

ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ЖИДКОСТИ В СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛАХ InSe

Н.Б. КАХРАМАНОВ, Т.Г. МАМЕДОВ, Л.Н. АЛИЕВА

Институт Физики НАН Азербайджана

г. Баку, ул. Г. Джавида 33.

Приведены экспериментальные данные по наблюдению стимулированного излучения при сильной оптической накачке (до $0.3 \text{ МВт} \cdot \text{см}^{-2}$) в слоистых кристаллах InSe. Согласно плазменной модели электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) описано возникновение инверсии заселенности. Проведена оценка критических параметров плотности n_c и температуры T_c . На основе спектров стимулированного излучения построена жидкостная ветвь фазовой диаграммы экситонный газ - электронно-дырочная жидкость.

The experimental data on the observation stimulated radiations are resulted at high optical excitation rates (up to $0.3 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$) in layered crystals InSe. According to plasma model of a electron-hole liquid (EHL) occurrence of inversion of population is described. The critical parameters of density n_c and temperature T_c were determined. On the basis of spectra stimulated radiations the liquid branch of the phase diagram of exciton gas - EHL is constructed.

Стимулированное излучение подробно исследовалось в полупроводниках [1-3].

В работах [4,5] предлагались различные механизмы стимулированного излучения в кристаллах InSe. Различие механизмов обусловлено, с одной стороны, различием применяемых моделей коллективных процессов, а с другой моделей зонной структуры.

В серии работ [7,8] сообщалось о наблюдении в спектрах спонтанного излучения слоистых кристаллов InSe электронно-дырочной жидкости. В работах [9,10] показаны процессы усиления света, обусловленные образованием ЭДЖ. Было показано, что при возникновении ЭДЖ в спектрах стимулированного излучения вполне определенно коррелирует новая линия, что указывало на эффективность процессов усиления света в ЭДЖ.

В настоящей работе приводятся новые экспериментальные результаты, полученные при исследованиях спектров стимулированного излучения в InSe, которые интерпретируются на основе модели зонной структуре InSe [9]. Целью настоящей работы являлось детальное исследование спектров стимулированного и спонтанного излучения InSe в условиях образования ЭДЖ. На основе теоретической плазменной модели ЭДЖ были рассчитаны химический потенциал электронно-дырочных пар как функция температуры – T , и концентрации неравновесных носителей – n . Определены критические параметры n_c и T_c ЭДЖ. Впервые в слоистых кристаллах построена фазовая диаграмма экситонный газ - электронно-дырочная жидкость, как функция n и T .

ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ.

Исследовались монокристаллы InSe, выращенные методом Бриджмена. В качестве источника возбуждения использовался азотный лазер $h\nu_{\text{изл}}=3.667 \text{ эВ}$ с длительностью импульса $\sim 10 \text{ нс}$, частотой следования импульсов $\sim 30 \text{ Гц}$, и мощностью $\sim 100 \text{ кВт}$. Луч света падал на поверхность слоев кристаллов под небольшим углом к оси c (нормаль к слоям) или перпендикулярно слоям. При исследованиях спектров стимулированного

излучения регистрировался свет, испущенный в направлении $\perp c$. Возбуждение при этом осуществлялось с помощью узкой полоски длиной 3 мм, получаемый цилиндрической линзой. При изучении спектров спонтанной люминесценции регистрировалось излучение, испускаемое в направлении, близком к оси c . Спектры фотолюминесценции фиксировались с помощью стробоскопической системы регистрации и спектрометра ДФС-12 в интервале температур $T=5 \div 80 \text{ К}$.

По всей совокупности полученных результатов удалось выделить две группы образцов, различающихся по спектрам стимулированного излучения. Результаты, полученные по одной группе образцов, оказались полностью соответствующими литературным данным [4,5].

На рис.1 приведены спектры стимулированного излучения, зарегистрированные при уровне возбуждения $I_0=0.3 \text{ МВт} \cdot \text{см}^{-2}$ на образце InSe из второй группы при разных температурах. При $T=10 \text{ К}$ спектр состоит из S линии ($\lambda_s=9380 \text{ \AA}$, $\hbar\omega=1.323 \text{ эВ}$), которая является самой коротковолновой из всех линий стимулированного излучения, и P_r линии.

С увеличением температуры S линия ведет себя характерным образом: коротковолновое крыло S линии смещается в сторону больших длин волн, в результате чего ширина S линии уменьшается с ростом температуры. При приближении температуры к 39К интенсивность S линии резко падает и она пороговым образом исчезает из спектра. При $T=40 \text{ К}$ спектр стимулированного излучения состоит из одной P_r линии излучения.

