

УДК 592.315

ПОЛЯРИЗАЦИЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ И ОПТИЧЕСКАЯ ОРИЕНТАЦИЯ ДЫРОК В РЬТЕ В СТИМУЛИРОВАННОМ РЕЖИМЕ

М. С. Бреслер, О. Б. Гусев, И. А. Меркулов

В кристаллах n -РЬТе исследована зависимость степени циркулярной поляризации и интегральной интенсивности люминесценции от мощности накачки при двухфотонном возбуждении циркулярно-поляризованным светом CO_2 -лазера.

В рамках двухуровневой модели, учитывающей спины носителей заряда и фотонов, показано, что наблюдающиеся в режиме устойчивой генерации высокие степени циркулярной поляризации рекомбинационного излучения связаны с индуцированными процессами перекачки спина из системы носителей заряда в систему фотонов. Установлено, что поляризация люминесценции вызвана оптической ориентацией дырок, определена концентрация и электронная температура возбужденных носителей заряда. Оценено время спиновой релаксации дырок и начальное значение их среднего спина на генерационных уровнях. Обсуждается возможный механизм спиновой релаксации.

Оптическая ориентация носителей заряда наблюдалась в целом ряде полупроводников. Ее изучение дает богатую информацию о кинетике рекомбинации и спиновой релаксации носителей заряда, позволяет выявлять тонкие детали магнитных взаимодействий электронов и ядер, изучать локальные нарушения симметрии кристаллов [1, 2]. Одним из наиболее эффективных методов исследования оптической ориентации носителей заряда является измерение зависимостей степени циркулярной поляризации рекомбинационного излучения от различных внешних воздействий.

Для существования оптической ориентации необходимо, чтобы время жизни носителей заряда τ было сравнимо с временем их спиновой релаксации τ_s . Однако в целом ряде узкозонных полупроводников, к которому относится и РЬТе, из-за сильной спин-орбитальной связи время спиновой релаксации значительно меньше спонтанного времени жизни и степень оптической ориентации в этих материалах мала. Кроме того, рекомбинационное излучение этих материалов находится в ИК области спектра, что затрудняет исследование малых величин поляризации люминесценции. Поэтому число работ по оптической ориентации в узкозонных материалах до недавнего времени было невелико [3, 4].

В экспериментальной работе [5] при мощной двухфотонной накачке образцов РЬТе циркулярно-поляризованным светом CO_2 -лазера была получена большая степень циркулярной поляризации рекомбинационного излучения. На основании этого был сделан вывод, что при переходе к стимулированному режиму время жизни носителей уменьшается, приводя к повышению степени их оптической ориентации и соответственно степени циркулярной поляризации рекомбинационного излучения.

Однако в нашем сообщении [6] было показано, что в режиме хорошо установленной генерации независимо от соотношения τ и τ_s весь накачиваемый в систему носителей заряда спин переходит в систему фотонов, так что поляризация частиц оказывается исчезающе малой.

В настоящей работе основное внимание уделено исследованию оптической ориентации носителей заряда и поляризации рекомбинационного

излучения в переходной области от режима спонтанной к режиму стимулированной люминесценции; определены некоторые характерные параметры кристаллов RbTe в условиях двухфотонной накачки CO₂-лазером.

1. Теоретическая модель

Рассмотрим простейшую модель оптической ориентации носителей заряда с учетом как спонтанной, так и вынужденной излучательной рекомбинации. Эта модель фактически эквивалентна двухуровневой системе с учетом спина частиц и испускаемых фотонов. Можно написать четыре уравнения, выражающие сохранение числа частиц и числа фотонов с определенным направлением спина при накачке циркулярно-поляризованным светом. Обозначим концентрации частиц со спином «вверх» и «вниз» n_+ и n_- , а концентрации фотонов, поляризованных по правому и левому кругу, N_+ и N_- . Тогда

$$\frac{dn_+}{dt} = G_+ - w_1 N_+ n_+ - w_2 N_- n_+ - \frac{n_+}{\tau} - \frac{n_+ - n_-}{2\tau_s}, \quad (1a)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = G_- - w_1 N_- n_- - w_2 N_+ n_- - \frac{n_-}{\tau} - \frac{n_- - n_+}{2\tau_s}, \quad (1b)$$

$$\frac{dN_+}{dt} = w_1 N_+ n_+ + w_2 N_+ n_- + \frac{\gamma w_1 n_+}{(w_1 + w_2)\tau} + \frac{\gamma w_2 n_-}{(w_1 + w_2)\tau} - \frac{N_+}{T}, \quad (1в)$$

$$\frac{dN_-}{dt} = w_1 N_- n_- + w_2 N_- n_+ + \frac{\gamma w_1 n_-}{(w_1 + w_2)\tau} + \frac{\gamma w_2 n_+}{(w_1 + w_2)\tau} - \frac{N_-}{T}. \quad (1г)$$

