

УДК 537.226.4; 538.956

КОЛЛЕКТИВНЫЕ ЭФФЕКТЫ В СИЛЬНО ВОЗБУЖДЕННЫХ  
СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛАХ InIР. Балтрамеюнас, А. Васькив, Е. Геразимас,  
Э. Куокитис, А. Франис

Впервые представлены результаты экспериментальных исследований люминесценции слоистых монокристаллов InI в условиях больших скоростей генерации неравновесных носителей заряда при  $T=4.2$  и  $77$  К. На основе анализа структуры спектров люминесценции, зависимости полуширины линий, относительной их интенсивности, положения максимумов от плотности мощности возбуждения делается вывод о конкуренции двух каналов излучательной рекомбинации. Наблюдаемые закономерности находят объяснение в рамках модели плотного экситонного газа и конденсации электронно-дырочных пар в электронно-дырочные капли. По форме коротковолнового крыла полосы экситон-экситонного взаимодействия определена температура ансамбля экситонов. Обнаружено отклонение этой температуры от равновесной. Замечено резкое падение экситонной температуры с появлением капельной полосы в спектре излучения. Обсуждаются особенности сосуществования электронно-дырочных капель и несконденсировавшихся неравновесных носителей заряда в кристаллах InI.

При больших скоростях генерации неравновесных носителей заряда (ННЗ) в полупроводниках возникают коллективные эффекты, большинство из которых достаточно подробно изучены в объемных (трехмерных) кристаллах [1]. Качественно другие явления могут иметь место в сильно анизотропных двумерных системах, интерес к которым в последнее время возрос в связи с появлением новых планарных структур, крайне перспективных для микро- и оптоэлектроники, а также с получением достаточно совершенных слоистых полупроводниковых соединений [2]. Интерес к этим объектам стимулируется теоретическими исследованиями [3, 4], предсказывающими уникальные особенности «двумерных» квазичастиц. Экспериментальное исследование таких слоистых кристаллов как GaSe, PbI<sub>2</sub>, InSe и др. [5, 6], хотя и свидетельствует об определенном своеобразии экситонов и энергетического спектра в целом, однако полной ясности о двумерном характере вследствие структурных особенностей этих полупроводников нет. В этом плане актуальными представляются поиск и исследование новых слоистых полупроводников.

В настоящей работе впервые приведены экспериментальные результаты по люминесценции недавно синтезированного представителя слоистых соединений (InI) в условиях больших скоростей однофотонной генерации ННЗ. Отметим, что к настоящему времени об оптических и люминесцентных свойствах InI, так же как и аналогичных соединений всей группы A<sup>3</sup>B<sup>7</sup>, известно крайне мало [7-9].

Кристаллы InI обладают орторомбической решеткой с пространственной группой симметрии  $D_{2d}^{17}$ . Направления базисных векторов  $a$  и  $c$  в плоскости слоя неэквивалентны, а оптическая ось  $b$  направлена перпендикулярно плоскости слоя. Изучался свежий скол монокристалла вдоль плоскости, содержащей векторы  $a$  и  $c$ . Использовалось однофотонное возбуждение люминесценции (для InI  $E_g \approx 2$  эВ [7-9]) излучением второй гармоники лазера на основе АИГ: Nd<sup>3+</sup> ( $h\nu = 2.33$  эВ,  $\tau_n = 10$  нс). Сигнал

люминесценции анализировался в поляризации электрического вектора световой волны  $E \parallel c$  и  $E \parallel a$  и регистрировался фотоэлектрическим способом на базе комплекса КСВУ-2 с использованием синхронного детектирования и численного накопления. Измерения проведены при температурах 4.2 и 77 К. Исследование поляризованной люминесценции кристаллов InI показало, что спектры в поляризации  $E \parallel c$ , для которой оптические переходы дипольно разрешены, а следовательно, и более интенсивны [7, 8], и спектры «слабой» поляризации ( $E \parallel a$ ) при уровнях возбуждения, использованных в эксперименте, имеют схожий характер, поэтому в дальнейшем закономерности люминесценции кристаллов InI будут анализироваться на основе данных для поляризации  $E \parallel c$ .