На рис.2 показано поведение спектров стимулированного излучения в зависимости от уровня возбуждения при $T=5 \text{ К}$. При плотности возбуждения $I_0=0.3 \text{ МВт} \cdot \text{см}^{-2}$ спектр состоит в основном из S линии. С понижением уровня возбуждения S линия исчезает пороговым образом и в спектре остается только P_r линия. На рис.3 показана зависимость интенсивности S и P_r линий от плотности возбуждения при $T=5 \text{ К}$. С увеличением плотности возбуждения при достижении некоторой плотности электронно-дырочных пар пороговым образом появляется S линия. Интенсивность S линии растет с

ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ЖИДКОСТИ В СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛАХ InSe

плотностью по закону, близкому к линейному, но сильнее чем P_r линия в области высоких плотностей. Сравнение спектров стимулированного излучения со спектром спонтанного излучения при высоких уровнях возбуждения показывает, что максимум S линии при $T=5K$ практически совпадает с положением линии спонтанного излучения, соответствующей рекомбинации электронно-дырочных пар в ЭДЖ, образованных в системе непрямых экситонов. Поэтому S линия излучения в InSe при низких температурах по ее характерному поведению приписывается усилению света в ЭДЖ [10].

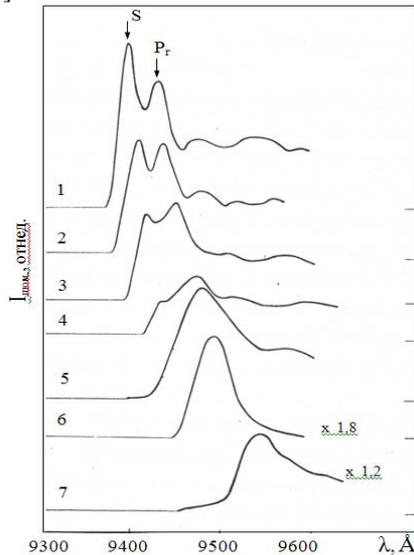


Рис.1. Спектр стимулированного излучения InSe при уровне возбуждения $I_0 = 0.3 \text{ MBm} \cdot \text{см}^{-2}$ ($n = 2.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), $T=5K$ (1), 20K (2), 30K (3), 35K (4), 39K (5), 50K (6), 70K (7).

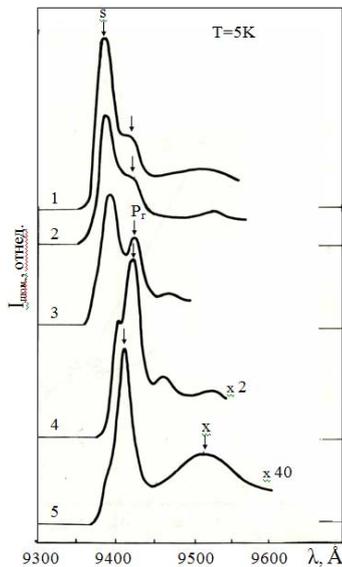


Рис.2. Спектр стимулированного излучения InSe при $T=10K$ в зависимости от уровня возбуждения. $I_0 = 0.3 \text{ MBm} \cdot \text{см}^{-2}$, I_0 (1), $0.74 \cdot I_0$ (2), $0.38 \cdot I_0$ (3), $0.15 \cdot I_0$ (4), $0.06 \cdot I_0$ (5)

Обсудим природу линий стимулированного излучения в InSe, опираясь на полученные результаты и имеющиеся литературные данные. Линия P_r ($\lambda_r = 9420 \text{ Å}$, $\hbar\omega = 1.317 \text{ эВ}$) была зарегистрирована ранее в работах [4,5], соответственно были предложены механизмы, приводящие к ее появлению. При $T=5K$ максимум указанной линии располагается на 22 мэВ ниже положения прямого экситонного состояния. В [4,5] предположено, что линия P_r является результатом неупругого рассеяния прямых экситонов друг на друга, при котором один из них рекомбинирует, а другой - образует свободную электронно-дырочную пару. При этом $h\nu_{изл} = E_g^{np} - 2E_{экс} - \Delta E$ где: $h\nu_{изл}$ - положение линии излучения, E_g^{np} - ширина прямой запрещенной зоны, $E_{экс}$ - энергия связи прямых экситонов, $\Delta E = \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right) \left(\frac{\hbar^2}{2} \right) (3\pi^2 n)^{2/3}$ - определяется энергией свободных электронно-дырочных пар, n - концентрация свободных носителей, $m_{e,h}$ - эффективные массы плотности состояний электронов и дырок. При уровнях оптической накачки реализуемых в экспериментах, и значениях эффективных масс, имеющихся в литературе, положение P_r линии хорошо согласуется с расчетными в рамках предлагаемой зонной модели. Энергетическое положение S линии при $T=5K$ совпадает с положением линии спонтанной люминесценции, обусловленной излучением ЭДЖ. Температурное поведение S линии происходит полностью в соответствии с процессами усиления света в сильно вырожденной электронно-дырочной плазме, каковой является ЭДЖ [11].

