

УДК 535.232

ОБРАЗОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ПЛАЗМЫ В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ В СУЛЬФИДЕ КАДМИЯ

С. В. Богданов, В. Г. Лысенко

Анализ трансформации спектров отражения и пропускания CdS в электрическом поле при интенсивном оптическом возбуждении ниже экситонного резонанса показывает, что поле вызывает рост плотности фотовозбужденных носителей и образование электронно-дырочной плазмы, причем распределение носителей сильно неоднородно как на возбуждаемой поверхности, так и по глубине кристалла. Предложен механизм действия поля.

При облучении CdS светом с энергией фотона, меньшей энергии экситона E_0 , генерация носителей обусловлена длинноволновым поглощением Урбаха и двухфотонным поглощением; плотность неравновесных носителей невелика. С увеличением интенсивности возбуждения растет плотность носителей, что вызывает ренормализацию ширины запрещенной зоны E_g и обусловленную экранированием кулоновского взаимодействия ионизацию экситонов. При некоторой пороговой плотности носителей уменьшение E_g столь велико, что начинается сильное однофотонное поглощение, плотность носителей резко возрастает, образуется электронно-дырочная плазма (ЭДП) высокой плотности [1]. Образование ЭДП наблюдается при накачках от сотен кВт/см² в тонких кристаллах (менее 1 мкм) до 1 МВт/см² в толстых [2, 3].

Нами исследовано образование ЭДП в кристалле CdS в электрическом поле. Обнаружено, что приложенное к кристаллу поле вызывает сглаживание экситонных особенностей в отражении и поглощении, что мы связываем с вызванным полем ростом плотности носителей. Увеличение поля приводит к уменьшению необходимой для образования ЭДП плотности накачки. Предположение, что в кристалле образуются островки ЭДП, окруженные экситонным газом, позволяет объяснить трансформацию спектров в электрическом поле. Увеличение как поля, так и интенсивности возбуждения вызывает рост доли поверхности кристалла, занятой ЭДП.

1. Эксперимент

Измерения проведены на кристаллах CdS (концентрация примесей $N_D - N_A = 10^{15}$ см⁻³, выращены из газовой фазы) толщиной 18—22 мкм с напыленными циркониевыми контактами. Ось C лежит в плоскости кристалла, направление электрического поля перпендикулярно оси C . Все измерения проведены при температуре 5 К. Возбуждение осуществлялось импульсным лазером на красителе (длительность импульса 5 нс, полуширина линии излучения 1 Å), для зондирования использовано широкополосное излучение кюветы лазера. Спектральное разрешение (двойной монохроматор ДФС-24) 0.1 Å.

2. Спектры отражения

Спектры отражения в поляризации $E \parallel C$ в области В-экситона показаны на рис. 1. Не совсем обычная форма спектра отражения без выраженного максимума в области поперечного экситона связана с большой глубиной возникшего при напылении химических контактов мертвого слоя [4] (области сильного электрического поля вблизи поверхности кристалла, где экситон как связанное состояние существовать не может). В отсутствие интенсивного возбуждения приложенное к кристаллу внешнее электрическое поле не вызывает заметного изменения определенной по спектрам отражения величины мертвого слоя, который в этих условиях минимален. С увеличением как поля, так и интенсивности возбуждения экситонные особенности уширяются и сглаживаются. Такое поведение

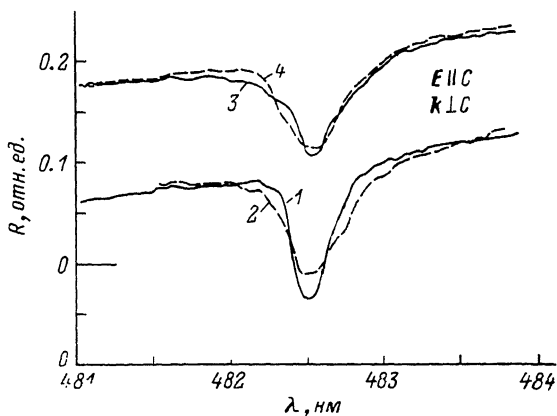


Рис. 1. Спектры отражения в электрическом поле.

$\lambda_{\text{возб}} = 487$ нм, $E_{\text{возб}} \perp C$. $W = 0.3$ МВт/см²: 1 — 0 В/см, 2 — 2 кВ/см; $W = 1$ МВт/см²: 3 — 0 В/см, 4 — 2 кВ/см.