Здесь G_+ и G_- — скорости генерации частиц с заданным спином, произведения $w_1 N_+ n_+$ и $w_2 N_- n_+$ описывают процессы вынужденного излучения, а последние два члена в (1a) и (1б) учитывают спонтанную рекомбинацию и спиновую релаксацию фотовозбужденных носителей. $\gamma \sim (R/l)^2(\tau/\tau_r)$ — параметр, показывающий, какая доля переходов идет на возбуждение лазерных мод (R и l — радиус и длина активной зоны — области накачки), $\tau = (\tau_r^{-1} + \tau_{nr}^{-1})^{-1}$ — характерное время жизни носителей с учетом спонтанных и безызлучательных переходов. Время T описывает потери излучения в среде.

В стационарных условиях эту систему удобно свести к следующим четырем алгебраическим уравнениям

$$\left. \begin{aligned} G &= wNn + \frac{n}{\tau} + 2uSP, \\ \frac{N}{T} &= wNn + \frac{\gamma n}{\tau} + 2uSP, \\ Gs_0 &= wNS + S\left(\frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_s}\right) + \frac{u}{2}nP, \\ \frac{P}{T} &= wnP + \frac{2u}{w} \frac{\gamma S}{\tau} + 2uNS, \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

где $n = n_+ + n_-$, $S = (n_+ - n_-)/2$, $N = N_+ + N_-$ и $P = N_+ - N_-$ — концентрации и плотности спина ориентированных носителей и фотонов, а параметры w и u связаны с w_1 и w_2 соотношениями $w = (w_1 + w_2)/2$, $u = (w_1 - w_2)/2$; $G = G_+ + G_-$, $s_0 = (G_+ - G_-)/2G$ — скорость генерации и средний спин ориентированных носителей, поступающих на генерационные уровни. В случае оптической ориентации $s_0 \ll u/2w$ — среднего спина носителей, рождающихся при поглощении циркулярно-поляризованного света.

Общие закономерности поведения сильно связанной системы поляризованных носителей заряда и фотонов были изучены нами в [7]. Здесь мы остановимся только на качественном анализе поведения концентраций частиц и фотонов, среднего спина частиц и степени поляризации излучения в зависимости от уровня накачки G .

Пусть при накачке правоциркулярно-поляризованным светом рождаются носители заряда преимущественно со спином + $n_+ > n_-$. В области

спонтанной люминесценции (область I на рис. 1) концентрации носителей и фотонов рекомбинационного излучения линейно растут с накачкой, а средний спин $s = (n_+ - n_-)/2n$ и поляризация излучения $\rho = (N_+ - N_-)/N$ почти не зависят от уровня возбуждения

$$\left. \begin{aligned} n_{\pm} &= G\tau (1 \pm 2s_0\tau_s/(\tau + \tau_s))/2, \\ N_{\pm} &= \gamma GT (1 \pm 2us_0\tau_s/w(\tau + \tau_s))/2, \\ s &= s_0\tau_s/(\tau + \tau_s), \\ \rho &= 2us_0\tau_s/w(\tau + \tau_s). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

В области устойчивой генерации обеих мод (область III) происходит насыщение концентраций носителей на уровне, определяемом вероятностями переходов и потерями, $n_+ = n_- = 1/2wT$. В этом пределе средний спин $s = 0$, поэтому коэффициент усиления мод N_+ и N_- одинаков, и степень поляризации рекомбинационного излучения не зависит от интенсивности и спинового времени релаксации: $\rho = 2ws_0/u$ (если $s_0 = u/2w$, то $\rho = 1$).