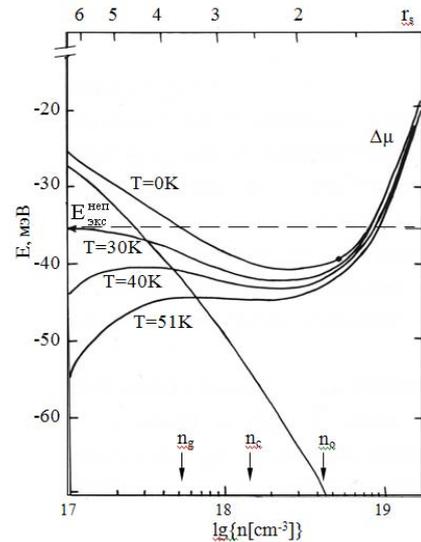


Рис. 3 Рассчитанные значения перенормированной ширины запрещенной зоны $E'_g(0)$ при $T=0K$, в зависимости от концентрации n , и химического потенциала μ в зависимости от n при различных температурах для InSe. Значения μ и $E_g^{непр}(0)$ отсчитаны от $E_g^{непр}(0)$.

Положение коротковолнового порога стимулированного излучения ЭДЖ определяется уровнем химического потенциала. В случае спонтанного излучения положение химического потенциала определяется при подгонке экспериментальной формы линии излучения с расчетной. Последнее сильно затрудняет точное определение химического потенциала. Для теоретического расчета применим плазменную модель для ЭДЖ. Согласно этой модели сдвиг химического потенциала происходит по квадратичному закону:

$$\mu(T) = \mu(0) - \frac{1}{2} \gamma(n_0) (k_B T)^2, \quad (1)$$

где: $\mu(0)$ - химический потенциал при $T=0$;

$$\gamma(n) = \frac{1}{\hbar^2} \left(\frac{\pi}{3n} \right)^{2/3} \left(v_e^{2/3} m_{de}^* + m_{dh}^* \right)$$

Для расчета положения химического потенциала $\mu(n, T)$ в зависимости от концентрации n и температуры T использовали

$$\mu(n, T) = F(n, T) + n \frac{\partial F(n, T)}{\partial n} \quad (2)$$

где свободная энергия $F(n, T)$ в рамках плазменной модели имеет вид:

$$F(n, T) = E(n) - \frac{1}{2} \gamma(n) (k_B T)^2 \quad (3)$$

$E(n)$ – среднюю энергию, приходящуюся на одну электронно-дырочную пару, рассчитали в рамках полностью самосогласованного приближения [12]

$$E(n) = \frac{3}{10} (3\pi^2 \hbar^2 n)^{2/3} \left(\frac{1}{m_{de}^* v_e^{2/3}} + \frac{1}{m_{dh}^*} \right) - \frac{4.8316 + 5.0879 r_s}{0.0512 + 3.0426 r_s + r_s^2} R \quad (4)$$

где: $r_s = \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{1/3} \frac{1}{a_{экс}}$ - безразмерный параметр,

характеризующий плотность; $a_{экс}$ и R -соответственно боровский радиус и постоянная Ридберга для экситонов.

На рис.3 приведены результаты расчета химического потенциала $\mu(n, T)$ для InSe и зависимость перенормированной ширины запрещенной зоны $E_g'(0)$ от концентрации неравновесных носителей при $T = 0$.

При расчетах использовались следующие параметры InSe: $E_g^{неп}(0) = 1.371$ эВ,; эффективные массы $m_e^{\parallel} = m_e^{\perp} = 0.46 m_0$, $m_h^{\parallel} = m_h^{\perp} = 0.5 m_0$ (\parallel, \perp соответствуют направлениям, параллельном и перпендикулярном оси с кристалла); диэлектрическая проницаемость $\epsilon = 9.6$; число вырожденных зон проводимости $\nu_e = 3$.

