

ПЛОТНАЯ СИСТЕМА ЭКСИТОННЫХ ПОЛЯРИТОНОВ СМЕШАННОЙ МОДЫ, ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ И СПЕКТР ПРОПУСКАНИЯ КРИСТАЛЛА CdS

В. М. Лебедев

Исследованы спектры пропускания тонкого кристалла CdS при квазирезонансном возбуждении поляритонов смешанной моды. Обнаружено, что с повышением уровня возбуждения спектр пропускания не может быть описан теоретически на основе простой модели осциллятора с пространственной дисперсией и варьируемыми параметрами экситонного перехода.

При малых уровнях возбуждения проблема описания спектров отражения и пропускания кристалла CdS в области нижайшего экситонного резонанса сводится в основном к выяснению вида диэлектрической проницаемости и граничных условий. С привлечением представлений о без-экситонном мертвом слое на границе кристалла, пекаровских дополнительных граничных условий (ДГУ) и спектральной зависимости константы экситонного затухания диэлектрическая проницаемость

$$\epsilon(\omega, k) = \epsilon_0 + 4\pi\beta\omega_0^2 / [\omega_0^2 - \omega^2 + \hbar k^2 \omega_0 / M_{\perp} - i\Gamma\omega], \quad (1)$$

где ϵ_0 — фоновая диэлектрическая проницаемость, ω_0 — резонансная частота поперечного экситона, $4\pi\beta$ — экситонная поляризуемость, M_{\perp} — трансляционная масса экситона, ω и k — частота и волновой вектор, Γ — константа затухания, позволяет при этом хорошо описать как отражение, так и пропускание [1]. В настоящее время надежно установлено, что экситонные особенности в спектрах исчезают с повышением уровня возбуждения [2–22]. Принято считать, что изменение спектров обусловлено изменением диэлектрической проницаемости и граничных условий из-за возникновения в кристалле плотной электронно-дырочной системы.

С микроскопической точки зрения изменение экситонных спектров может быть связано с целым рядом достаточно различных по своей природе физических процессов. В первых работах рассматривалось в основном экранирование кулоновского взаимодействия в плотной системе фото-возбужденных носителей [6]. Такая интерпретация, будучи вполне приемлемой при самых высоких уровнях возбуждения, встречает серьезные трудности в области промежуточных концентраций экситонов, где изменения спектров все еще весьма значительны. Для этой области концентраций в [10] была предложена модель плотного экситонного газа, использовавшаяся затем и в других работах. Определенный вклад в изменение экситонных спектров могут давать процессы возбуждения экситонных молекул [12], образование многочастичных электронно-дырочных кластеров [23], взаимодействие экситонов с неравновесными акустическими фононами [24]. В эксперименте часто бывает трудно разделить влияние всех этих процессов, протекающих в кристалле одновременно, в результате чего свойства плотной электронно-дырочной системы и харак-

теризующая ее диэлектрическая проницаемость могут, по-видимому, достаточно сильно зависеть от способа возбуждения.

Можно ли описать спектры, сохраняя формулу (1), но делая входящие в нее параметры экситонного резонанса зависящими от уровня возбуждения? Однозначного ответа на этот традиционный уже вопрос пока не существует, поскольку некоторые из перечисленных выше процессов, происходящих в плотной электронно-дырочной системе, могут, вообще говоря, приводить к изменению самого вида диэлектрической проницаемости.

В этой ситуации представляется целесообразным максимально упростить изучаемую систему. Такой наиболее простой системой является, на наш взгляд, система квазирезонансно-возбуждаемых поляритонов смешанной моды вблизи нижайшего экситонного состояния кристалла

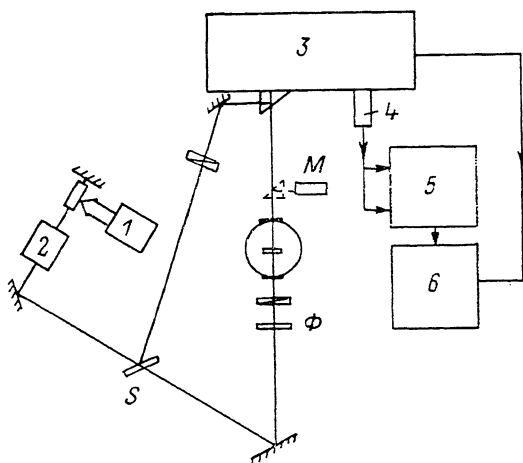


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

CdS. В самом деле, квазирезонансное возбуждение позволяет исключить процессы релаксации фотовозбужденных высоко в зоны носителей, сопровождающих зона-зонное возбуждение, и связанное с этим выделение большого количества избыточной энергии. Использование поляритонов смешанной моды [25] дает возможность уменьшить эффективную силу осциллятора перехода и избавиться тем самым от сильной неоднородности накачки по глубине кристалла. Линия пропускания при этом легко может быть сделана достаточно узкой, что удобно для наблюдения сдвига резонанса, а ее спектральное положение существенно удалено как от линий связанных экситонов, так и от биэкситонного резонанса.