спектров отражения можно описать увеличением константы затухания Γ с одновременным уменьшением экситонной поляризуемости $4\pi\alpha_0$ в комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon(\hbar\omega)$, отвечающей экситонному газу высокой плотности [3, 5, 6]

$$\epsilon(\hbar\omega) = \epsilon_b + \frac{4\pi\alpha_0 E_T^2}{E_T^2 - (\hbar\omega)^2 - i\hbar\omega\Gamma} \quad (1)$$

где E_T — энергия поперечного экситона, $\hbar\omega$ — энергия фотона, ϵ_b — фоновая диэлектрическая проницаемость. При расчете по формуле (1) мы не учитывали пространственную дисперсию (зависимость ϵ от волнового вектора $k = n\omega/c$, где n — комплексный показатель преломления, c — скорость света в вакууме), вклад которой в $\epsilon(\hbar\omega)$ при умеренной величине $\Gamma \geq 0.3$ мэВ пренебрежимо мал. Уменьшение экситонной поляризуемости эквивалентно уменьшению величины продольно-поперечного расщепления $\Delta_{LT} = E_L - E_T$ между уровнями продольного и поперечного экситонов. Однако в условиях наших экспериментов с ростом интенсивности возбуждения и поля изменения Δ_{LT} не происходит (рис. 2 [7]). Таким образом, модель, исходящая из уменьшения экситонной поляризуемости, противоречит экспериментальным данным. Более обоснованным нам представляется предположение, что возбуждаемая поверхность разбивается на области, занятые ЭДП, и области с экситонным газом (ЭГ), причем с ростом накачки растет доля поверхности, занятая ЭДП, и увеличивается коэффициент затухания Γ в областях, занятых ЭГ [3]. Если спектры отражения при интенсивности возбуждения до 0.3 МВт/см² можно удовлетворительно описать увеличением Γ , то при большей накачке наилучшее соответствие получается введением еще одного параметра α — доли кристалла, занятой ЭДП (см. таблицу).

W , МВт/см ²	E , кВ/см	Γ_R , мэВ	α	Γ_T , мэВ	β	σ	γ
0.3	0	0.8	0	0.4	0	0.05	0
0.3	1.5	1.0	0	0.4	0	0.3	0
0.3	1.7	1.2	0	0.5	0.1	0.42	0.09
0.3	2.0	1.6	0.1	0.6	0.26	0.66	0.23
1.0	0	1.2	0	0.4	0	0.1	0
1.0	1.5	1.3	0	0.5	0.05	0.47	0.05
1.0	1.7	1.4	0.3	0.6	0.3	0.7	0.35
1.0	2.0	1.6	0.7	0.7	0.85	0.9	0.85

3. Спектры пропускания

На рис. 2 приведены спектры пропускания в поляризации $E \parallel C$ при возбуждении $E \perp C$. Видны линии поглощения, соответствующие триплетному A_F - и продольному A_L -экситонам, и широкая полоса поглощения, соответствующая B -экситону. С ростом накачки, как и в спектрах отражения, заметны уширение и ослабление экситонных особенностей и, кроме того, рост фонового поглощения, связанный с разрешенными переходами из валентной B -зоны. Влияние на спектры пропускания

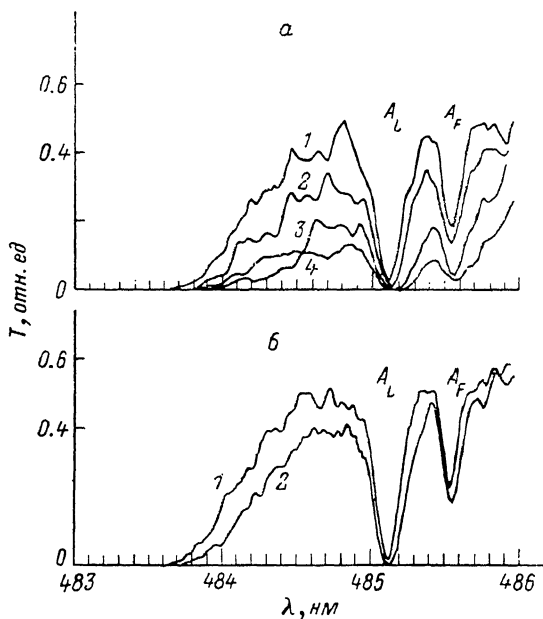


Рис. 2. Спектры пропускания CdS в электрическом поле в поляризации $E \parallel C$, $k \perp C$. $\lambda_{\text{возб}} = 487$ нм, $E_{\text{возб}} \perp C$. а: $W = 1$ МВт/см². 1 — 0 В/см, 2 — 1.5, 3 — 1.7, 4 — 2 кВ/см; б: $W = 0.3$ МВт/см². 1 — 0 В/см, 2 — 2 кВ/см.