На кривой μ точкой отмечено состояние, соответствующие равновесной плотности $n_0 = 5,75 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ($r_s = r_0 = 1.633$), при который $E(n)$ имеет минимум.

При температуре $T = T_c = 51K$ зависимость $\mu(T_c, n)$ имеет перегиб в точке $n = n_c = 1.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. При указанных критических значениях T_c и n_c исчезает различие между газовой и жидкостной фазами. Рассчитав зависимости $\mu(n, T)$ можно, определить и форму линии стимулированного излучения. Коэффициент усиления при заданной геометрии измерений определяется как

$$\alpha(\hbar\omega) \cong \frac{1}{\omega^2} I_{sp} \left[1 - \exp\left(\frac{\hbar\omega - E_g'(T) - E_F^e(T) - E_F^h(T)}{k_B T} \right) \right] \quad (5)$$

где: $E_F^e(T)$, $E_F^h(T)$ - энергия Ферми электронов и дырок соответственно, I_{sp} - интенсивность спонтанного излучения.

Из (5) видно, что для электронов и дырок условие инверсии заселенности имеет место при условии

$$E_F^e(T) + E_F^h(T) \geq 0 \quad (6)$$

Спектр усиления должен наблюдаться в спектральном диапазоне от $E_g'(T)$ до $E_g'(T) + E_F^e(T) + E_F^h(T)$. При этом ширина линии определяется суммой энергий Ферми для электронов и дырок. Сумму энергий Ферми для электронов и дырок можно вычислить на основе плазменной модели ЭДЖ

$$E_F(T) = E_F(0) \left[1 - \frac{\pi^2}{12} \frac{(k_B T)^2}{E_F^e(0) E_F^h(0)} + \frac{(\partial \gamma(n) / \partial n) (k_B T)^2}{3 n_0 E'(n_0) E_F(0)} \right] \quad (7)$$

С ростом температуры и при фиксированной плотности пар в ЭДЖ ширина спектра усиления должна сужаться вследствие длинноволнового сдвига коротковолновой границы спектра усиления вплоть до полного исчезновения усиления, которое наступает при $E_F^e(T) + E_F^h(T) \leq 0$.

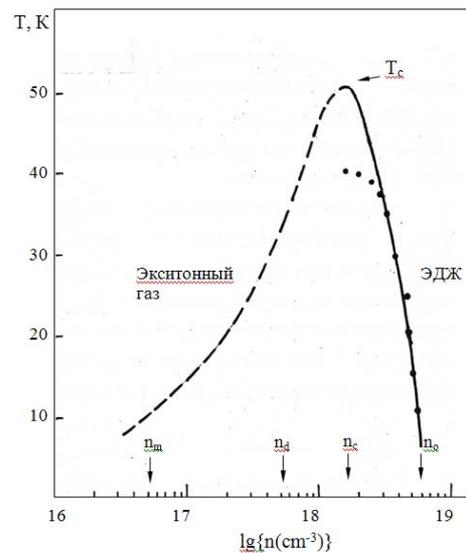


Рис. 4 Фазовая диаграмма экситонный газ - ЭДЖ в InSe в координатах $n - T$. Сплошная линия-расчет, точки – экспериментальные результаты.

На рис 4. показана фазовая диаграмма экситонный газ – ЭДЖ для InSe. Диаграмма построена по результатам исследований, в основном, спектров стимулированного излучения S линии при образовании ЭДЖ при конечной температуре - T . В низкотемпературной части фазовые границы этой диаграммы описывают две области: газовую- состоящую из слабоионизованного экситонного газа при средних плотностях $n \leq n_g$, и жидкую- состоящую из металлической ЭДЖ при $n \geq n_0$. Равновесное значение плотности n_0 конденсированной фазы определялось по спектрам стимулированного излучения при $T=5K$. В промежуточной области концентраций $n_g \leq n \leq n_0$ электронно-дырочная система расслаивается на жидкую и газовую фазы, плотности которых n_0 и n_g при заданной температуре не зависят от n .

Двухфазная область с ростом температуры сужается, вследствие возрастания плотности насыщенных паров газа и температурного расширения жидкости и полностью исчезает при критической температуре фазового перехода T_c .