На рис. 1 показаны спектры люминесценции монокристаллов InI в зависимости от плотности мощности возбуждения при температурах 77

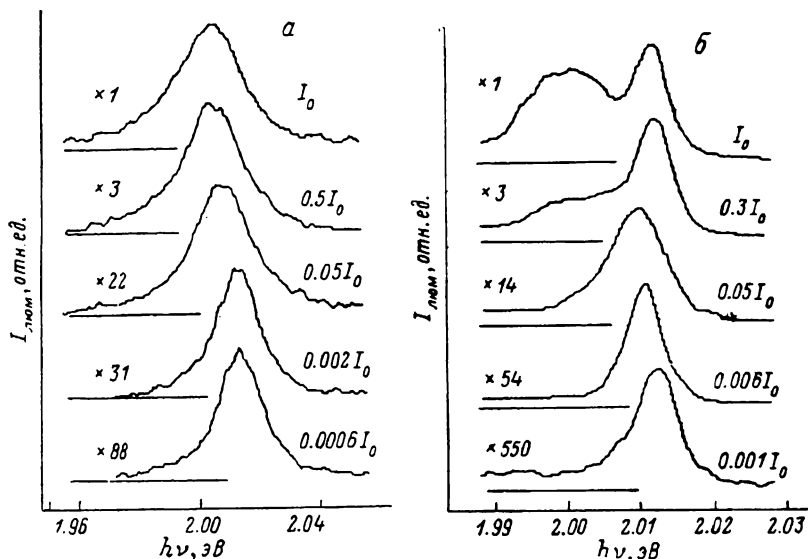


Рис. 1. Спектры люминесценции монокристаллов InI при 77 (а) и 4.2 К (б) в зависимости от плотности мощности возбуждения.  $I_0 = 2.5$  МВт/см<sup>2</sup>.

и 4.2 К. Как видно, во всем интервале возбуждений при 77 К спектр состоит из одной полосы, максимум которой расположен около 2.014 эВ при плотности мощности возбуждения  $I_b \leq 5$  кВт/см<sup>2</sup>. С повышением накачки максимум линии сдвигается в длинноволновую область, одновременно наблюдается уширение спектра. На рис. 2, а, б показаны зависимости полуширины  $\Delta E$  и положения максимума этой полосы  $h\nu_m$  от интенсивности возбуждения. Обращает на себя внимание немонотонность зависимости  $\Delta E$  в области определенного интервала интенсивностей возбуждения (см. стрелку на рис. 2, а), причем примерно при этом же возбуждении зависимость  $h\nu_m$  также имеет более крутой характер (рис. 2, б). Данные особенности излучения свидетельствуют о конкуренции по крайней мере двух каналов излучательной рекомбинации.

Люминесценция кристаллов InI при 4.2 К обладает несколько другими закономерностями. Так, до плотности мощности возбуждения  $I_b \leq 0.2$  МВт/см<sup>2</sup> в спектре наблюдается одна линия, энергетическое положение максимума которой  $h\nu_m^k = 2.013$  эВ (при  $I_b \leq 3$  кВт/см<sup>2</sup>). С повышением накачки она уширяется и сдвигается в длинноволновую сторону, однако в дальнейшем в отличие от  $T = 77$  К, начиная с плотности мощности возбуждения  $I_b = 0.2$  МВт/см<sup>2</sup> в длинноволновой области спектра формируется новая широкая полоса с максимумом  $h\nu^k = 2.00$  эВ. Характерно, что при этом коротковолновая линия претерпевает резкое уменьшение полуширины  $\Delta E^k$  и «фиолетовый» сдвиг максимума  $h\nu_m^k$ . Это отчетливо видно из зависимостей  $\Delta E^k$  и  $h\nu_m^k$ , представленных на рис. 2, в, г, где

стрелки обозначают интенсивность возбуждения, при которой в спектре появляется длинноволновая полоса. С дальнейшим повышением накачки вплоть до разрушения поверхности кристалла ( $\sim 6$  МВт/см<sup>2</sup>) коротковолновая линия остается почти стабильной (рис. 2, *в, з*), при этом возрастает лишь относительная интенсивность длинноволновой полосы. Таким образом, при гелиевой температуре конкуренция двух каналов излучательной рекомбинации становится очевидной.

Полученные экспериментальные закономерности могут найти объяснение в рамках модели сосуществования экситонного газа и сконденсированных электронно-дырочных капель (ЭДК). Действительно, при 4.2 К коротковолновая линия (рис. 1, *б*) может быть обусловлена излучательной