электрического поля мало при слабых (менее $3 \cdot 10^4$ Вт/см²) и значительно при больших (более 10^5 Вт/см²) накачках. Для определения параметров экситонов мы моделировали спектр пропускания исходя из комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon(\hbar\omega)$ аналогично (1), но с учетом вклада трех экситонных резонансов (A_F -, A_L - и B -экситонов). Влиянием мертвого слоя и пространственной дисперсии, как показал расчет, можно пренебречь.

Из рис. 3, а видно, что спектр пропускания невозбужденного кристалла (кривая 1) хорошо описывается простой моделью с однородным распределением носителей (кривая 2), однако описать поведение спек-

тров пропускания при возбуждении выше 10^5 Вт/см² таким образом не представляется возможным; увеличение фонового поглощения, связанного с разрешенными переходами из валентной В-зоны, должно моделироваться увеличением константы затухания Γ , что вызывает резкое ослабление и исчезновение структур, обусловленных A_F - и A_L -экситонами с малой силой осциллятора (кривая 3 на рис. 3, б). Наблюдаемое поведение экспериментальных кривых невозможно описать и уменьшением экситонной поляризуемости. Однако, как и спектры отражения, спектры пропускания хорошо описываются в предположении, что часть β поверхности занята ЭДП, а остальная часть — ЭГ высокой плотности [3, 7]. Тогда островки плотной ЭДП с ренормализованной шириной запрещенной зоны будут отвечать за фоновое поглощение, а области ЭГ давать вклад в экситонную структуру (кривая 2 на рис. 3, б). Доля поверхности, занятой ЭДП, растет с увеличением как возбуждения, так и поля. Поскольку пропускание плотной ЭДП в области 483—484 нм практически равно нулю, то отношение пропускания в этой области длин волн к про-

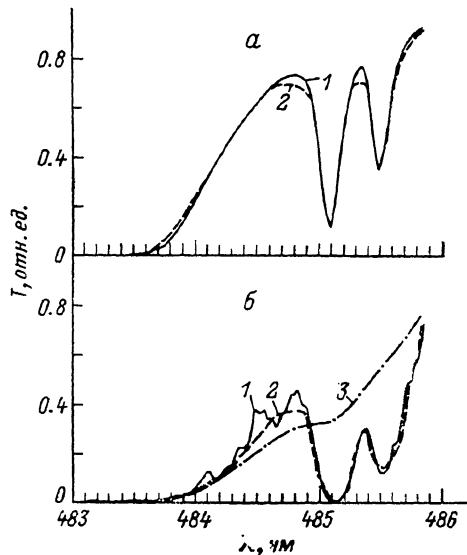


Рис. 3. Спектры пропускания CdS в поляризации $E \parallel C$, $k \perp C$.

а: 1 — $W=1$ Вт/см², 0 В/см; 2 — расчет;
б: 1 — $W=1$ МВт/см², 2 кВ/см; 2, 3 — расчет.

пусканию невозбужденного образца даст долю кристалла, не занятую ЭДП. Полученная таким образом величина γ (занятая ЭДП доля поверхности) хорошо коррелирует с величиной β , полученной моделированием спектров пропускания (см. таблицу).

На рис. 4 приведены спектры пропускания в поляризации $E \perp C$. Линия поглощения I_2 связанного на нейтральном доноре экситона с ростом интенсивности возбуждения и приложенного поля сглаживается и исчезает, а фоновое поглощение, связанное с разрешенными переходами из валентной А-зоны, растет. Относительное ослабление линии I_2 связано с насыщением поглощения, поэтому мы можем определить, какая часть кристалла δ имеет плотность носителей не менее 10^{15} см⁻³ (см. таблицу).