Наличие максимума в зависимости $S(G)$ в переходной области II связано с тем, что рост поляризации частиц из-за умень-

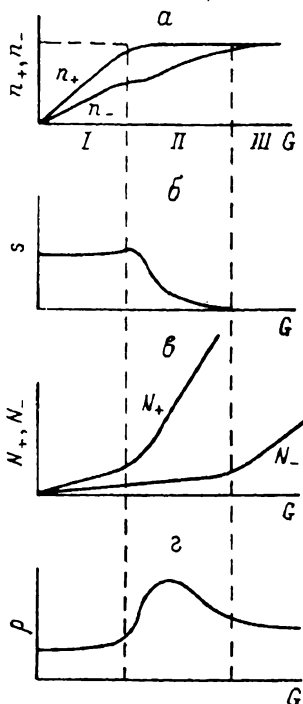


Рис. 1. Зависимость характеристик n_+ , n_- (а), s (б), N_+ , N_- (в), ρ (г) связанной электрон-фотонной системы от скорости генерации G .

шения их времени жизни сменяется (при дальнейшем увеличении G) падением среднего спина s , вызванным индуцированной перекачкой спина в фотонную систему. Как показывают точные расчеты [7], средний

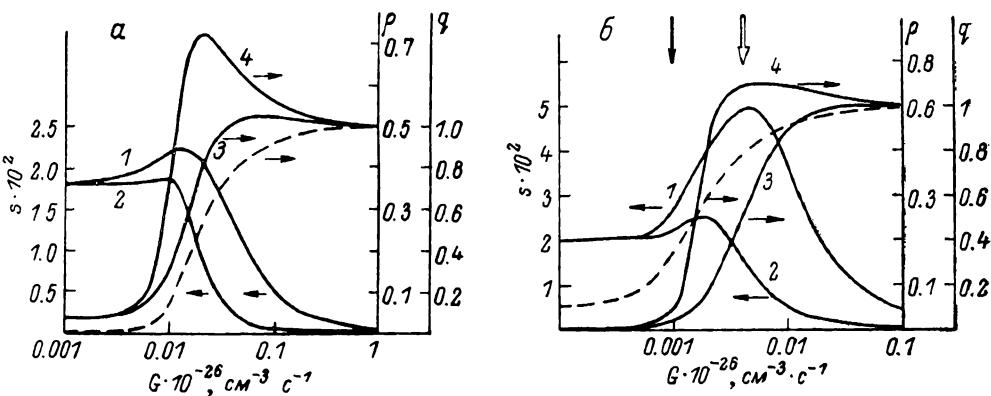


Рис. 2. Расчетные зависимости среднего спина носителей заряда s (1, 2), степени поляризации люминесценции ρ (3, 4) и квантового выхода люминесценции $q = N/GT$ от скорости накачки G .

а — $\tau = 10^{-9}$ с, $\tau_s = 10^{-10}$ с, $\gamma = 0.1$ (1 и 3), $\gamma = 0.01$ (2 и 4); б — $\tau = 10^{-8}$ с, $\tau_s = 10^{-10}$ с, $\gamma = 0.1$ (1 и 3), $\gamma = 0.01$ (2 и 4).

Штриховой линией показана зависимость от G квантового выхода для $\gamma = 0.01$ (а) и для $\gamma = 0.1$ (б). Для $\gamma = 0.1$ стрелками на рис. 2, б отмечены положения порога генерации (черная стрелка) и порога установления поляризации рекомбинационного излучения (белая стрелка).

спин частиц в максимуме не превышает величину $s_{\text{max}} = s_0 (\tau_s/\tau)^{1/2}$, так что при $\tau_s/\tau \ll 1$ $s_{\text{max}} \ll s_0$.

Максимум в поляризации рекомбинационного излучения ρ обусловлен различием порогов генерации для мод N_+ и N_- , поэтому в определенной области накачек мода N_+ находится в генерационном, а мода N_- в спонтанном режиме. В спонтанной области $N \sim \gamma$. Малым факторам γ соответ-

ствуется более резкий порог генерации и более выраженный максимум степени поляризации рекомбинационного излучения. При $\gamma \rightarrow 0$ $\rho_{\max} \rightarrow 1$.