1. Экспериментальная часть

В работе исследовались спектры пропускания выращенного из газовой фазы высокосовершенного пластинчатого кристалла CdS толщиной 1.9 мкм. Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Широкополосное излучение кюветы с красителем кумарин 152А, возбуждавшейся импульсами азотного лазера 1 (длительность 0.5 нс, пиковая мощность 100 кВт, частота повторения 25 Гц), пропускалось через монохроматор 2, вырезавший из него полосу шириной около 1 нм. С помощью делительной пластинки S формировались сигнальный и опорный пучки, приблизительно равные по интенсивности. Опорный пучок направлялся непосредственно на входную щель спектрометра ДФС-24 (3) с дисперсией 0.45 нм/мм, на выходе которого был установлен скоростной фотоумножитель 18ЭЛУФМ. Сигнальный пучок фокусировался в пятно диаметром 25 мкм на кристалл, помещенный в гелиевый криостат и находившийся в парах гелия при тем-

температуре 5 К. Пршедший через кристалл свет также направлялся на входную щель ДФС-24. С помощью микроскопа M можно было осуществлять контроль за положением и качеством пятна на кристалле. Оптическая длина опорного и сигнального каналов была различной, так что сигнальный импульс приходил на ФЭУ (4) на 20 нс позже опорного. Сигнал с ФЭУ разветвлялся на два канала стробоскопического осциллографа С7-12 (5), в один из которых была введена дополнительная задержка, чтобы в момент появления на входе первого канала осциллографа сигнального импульса на входе второго появлялся опорный. Сигналы с аналоговых выходов осциллографа поступали на многоканальный анализатор NOKIA LP4900 (6), который одновременно осуществлял цифровое накопление «сигнального» и «опорного» спектров и был жестко привязан к развертке по спектру ДФС-24 с помощью сигнала электронной метки.

2. Результаты и обсуждение

Спектры пропускания кристалла CdS при различных плотностях мощности возбуждающего излучения показаны на рис. 2. Вплоть до накачек около 400 кВт/см^2 каких-либо существенных изменений в спектрах не наблюдалось. Следует, однако, заметить, что уровень пропускания в минимуме линии несколько изменялся от спектра к спектру, что может

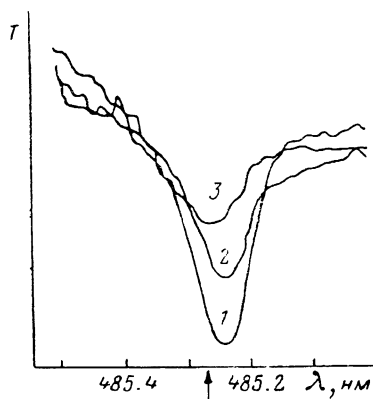


Рис. 2. Спектры пропускания кристалла CdS в геометрии возбуждения смешанной моды [25]: E, k, C лежат в плоскости падения света (ось C параллельна поверхности кристалла), угол падения $\theta=12^\circ$.

1 — 400 , 2 — 700 кВт/см^2 , 3 — 1 МВт/см^2 . Стрелкой отмечено положение продольного экситона.

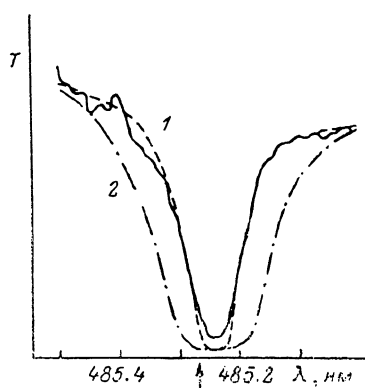


Рис. 3. Спектр пропускания при накачке 400 кВт/см^2 (сплошная кривая) и результаты теоретического расчета на основе формулы (1).

1 — $\Gamma=0.05$, 2 — 0.1 мэВ . Остальные параметры, использованные в расчете: $\epsilon_0=7.4$, $\hbar\omega_0=2.5520 \text{ эВ}$, $M_{\perp}=0.9m_0$, $4\pi\beta=0.013$. Теоретические спектры поправлены на хвост поглощения от вышележащего $B_{n=1}$ экситонного резонанса. Стрелкой отмечено положение продольного экситона.