Концентрация фотовозбужденных носителей зависит не только от плотности мощности, но и от энергии фотона возбуждающего излучения. Нами проведено исследование спектров пропускания на длине волны возбуждения в кристаллах с различной величиной мертвого слоя, т. е. с различным качеством поверхности. Величина поглощения в этих спектрах (рис. 5) прямо связана с плотностью фотовозбужденных носителей. Видно, что приложенное поле сильно влияет на пропускание кристалла 1 (мертвый слой 80 Å) в области 485—455 нм и почти не влияет на пропускание кристалла 2 с величиной мертвого слоя 150 Å (рис. 5, а). Более того, спектр кристалла 2 в отсутствие поля близок к спектру кристалла 1 в поле 2 кВ/см. Заметим, что в полях выше 2 кВ/см вид спектров пропускания обоих кристаллов почти не меняется.

4. Обсуждение и выводы

С ростом интенсивности накачки растет и плотность носителей, что проявляется в уширении экситонных особенностей из-за экситон-экси-

тонных взаимодействий и ренормализации ширины запрещенной зоны при неизменном положении уровня экситона. Однако спектр пропускания в предположении однородного распределения носителей на поверх-

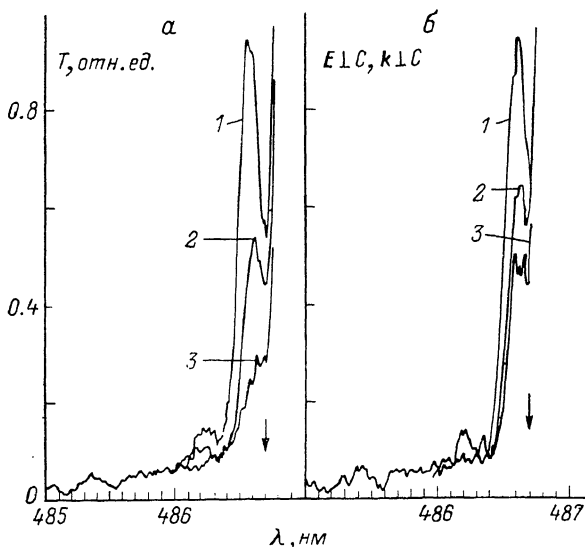
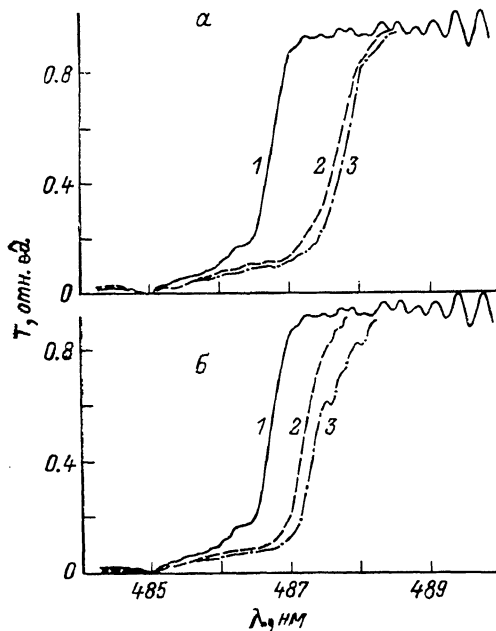


Рис. 4. Спектры пропускания CdS в поляризации $E \perp C$.

$\lambda_{\text{возб}} = 487$ нм. а — $W = 0.3$, б — $W = 1.5$ МВт/см². 1 — 0 В/см, 2 — 1.5, 3 — 1.7 кВ/см. Стрелка указывает положение линии I_2 .

ности сильно возбужденного кристалла не удается описать никакой комбинацией экситонных параметров $4\tau a_0$ и Γ . Смоделировать поведение спектров отражения и пропускания при высокой интенсивности накачки,



не прибегая к уменьшению экситонной поляризуемости, удается лишь в предположении неоднородного распределения носителей в возбужденной области. Из таблицы видно, что для описания отражения требуется большая величина затухания Γ_R , чем для описания спектров пропускания. Это становится понятным, если учесть, что в отражение вносит вклад лишь ближайшая к поверхности часть кристалла толщиной порядка половины длины волны, где хуже качество кристалла и выше плотность фо-

Рис. 5. Пропускание на длине волны возбуждения $E \perp C$, $k \perp C$.