Результаты численного решения системы (2), выполненного на ЭВМ, подтверждают эту качественную картину. Соответствующие данные представлены на рис. 2 для двух отношений τ_s/τ . Обратим внимание на то, что при $\gamma\tau/\tau_s > 1$ возрастание степени поляризации наступает при накачках, существенно превышающих порог генерации. Поэтому целесообразно различать порог генерации, $G=1/w\tau T$, и порог возникновения поляризации рекомбинационного излучения. Если для порога генерации стимулированная скорость рекомбинации должна сравняться со спонтанной, то для порога поляризации скорость перехода спина от носителей заряда к фотонам должна сравняться со скоростью релаксации спина. Заметим, что

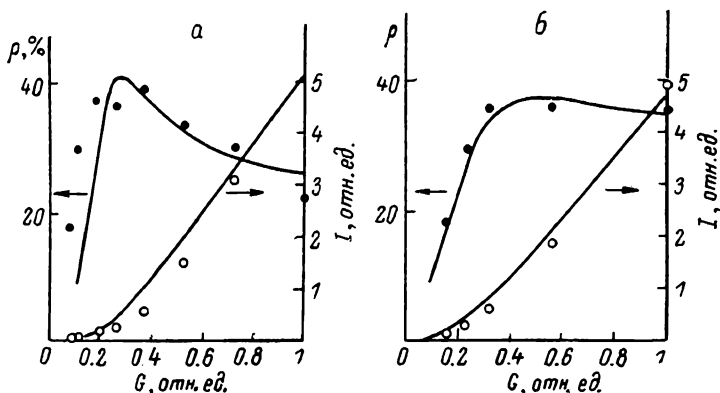


Рис. 3. Зависимости интенсивности I и поляризации люминесценции ρ от скорости возбуждения носителей G .

Светлые кружки соответствуют экспериментальным значениям интенсивности, черные — степени поляризации люминесценции. Кривые показывают теоретические зависимости $\rho(G)$ и $N(G)$. a — экспериментальный режим сильной фокусировки; параметры теоретического расчета: $s_0=0.09$, $\gamma=0.025$, $\tau_s/\tau=0.4$. b — слабая фокусировка ($R_0 > R_a$); параметры теоретического расчета: $s_0=0.12$, $\gamma=0.1$, $\tau_s/\tau=0.4$.

скорость перехода спина к системе фотонов определяется не только средней скоростью вынужденной излучательной рекомбинации wN , но зависит и от поляризации генерационного излучения.

Анализ показывает, что пороги генерации и поляризации практически совпадают при $\gamma\tau/\tau_s \ll 1$. При $\gamma\tau/\tau_s \gg 1$ порог поляризации отвечает условию $G\tau wT = (w/u) (\gamma\tau/\tau_s)^{1/2}$. Различие в порогах генерации и поляризации, по-видимому, наблюдалось Данишевским в PbSe [8].

2. Эксперимент и обсуждение

Эксперименты были выполнены на образцах PbTe n -типа с концентрацией $4-7 \cdot 10^{17}$ см $^{-3}$. Неравновесные носители возбуждались при двухфотонном поглощении излучения CO $_2$ -лазера $\lambda=10.6$ мкм с модулированной добротностью, который генерировал импульсы мощностью 1—2 кВт, длительностью 300 нс и частотой повторения 250 Гц. Линейно-поляризованное излучение лазера преобразовывалось в циркулярно-поляризованное с помощью четвертьволновой пластинки из CdS и фокусировалось на образцы, находившиеся в криостате непосредственно в жидком гелии при температуре 1.8 К. Радиус пятна засветки R был мал по сравнению с толщиной образца l . Рекомбинационное излучение, исследовавшееся в геометрии на просвет, отделялось от мощного излучения накачки фильтром из LiF и регистрировалось фотоприемником Ge Au. Поляризация люминесценции анализировалась с помощью пластинки $\lambda/4$ из слюды и линейного решеточного поляризатора. Для записи кривых деполяризации люминесценции в поперечном магнитном поле (эффект Ханле) применялась модуляция поляризации на частоте около 20 Гц, осуществлявшаяся вращением пластинки.

На рис. 3 представлены экспериментальные значения поляризации ρ и интегральной интенсивности люминесценции I для различных значений скорости возбуждения фотоносителей G . (При двухфотонном возбуждении она пропорциональна квадрату интенсивности накачивающего излучения, $G \sim J^2$). Эксперименты были выполнены на одном и том же образце и отличались лишь фокусировкой накачивающего излучения. Для данных рис. 3, а площадь пятна засветки была меньше, чем в случае, представленном на рис. 3, б. Видно, что при малых интенсивностях накачки (в области спонтанных переходов) дифференциальный квантовый выход детектируемой люминесценции dI/dG существенно ниже, чем в области генерации. Поляризация люминесценции также резко возрастает при переходе в генерационный режим. При этом в случае более сфокусированного накачивающего пучка в переходной области значений G отчетливо виден пик поляризации ρ , а для большей площади пятна засветки такой максимум слабо выражен.