быть связано, на наш взгляд, с небольшими (не более 20 мкм) изменениями положения пятна возбуждения на кристалле, неизбежно возникающими после установки или снятия нейтральных фильтров. При повышении уровня возбуждения линия пропускания смешанной моды начинает быстро уширяться и исчезать, слегка смещаясь в красную сторону. При накачке 1 МВт/см^2 от нее остается слабая широкая полоса, минимум которой сдвинут в красную сторону на величину около 0.5 \AA .

Обратимся теперь к сравнению экспериментальных результатов с расчетами, выполненными на основе диэлектрической проницаемости (1). Пропускание кристалла в нашем случае определяется потоком энергии каждой из возбуждаемых на границе раздела волн и их интерференционным потоком [26]. Поскольку при малых константах затухания интерференционный поток энергии также мал, а доминирующей из-за граничных условий волне соответствует всегда и меньший коэффициент поглощения,

попробуем сравнить экспериментальные результаты с расчетами в следующей упрощенной модели. Пренебрегая потерями на отражение, которые для смешанной моды при малых углах падения несут существенный вклад [27], будем считать, что ниже резонансной частоты пропускание определяется прохождением через кристалл только волны с большим, а выше — волны с меньшим волновым вектором. Результаты такого расчета показаны на рис. 3, 1. Видно, что соответствие между теорией и экспериментом в целом удовлетворительное. Параметры экситонного резонанса, входящие в (1), остаются при этом теми же, что и в случае предельно малых накачек.

Согласно представлениям о плотном экситонном газе (накачка 1 МВт/см^2 соответствует в нашем случае концентрации электронно-дырочных пар порядка 10^{17} см^{-3} , что явно недостаточно для экранирования кулоновского взаимодействия в экситоне), с увеличением уровня возбуждения Γ должна сильно возрастать, а экситонная поляризуемость несколько уменьшаться [10]. Попробуем описать с этих позиций изменение экспериментальных спектров.

На рис. 3, 2 показаны результаты расчета при большем затухании.

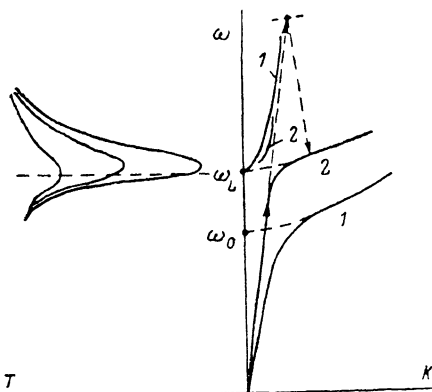


Рис. 4. Дисперсионные кривые смешанной моды.

Показан процесс нелинейного заселения поляритонных состояний выше ω_L . Слева схематично представлены соответствующие спектры пропускания при различных накачках. $E \perp c$ (1), $\theta = 12^\circ$ (2).

Видно, что возрастание Γ приводит к уменьшению пропускания по всему контуру линии в явном противоречии с экспериментом. Уменьшение $4\pi\beta$ не спасает положения, хотя и позволяет объяснить красный сдвиг линии пропускания. Исправить ситуацию могло, казалось бы, предположение о неоднородности накачки по глубине кристалла. Тогда для объяснения спектров необходимо допустить, что экситоны в сильно прокачанном слое вблизи передней грани кристалла по каким-либо причинам (образование электронно-дырочной плазмы или жидкости) не дают вклада в поглощение и лишь слой у задней грани, толщина которого существенно меньше толщины кристалла, заполнен экситонным газом и обуславливает наблюдаемую при высоких накачках линию пропускания. Дополнительным варьируемым параметром становится при этом толщина занятого экситонным газом слоя. Соответствующие расчеты показывают, что толщина этого слоя для спектра 3 (рис. 2) должна быть около 0.1 мкм , эта величина неправдоподобно мала для рассматриваемой ситуации.

Из сказанного следует, что начиная с 400 кВт/см^2 описать спектры пропускания при помощи той же модели, что и для слабых уровней возбуждения, не удастся. На наш взгляд, это может быть связано с несколькими причинами. Прежде всего следует отметить, что определенный вклад в изменение спектра пропускания может давать резонансная поляритонная люминесценция. Не исключено, что именно люминесценция приводит к отмечавшейся выше зависимости спектра пропускания от места на кристалле. С ростом уровня возбуждения ее вклад может сильно возрасти, однако трудно себе представить, чтобы он стал сравнимым с сигналом на краях линии и привел к столь значительным изменениям ее формы, как это имеет место в эксперименте. Заметим, что с повышением накачки происходит изменение спектра пропускания лишь в минимуме и на фиолетовом краю линии смешанной моды, т. е. там, где в кристалле реально существуют две волны. Это наводит на мысль, что наблюдаемое изменение спектра может быть обусловлено обменом энергией между этими волнами. В самом деле, если допустить, что в результате нелинейного процесса