$W = 100$ кВт/см². а: кристалл 1, 0 В/см (1); кристалл 2, 0 В/см (2), 2 кВ/см (3); б: кристалл 1, 0 В/см (1), 1.5 (2), 1.7 кВ/см (3).

товозбужденных носителей. В пропускание же входит усредненная по кристаллу (толщина кристалла 18—22 мкм) и определяемая объемом (где плотность носителей в среднем невелика) константа затухания Γ_T . Некоторое отличие определенной по спектрам отражения и пропускания доли кристалла, занятой ЭДП, можно объяснить меньшей точностью

определения этого параметра из спектров отражения (за счет бóльшей величины Γ).

Увеличение как доли поверхности, занятой ЭДП, так и константы затухания Γ говорит о росте плотности фотовозбужденных носителей с ростом приложенного поля. В пользу этого говорит также уменьшение коэффициента пропускания на длине волны возбуждения. Рост вызванных полем изменений с увеличением интенсивности возбуждения свидетельствует о непрямом характере влияния поля на коэффициент поглощения. Нам представляется, что поле влияет на плотность фотовозбужденных носителей следующим образом. При умеренной плотности носителей, когда межчастичными взаимодействиями можно пренебречь, недостаточное для прямой ионизации экситона электрическое поле вызывает незначительный красный сдвиг и уширение экситонного резонанса (эффект, аналогичный эффекту Франца—Келдыша, но с учетом кулоновского взаимодействия носителей) [8] и уширение, обусловленное ударной ионизацией носителей [9]. Наведенное полем дополнительное поглощение вызывает рост плотности носителей, что приводит к дополнительному экранированию кулоновского взаимодействия и ренормализации ширины запрещенной зоны E_G [10], вызванной многочастичными взаимодействиями. Уменьшение E_G вызывает рост коэффициента поглощения на длине волны возбуждения, что в свою очередь приводит к росту плотности носителей и дальнейшему уменьшению E_G . Однако с увеличением плотности носителей уменьшается их время жизни и увеличивается длина диффузии (с 1 мкм в ЭГ низкой плотности до 3—4 мкм в ЭДП). Эти конкурирующие факторы и определяют установившуюся плотность носителей. При достижении некоторой критической плотности носителей уменьшение E_G так велико, что начинается сильное однофотонное поглощение, образуется ЭДП высокой плотности. Вызванное электрическим полем поглощение смещает равновесие, изменяя плотность носителей, а при интенсивности возбуждения выше критической (для данной величины поля) может вызвать образование ЭДП. Роль зародышей, на которых формируются островки ЭДП, могут играть флуктуации плотности носителей [11, 12]. С образованием островка ЭДП, имеющего повышенную по сравнению с остальной частью кристалла проводимость, величина поля в нем падает (что не меняет уже величины и характера поглощения), но поле вокруг островка растет, что вызывает рост поглощения в окружающей ЭДП области. Этот механизм и определяет, на наш взгляд, критические параметры флуктуации плотности и, следовательно, концентрацию фотовозбужденных носителей. Поскольку коэффициент поглощения ЭДП в области энергий вблизи экситонного резонанса достигает 10^3 — 10^4 см⁻¹, то островки ЭДП, имеющие толщину 3—4 мкм [13], а не объем определяют коэффициент пропускания занятой ЭДП части кристалла. Оставшаяся часть кристалла дает определяемый объемом характерный экситонный вклад в экспериментально регистрируемый сигнал пропускания. Заметим, что и при экранировании кулоновского взаимодействия донорными электронами в CdS : Cl изменения силы осциллятора экситонного перехода не происходит, а ослабление экситонной структуры в отражении количественно описывается металлизацией части кристалла (появлением не дающих вклада в экситонные особенности островков с концентрацией примеси выше моттовской, где экситон как связанное состояние не существует) [14].

