. Sol. (b). 1984. V. 122. N 2. P. 581—590.
- [20] Сейсян Р. П., Юлдашев Ш. У. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 1. С. 12—22.

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

Поступило в Редакцию
4 октября 1989 г.