преобразования частоты вверх амплитуда волны с большим волновым вектором аномально возрастает, то из-за интерференционного потока энергии двух волн пропускание на фиолетовом краю линии может также возрасти. Это приведет к смещению минимума пропускания в красную сторону, причем максимально возможное смещение будет отвечать случаю, когда минимум пропускания сместится на ω_L , поскольку на частотах $\omega < \omega_L$, как уже указывалось выше, в кристалле реально распространяется лишь одна волна. Нелинейный механизм преобразования частоты вверх на поляритонном языке может являться результатом процесса рассеяния назад (рис. 4), весьма вероятного из-за высокой плотности конечных состояний.

Автор благодарен Б. С. Разбирину за любезно предоставленный кристалл CdS, В. А. Стаднику, А. Л. Иванову и В. В. Травникову за интерес к работе и плодотворное обсуждение, а также В. В. Коршунову и В. В. Моторину за постоянную помощь при проведении эксперимента.

Список литературы

- [1] Broser I., Pantke K.-H., Rosenzweig M. // Sol. St. Comm. 1986. V. 58. N 7. P. 441—445.
- [2] Аюпян И. Х., Разбирин Б. С. // ФТТ. 1974. Т. 16. № 1. С. 189—191.
- [3] Müller G. O. et al. // Sol. St. Comm. 1977. V. 21. N 2. P. 217—219.
- [4] Leheny R. F., Shah J., Chiang G. C. // Sol. St. Comm. 1978. V. 25. N 9. P. 621—624.
- [5] Bohnert K., Schmieder G., El-Dessouki S., Klingshirn C. // Sol. St. Comm. 1978. V. 27. N 3. P. 295—299.
- [6] Лысенко В. Г., Ревенко В. И. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 7. С. 2144—2147.
- [7] Müller G. O., Weber H. H., Hörické I. // Phys. St. Sol. (b). 1979. V. 91. N 2. P. 531—539.
- [8] Kuroiwa A., Saito H., Shionoya S. // Phys. St. Sol. (b). 1979. V. 96. N 1. P. 483—486.
- [9] Bohnert K., Schmieder G., Klingshirn C. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 98. N 1. P. 175—188.
- [10] Rückmann I., May V., Voigt J. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 102. N 1. P. 97—109.
- [11] Rückmann I., May V., Henneberger F., Voigt J. // J. Lum. 1981. V. 24/25. P. 593—596.
- [12] Schmieder G. et al. // J. Lum. 1981. V. 24/25. P. 613—616.
- [13] Frigo N. J., Mahr H., Erskine D. J. // IEEE J. Quant. Electron. 1982. V. 18. N 2. P. 192—198.
- [14] Kreissl A., Bohnert K., Lyssenko V. G., Klingshirn C. // Phys. St. Sol. (b). 1982. V. 114. N 2. P. 537—544.
- [15] Rossmann H., Henneberger F., Voigt J. // Phys. St. Sol. (b). 1983. V. 115. N 1. P. K63—K67.
- [16] Henneberger F., Puls J., Rossmann H., Vraltsev I. N. // Phys. St. Sol. (b). 1984. V. 121. N 2. P. K191—K194.
- [17] Fujimoto J. G., Shevel S. G., Ippen E. P. // Sol. St. Comm. 1984. V. 49. N 6. P. 605—609.
- [18] Unuma Y., Abe Y., Masumoto Y., Shionoya S. // Phys. St. Sol. (b). 1984. V. 125. N 2. P. 735—742.
- [19] Rossmann H., Henneberger F. // Phys. St. Sol. (b). 1985. V. 131. N 1. P. 185—192.
- [20] Лысенко В. Г. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 2. С. 543—551.
- [21] Klochikhin A. A. et al. // Phys. St. Sol. (b). 1988. V. 147. N 2. P. 727—732.
- [22] Nelson D. K. et al. // Phys. St. Sol. (b). 1988. V. 150. N 2. P. 777—781.
- [23] Haug H., Abraham F. F. // Phys. Rev. B. 1981. V. 23. N 6. P. 2960—2966.
- [24] Hönerlage B. et al. // Phys. St. Sol. (b). 1986. V. 135. N 1. P. 271—282.
- [25] Лебедев М. В., Лысенко В. Г., Тимофеев В. Б. // ЖЭТФ. 1984. Т. 86. № 6. С. 2193—2200.
- [26] Селькин А. В. // ФТТ. 1977. Т. 19. № 8. С. 1433—1438.
- [27] Пермогоров С. А., Селькин А. В., Травников В. В. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 6. С. 1822—1829.