Определение критической температуры T_c по спектрам исчезновения S линии, обусловленной усилением света в ЭДЖ, в зависимости от температуры при плотностях близких n_0 , реализующихся в электронно-дырочной системе, дает значение $T_c = 40K$. Однако; теоретическое определение критической температуры по методу, предложенному в работе [13], дает большое значение $T_c = 51K$. Определение из эмпирического закона подобия $E(n_0) \approx 9 \cdot (k_B T_c)$, критической температуры дает несколько другое значение $T_c = 46K$. Применение плазменной модели ЭДЖ позволило описать многие особенности системы высокой плотности жидкой фазы ЭДЖ в InSe. Вместе с тем, указанная модель описывает

переход от более плотной жидкостной фазы электронно-дырочной системы в менее плотную (от n_0 до n_c), что при $T \leq T_c / 2$, позволяет построить жидкостную ветвь фазовой диаграммы ЭДЖ и оценить критические параметры фазового перехода (n_c, T_c).

Область фазовой диаграммы, расположенная вблизи критической точки с определенными критическими параметрами - температурой T_c и плотностью n_c , является уникальной по своим свойствам. В этой области фазовой диаграммы газ и жидкость представляют собой полностью ионизованную систему. Это подтверждается тем, что по мере приближения к критической температуре в спектрах стимулированного излучения появляются линии различной природы - газовой (P_r линия) и жидкостной (S линия). При $T > T_c = 40K$ неравновесная электронно-дырочная система перестает расслаиваться на фазы по плотности при любых средних по объему концентрациях n , в спектрах стимулированного излучения остается только P_r линия.

Результаты, полученные на основе плазменной модели, разнятся с результатами моделей, рассматривающих поведение системы, как частный случай перехода металл - диэлектрик. Известен подход Мотта [14], согласно которому существует критическая плотность, ниже которой происходит переход от металлической фазы в диэлектрическую фазу (экситонный газ). Согласно этим критериям, указанный переход происходит при достижении таких плотностей, когда длина экранировки становится равной $0.84 \cdot a_{экс}$. Поэтому для InSe получаем $n_m = 7.6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ($r_s = 6.91$).

Применение плазменной модели ЭДЖ объяснило природу коллективных стимулированных процессов в системе высокой плотности в InSe, а также позволило построить фазовую диаграмму экситонный газ - ЭДЖ.

- | | |
|--|--|
| [1]. В.С. Днепровский, В.И. Климов, М.Г. Новиков ЖЭТФ, 1991. Т.99, С.843-859. | [8]. Г.Л.Беленький, М.О.Годжаев, Э.Ю.Салаев, Е.Т.Алиев ЖЭТФ, 1986,Т.91, №11, С.1886-1896. |
| [2]. К.Л.Литвиненко, В.Г.Лысенко ФТТ. 1994, Т.36, №11, С.3469-3472. | [9]. Г.Б.Абдуллаев, М.О. Годжаев, Н.Б.Кахраманов, Р.А.Сулейманов ФТТ, 1992, Т.34, № 1, С. 75-82 |
| [3]. А.А.Андронов, Ю.Н.Ноздрин, А.В.Окомельков, В.С.Варавин, Р.Н. Смирнов, Д.Г.Икусов ФТП. 2006, Т.40., С.1300-1308. | [10]. М.О.Годжаев, Н.Б.Кахраманов, Р.А.Сулейманов ФТТ, 1993, Т.35, № 2, С.446-453. |
| [4]. A.Cingolani, M.Ferrara, M.Lugara, F.Levy Physica. 1981, v.B105, p.40-44 | [11]. Электронно-дырочные капли в полупроводниках. Под ред. К.Д.Джеффриса и Л.В. Келдыша. М.: Наука, 1988, 478с. |
| [5]. A.Cingolani, R.Cingolani, M.Ferrara, M.Lugara Sol. St. Comm. 1985, v.55, N11, P.1007-1010. | [12]. P.Vashishta, R.K.Kalia Phys.Rev, v.B25, P.6492-6995. |
| [6]. V.Carpozzi, J.L.Staehli Phys. Rev, 1983,V.B28, N 8, P.4461-4467 | [13]. M.Combescot Phys. Rev. Lett. 1974, v 32, p.15-17. |
| [7]. Г.Л.Беленький, М.О.Годжаев ФТТ, 1984, Т26, №23, С.831-838 | [14]. Н.Мотт Переход металл-изолятор. М.: Наука, 1979. 344 с. |

Received:10.02.2007