Степень поляризации люминесценции в области установившейся генерации и при одинаковой фокусировке накачивающего излучения зависит от уровня легирования кристалла: мень-

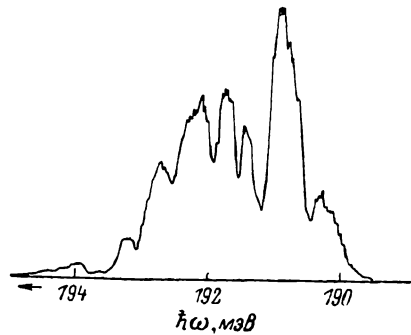


Рис. 4. Спектр рекомбинационного излучения для образца $n\text{-PbTe}$ с равновесной концентрацией электронов $n_0 = 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

шей концентрации равновесных носителей n_0 соответствовала большая степень поляризации рекомбинационного излучения. Так, например, в одном и том же эксперименте для образца с $n_0 = 4 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ было получено $\rho \approx 42\%$, для образца с $n_0 = 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ $\rho = 30\%$.

На рис. 4 представлен спектр люминесценции для одного из исследованных образцов $n\text{-PbTe}$ ($n_0 = 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$). Спектр лежит вблизи края основной полосы поглощения при энергии 190—194 мэВ (наблюдаемая структура вызвана остаточным поглощением излучения парами воды в спектрометре). Такое положение спектра на шкале энергий сразу указывает на то, что наблюдаемая поляризация люминесценции связана с ориентацией дырок, а не электронов. Действительно, для PbTe при гелиевых температурах $\epsilon_g = 190$ мэВ и при равновесной концентрации электронов $n_0 = 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ их энергия Ферми $\epsilon_F^{\#} = 20$ мэВ. Тогда участвующие в излучательных переходах электроны находятся глубоко под поверхностью Ферми и неполяризованы.

В то же время фотовозбужденные дырки оказываются невырожденными. Если предположить, что они вырождены, то из ширины спектра люминесценции ($\Delta \hbar \omega \approx 2.5$ мэВ) получаем концентрацию дырок $p \sim 3 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$, которой соответствует коэффициент усиления 10^3 см^{-1} .¹ В стационарных условиях коэффициенты усиления и потерь должны компенсировать друг друга. В качестве потерь в нашем эксперименте примем потери на выход фотонов из среды $\alpha \sim l^{-1} \sim 10 \text{ см}^{-1}$, поскольку потери, обусловленные внутризонным поглощением, оказываются значительно меньшими. Величина α на два порядка меньше величины коэффициента усиления, поэтому предположение о полном вырождении распределения дырок

¹ Для такой оценки мы воспользовались связью между коэффициентом усиления инверсно-населенных лазерных переходов и коэффициентом поглощения собственного полупроводника, для которого уровни в валентной зоне заполнены электронами, а зона проводимости пуста. Если индуцированные переходы происходят между уровнями, полностью заполненными электронами и дырками (случай вырождения носителей), то коэффициент усиления численно равен коэффициенту поглощения собственного полупроводника для той же энергии фотонов.

неверно, а ширина спектра определяется электронной температурой $T_e \approx 25$ К. Близкое значение T_e дает и оценка, следующая из формы высокоэнергетического края линии люминесценции. Для невырожденной системы дырок коэффициент усиления (при той же энергии фотона) уменьшается в p/N_v раз, где $N_v = 2(2\pi mk_0 T_e / h^2)^{3/2}$ — плотность состояний в валентной зоне. Тогда равенство коэффициента усиления коэффициенту потерь достигается при концентрации дырок $p \approx 10^{14} - 10^{15}$ см $^{-3}$, что согласуется с предположением о невырожденном характере их распределения. Поскольку концентрации неравновесных носителей $p = n \ll n_0$, то межзонная рекомбинация является линейной, что позволяет пользоваться введенной выше двухуровневой моделью.

Предсказываемое теорией насыщение степени поляризации люминесценции при достаточно высоких уровнях накачки согласуется с экспериментом и позволяет определить начальный спин частиц, входящих на уровни генерации s_0 . Согласно теории, значение среднего спина фотоносителей в момент рождения в РbТе равно $s_i = u/(2w) = 0.4$ для состояний края зоны [9] (при возбуждении носителей заряда двухфотонным поглощением излучения CO $_2$ -лазера s_i мало отличается от этой величины). Если в процессе энергетической релаксации не происходит потери спина, то $s_0 = s_i$, и в режиме устойчивой генерации $\rho = 100$ %. Между тем во всех образцах степень поляризации рекомбинационного излучения составляла от 20 до 60 % в зависимости от концентрации равновесных носителей заряда. Снижение степени поляризации по сравнению с теоретическим значением можно объяснить потерей спина возбужденными частицами в процессе релаксации по энергии.