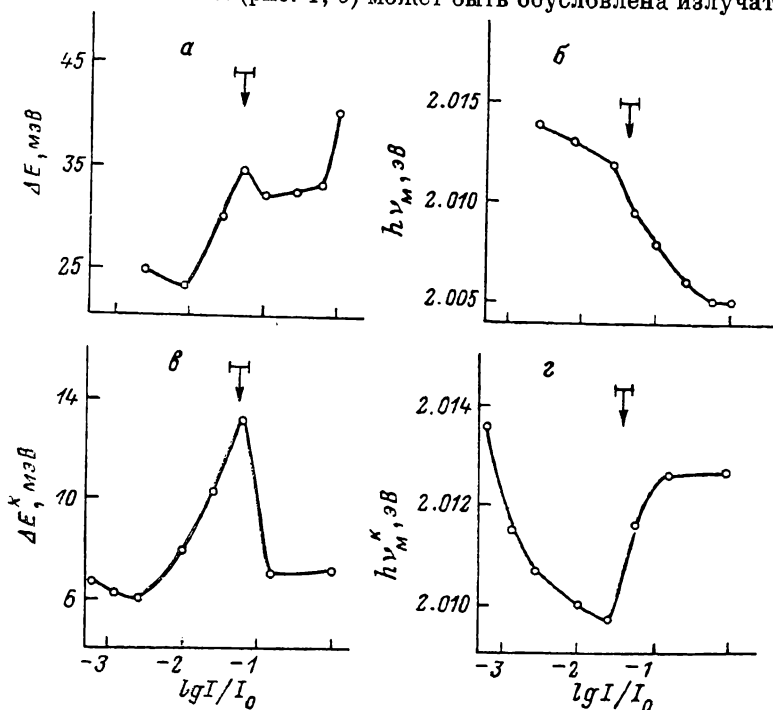


Рис. 2. Зависимость полуширины спектра  $\Delta E$  (*а*), максимума интенсивности излучения  $h\nu_M$  (*б*) при  $T=77$  К, полуширины коротковолновой линии  $\Delta E^k$  (*в*) и ее максимума  $h\nu_M^k$  (*з*) при 4.2 К от плотности мощности возбуждения.  $I_0=2.5$  МВт/см<sup>2</sup>.

рекомбинацией при экситон-экситонном взаимодействии, причем ее длинноволновый сдвиг и уширение, наблюдаемые с ростом интенсивности возбуждения (а тем самым с увеличением концентрации квазичастиц), по-видимому, обусловлены конкуренцией упругих и неупругих экситонных соударений [10, 11], а также саморазогревом ансамбля экситонов [12, 13]. Энергетическое положение максимума этой линии на 4—8 мэВ смещено в сторону длинных волн от основного экситонного резонанса (для InI  $E_{n=1}=2.017$  эВ, энергия связи экситона  $E_b=4.5$  мэВ [7]). Это не противоречит модели экситон-экситонного взаимодействия, весьма подробно исследованной в объемных кристаллах [1, 10, 11]. В чисто двумерном случае данные, так же как и другие проблемы многочастичных эффектов, изучены гораздо меньше, хотя имеются предпосылки об аналогичном характере экситон-экситонного взаимодействия и в этом предельном случае [5, 14].

ЭДК начинают формироваться при определенной пороговой концентрации ННЗ (рис. 2, *в, з*), что отмечалось в других полупроводниках [6, 15]. При этом в спектре краевой люминесценции кристаллов InI появляется новая длинноволновая полоса, которая, видимо, и обусловлена излучательной рекомбинацией в ЭДК. Коротковолновая же линия отвечает излу-

чательным процессам за пределами капель. Очевидно, что при наличии ЭДК в межкапельном пространстве плотность экситонов ввиду «стягивания» каплями значительного количества электронно-дырочных пар меньше по сравнению с режимом возбуждения на пороге формирования ЭДК. На это указывает резкое уменьшение полуширины и коротковолновый скачок линии экситон-экситонного взаимодействия (рис. 2, в, г).

Именно о таком характере изменения плотности экситонов, ответственных за коротковолновую линию, с повышением интенсивности возбуждения свидетельствует изменение температуры ансамбля экситонов  $T_s$ . Этот параметр целесообразно вводить для максвеллизированных экситонов (время термализации ННЗ в полупроводниках обычно значительно меньше времени жизни неравновесных квазичастиц [12]), причем  $T_s$  повышается с ростом концентрации взаимодействующих экситонов ввиду саморазогрева [13].  $T_s$  можно определить по наклону коротковолнового края линии межэкситонного взаимодействия. Согласно [10, 14], как в трехмерном, так и в двумерном случае в области частот  $h\nu > (E_{n=1} - E_s)$  интенсивность излучения при экситон-экситонном взаимодействии  $I \sim h\nu/kT_s$ . Определенная таким образом температура как функция интенсивности возбуждения показана на рис. 3. Как видно, с появлением полосы ЭДК  $T_s$  резко уменьшается, что, видимо, отвечает снижению плотности экситонов за пределами ЭДК.