Наблюдаемое на рис. 4 сглаживание линии I_2 обусловлено насыщением поглощения вследствие заполнения нейтральных доноров экситонами. Поскольку через области, занятые вблизи поверхности ЭДП, излучение с $\lambda < 470$ нм в поляризации $E \perp C$ практически не проходит, то определенная по насыщению линии I_2 величина δ характеризует занятую ЭДП часть кристалла. Рост δ с ростом поля говорит о повышении концентрации носителей и коэффициента поглощения на длине волны возбуждения, усредненных по глубине кристалла. Из-за малой по сравнению с толщиной кристалла длиной диффузии бóльшая плотность носи-

телей у поверхности не может отвечать за рост средней по всей толщине кристалла плотности. В областях кристалла, занятых ЭГ, возбуждение однородно и плотность носителей не зависит от глубины. Возникающие в объеме кристалла флуктуации плотности перемещаются к передней поверхности и вызывают рост поглощения из-за концентрационного сдвига E_G . Уменьшение времени жизни с ростом плотности носителей обуславливает достижение равновесной концентрации, при которой скорости генерации и рекомбинации равны. Небольшой рост поглощения, вызванный электрическим полем, вызывает изменение равновесной (зависящей от интенсивности возбуждения) плотности носителей в объеме.

Различная степень влияния внешнего поля на спектры пропускания разных кристаллов обусловлена, на наш взгляд, состоянием поверхности кристалла. Образцы, имеющие мертвый слой менее 80 \AA , характеризуются меньшим поглощением в отсутствие внешнего поля и наиболее выраженным влиянием поля на спектр пропускания (рис. 5, а). Поведение спектров пропускания образцов с величиной мертвого слоя более 150 \AA можно объяснить влиянием сильных приповерхностных полей, инициирующих рост коэффициента поглощения и плотности носителей при больших интенсивностях возбуждения. В отсутствие интенсивного возбуждения спектры пропускания этих кристаллов практически такие же, как и у кристаллов с хорошей поверхностью. Тот факт, что для возбуждения ЭДП в тонких кристаллах требуется меньшая плотность возбуждения $[^3]$, чем в толстых, также может быть объяснен существованием сильных (порядка кВ/см) электрических полей, не приводящих еще к прямой ионизации экситона. В пользу существования таких полей говорит отсутствие в спектре люминесценции таких кристаллов линий, связанных на нейтральных донорах и акцепторах экситонов (экситонно-примесных комплексов), что вызвано полевой ионизацией этих состояний.

Таким образом, трансформация спектров пропускания и отражения в электрическом поле связана с ростом плотности фотовозбужденных носителей из-за увеличения коэффициента поглощения на длине волны возбуждения. Иницированный полем рост поглощения вызван уширением экситонного резонанса и сдвигом E_G с ростом плотности носителей.

Л и т е р а т у р а

- [1] *Klingshirn C., Bohnert K., Kait H. et al. J. Lumin., 1985, vol. 30, N 1, p. 188—203.*
- [2] *Henneberger F., Puls J., Rossman H., Uraltsev I. N. Phys. St. Sol. (b), 1984, vol. 121, N 2, p. K191—K194.*
- [3] *Bohnert K., Schneider G., Klingshirn C. Phys. St. Sol. (b), 1980, vol. 98, N 1, p. 175—188.*
- [4] *Hopfield J. J., Thomas D. G. Phys. Rev., 1963, vol. 132, N 2, p. 563—572.*
- [5] *Leheny R. F., Shah J., Chang C. Sol. St. Commun., 1978, vol. 24, N 9, p. 621—624.*
- [6] *Ruckman I., May U., Uoight J. Phys. St. Sol. (b), 1980, vol. 102, N 1, p. 97—109.*
- [7] *Лысенко В. Г. ФТТ, 1987, т. 29, № 2, с. 543—552.*
- [8] *Dow J. D., Redfield D. Phys. Rev. B, 1970, vol. 1, N 8, p. 3358—3368.*
- [9] *Лебедев М. В., Лысенко В. Г. ФТТ, 1982, т. 24, № 10, с. 3040—3044.*
- [10] *Shmitt—Rink S., Lowenau Z., Haug H. Z. Phys. B, 1982, vol. 47, N 1, p. 13—17.*
- [11] *Koch S. W., Schmidt H. E., Haug H. Appl. Phys. Lett., 1984, vol. 45, N 9, p. 932—934.*
- [12] *Henneberger F., Rossman H. Phys. St. Sol. (b), 1984, vol. 121, N 2, p. 685—694.*
- [13] *Majumder F. A., Swoboda H.—E., Kempf K., Klingshirn C. Phys. Rev. B. 1985, vol. 32, N 14, p. 2407—2418.*
- [14] *Богданов С. В. ФТТ, 1988, т. 30, № 2, с. 452—456.*