Для сравнения расчетных значений поляризации люминесценции и ее интегральной интенсивности с экспериментальными зависимостями необходимо знать отношение времен τ/τ_s . Нам неизвестны надежные экспериментальные данные относительно времени спиновой релаксации. Поэтому оценка τ_s производилась по минимальной ширине линии деполаризации рекомбинационного излучения в поперечном магнитном поле (эффект Ханле), полученной экстраполяцией экспериментальных данных [7] к бесконечно слабой накачке $G \rightarrow 0$. Полученное значение τ_s составило $1.5 \cdot 10^{-10}$ с, что близко к оценке, следующей из ширины линии комбинационного рассеяния с переворотом спина в n -РbТе [10]. Величина спонтанного времени жизни τ по литературным данным [4, 11] составляет $10^{-9} - 10^{-8}$ с.

На рис. 3 представлены результаты расчета степени поляризации рекомбинационного излучения в зависимости от накачки с константами, выбор которых обоснован выше. Наблюдается хорошее согласие расчета и эксперимента при разных значениях параметра γ .

В заключение рассмотрим возможные механизмы потери спина при термализации ориентированных носителей заряда. Согласно Ивченко [9], основным механизмом спиновой релаксации в РbТе должен быть механизм Эллота—Яфета, обусловленный перемешиванием волновых функций валентной зоны и зоны проводимости для разных спиновых состояний. В этом случае время спиновой релаксации связано с временем релаксации импульса соотношением вида

$$\tau_s^{-1} \sim \tau_p^{-1} \left(\frac{\epsilon}{\epsilon_g} \right)^2$$

где ϵ — энергия носителей заряда (для термализованных носителей тепловая энергия дырки или фермиевская энергия электрона). При подвижностях носителей заряда в РbТе при гелиевых температурах $\mu \sim 10^6$ см 2 /(В.с) $\tau_s \geq 10^{-8}$ с, что намного больше наблюдавшейся нами величины. Однако, если предположить, что релаксация спина происходит при рассеянии не на примесях, а на электронах, то вместо статической диэлектрической постоянной ($\kappa_0 \approx 300$) спиновое время релаксации должно определяться динамической диэлектрической постоянной. Вследствие того, что $\tau_s \sim \kappa^2$,

такая оценка приведет к более разумной величине, лучше согласующейся с экспериментом.

Авторы благодарны Б. П. Захарчене за полезные обсуждения и внимание к работе.

Л и т е р а т у р а

- [1] Дьяконов М. И., Меркулов И. А., Перель В. И. Изв. АН СССР, сер. физ., 1982, т. 46, № 3, с. 482—486.
- [2] Optical Orientation, Eds. F. Meier, B. P. Zakharchenya, North-Holland, Amsterdam, 1984.
- [3] Bichard R., Lavallard P., Bénéoit à la Guillaume C. Proc. 12th Int. Conf. Phys. Semicond., Stuttgart, 1974, p. 766—770.
- [4] Kaufmann B. Phys. Rev. B, 1984, vol. 30, N 8, p. 4640—4647.
- [5] Данишевский А. М. ФТТ, 1978, т. 20, № 10, с. 3150—3152.
- [6] Захарченя Б. П., Бреслер М. С., Гусев О. Б., Меркулов И. А. ДАН СССР, 1987, т. 296, № 5.
- [7] Бреслер М. С., Гусев О. Б., Меркулов И. А. ЖЭТФ, 1987, т. 93, № 12.
- [8] Данишевский А. М. ФТТ, 1987, т. 29, № 4, с. 1006—1010.
- [9] Ивченко Е. Л. ФТТ, 1972, т. 14, № 12, с. 3489—3499.
- [10] Patel C. K. N., Slusher R. E. Phys. Rev., 1969, vol. 177, N 3, p. 1200—1202.
- [11] Washell E. R., Cuff K. F. Radiative Recombination in Semiconductors, Dunod, Paris, 1964, p. 11—20.

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

Поступило в Редакцию
20 июля 1987 г.