Как отмечалось, при 77 К поведение полуширины спектра и положение

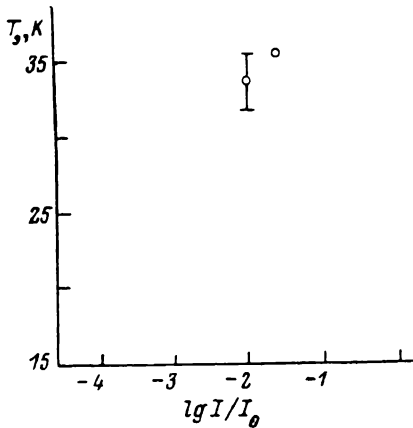


Рис. 3. Зависимость температуры системы экситонов  $T_s$  от интенсивности возбуждения при 4.2 К.  $I_0 = 5$  МВт/см<sup>2</sup>.

ния максимума интенсивности люминесценции с повышением накачки также указывает на конкуренцию по меньшей мере двух механизмов излучательной рекомбинации, однако интерпретация здесь более сложная из-за перекрытия полос. Возможно, ЭДК в кристаллах InI формируются и в этом случае (о высокотемпературной электронно-дырочной жидкости сообщалось в ряде других слоистых кристаллов [6]), однако эта фаза ННЗ проявляется не так четко, как при низкой температуре. Кроме того, при  $T=77$  К в кристаллах InI конденсация в ЭДК, по-видимому, может осуществляться лишь из газовой фазы, представляющей собой невырожденную электронно-дырочную плазму, поскольку экситоны в этих условиях маловероятны [4], а также имеет место значительная их термическая диссоциация. Фазовая диаграмма системы ННЗ «газ—жидкость» в координатах  $T-n$  при высокой температуре вблизи критической точки более «узкая», т. е. интервал концентраций, для которых возможно сосуществование газовой и жидкостной фаз, значительно меньше. Отсутствие «стабилизации» полуширины полосы излучения при 77 К и крайних накачках (рис. 2, а), по-видимому, и обусловлено переходом границы сосуществования двух фаз в область сплошной электронно-дырочной плазмы.

В заключение отметим, что полученные результаты указывают на перспективность исследования коллективных явлений в слоистых кристаллах InI ввиду хорошего спектрального разделения полос излучения разных механизмов, имеющих место в плотном газе ННЗ при низкой температуре, что может быть обусловлено сильной анизотропией электронного спектра кристалла в силу двумерного его характера, а также строением энергетических зон (например, многодолинностью), однако для более точного построения моделей в дальнейшем необходимо изучение основ-

ных параметров этих кристаллов, в частности, расчет и экспериментальная проверка зонной структуры в области края собственного поглощения, значений эффективных масс и т. п.

### Л и т е р а т у р а

- [1] *Klingshirn C., Haus H.* Phys. Rep., 1981, vol. 70, N 70, p. 315—398.
- [2] *Добровольский В. Н., Литовченко В. Г.* Перенос электронов и дырок у поверхности полупроводников. Киев: Наукова думка, 1985. 192 с.
- [3] *Shinoda M., Sugano S.* J. Phys. Soc. Japan, 1966, vol. 21, N 10, p. 1936—1946.
- [4] *Андрюшин Е. А., Келдыш Л. В., Силин А. П.* ЖЭТФ, 1977, т. 73, № 3, с. 1163—1173.
- [5] *Бродин М. С., Блонский И. В.* Экситонные процессы в слоистых кристаллах. Киев: Наукова думка, 1986. 255 с.
- [6] *Беленький Г. Л., Годжаев М. О., Салаев Э. Ю., Алиев Е. Т.* ЖЭТФ, 1986, т. 91, № 5, с. 1886—1896.
- [7] *Блонский И. В., Крочук А. С., Стецишин Т. Л., Франис А. В.* ФТТ, 1986, т. 28, № 10, с. 3136—3139.
- [8] *Ohno N., Yoshida M., Nakamura K., Nakai Y.* Sol. St. Commun., 1980, vol. 35, p. 775—779.
- [9] *Ohno N., Fujita M., Nakai Y., Nakamura K.* Sol. St. Commun., 1978, vol. 28, p. 137—139.
- [10] *Moriya T., Kushida T.* J. Phys. Soc. Japan, 1976, vol. 40, N 9, p. 1668—1675.
- [11] *Baltramiejunas R., Kuokštis E.* Phys. St. Sol. (b), 1982, vol. III, p. 187—193.
- [12] *Shah J.* Phys. Rev. B, 1977, vol. 9, N 2, p. 562—567.
- [13] *Baltramiejunas R., Kuokštis E., Žukauskas A.* Phys. St. Sol. (b), 1983, vol. 119, p. 453—457.
- [14] *Валкунас Л., Скайстис Э.* ФТТ, 1976, т. 18, № 9, с. 2594—2598.
- [15] *Райс Т., Хенсел Дж., Филлипс Т., Томас Г.* Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках. М.: Мир, 1980. 350 с.

Вильнюсский государственный университет  
им. В. Капсукаса  
Вильнюс

Поступило в Редакцию  
3 августа 1987 г.