

К. ф.-м. н. А. С. ГАРКАВЕНКО

Германия, г. Штутгарт, Международный научно-производственный центр энергосберегающих технологий
E-mail: garks@arcor.de

Дата поступления в редакцию
17.02.2010 г.

Оппонент д. т. н. В. А. МОКРИЦКИЙ
(ОНПУ, г. Одесса)

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ДОКАЗАТЕЛЬСТВО ЭКСИТОННО-ПЛАЗМЕННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА МОТТА

Представлены результаты экспериментального исследования предсказанного ранее теоретически экситонно-плазменного фазового перехода Мотта. Получено убедительное доказательство его реального существования.

Известно, что инжектирование неравновесных носителей заряда изменяет форму линий в экситонном спектре полупроводниковых кристаллов [1]. Соответствующее изменение оптических констант полупроводника в экситонной области спектра под действием оптической или электронной накачки может быть использовано для внешней модуляции проходящего (отраженного) через кристалл света [2, 3]. Английский физик Невилл Мотт теоретически показал, что при высоких уровнях возбуждения существует такая критическая концентрация неравновесных носителей заряда, при которой экситонное состояние вообще не может существовать, т. к. инжектированные в кристалл носители за счет статического и динамического плазменного экранирования изменяют кулоновский потенциал взаимодействия связанных в экситоны электронов и дырок [4, 5]. При этом энергия связи экситонов уменьшается, а радиус связанного состояния увеличивается. В конечном счете экситоны распадаются на свободные электроны и дырки. Это явление перехода от экситонного газа к плазме электронов и дырок получило в литературе название *экситонно-плазменного фазового перехода Мотта*. Согласно [4, 6] критерием Мотта служит неравенство

$$r/a_{ex} \leq 2,5,$$

где r — расстояние между частицами, $r = (3/4\pi N_{кр})^{1/3}$;

a_{ex} — радиус экситона;

$N_{кр}$ — критическая концентрация носителей. В кристаллах CdS значение $N_{кр} \approx 3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ [7].

В некоторых работах вводится диапазон значений этого критерия 2,5—3,7, что дает диапазон $N_{кр}$ от $3 \cdot 10^{17}$ до $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ [6, 7]. Однако прямого экспериментального доказательства этого эффекта не было. Эффект уширения экситонных линий в спектре люминесценции кристаллов CdS при оптической накачке исследовался в [1, 2]. Факт исчезновения экситонных уровней наблюдался экспериментально в кристаллах CdS для уровней с показателем преломле-

ния $n > 1$ [1] и с $n = 1$ [2], но он не может быть связан с переходом Мотта, поскольку при этом скачкообразного исчезновения экситонных уровней не наблюдалось. В данной работе приведены экспериментальные результаты, подтверждающие существование фазового перехода Мотта.

Достигнутый в настоящее время уровень технологии позволяет выращивать чистые оптически однородные монокристаллы CdS с экситонными механизмами излучательных переходов. При оптическом и электронном возбуждении при температуре 77 К в спектре таких кристаллов преобладают линии излучения свободных экситонов. Такие образцы интенсивно излучают, поскольку внутренний квантовый выход спонтанного излучения близок к 1, а время жизни, пропорциональное ему, мало ($\tau \approx 10^{-9} - 10^{-10} \text{ с}$). Это обеспечивает высокую прозрачность кристалла и скорость модуляции излучения. Для проведения исследований использовались радиационно-модифицированные кристаллы CdS [8]. С помощью методики, описанной в [3, 9], отбирались наиболее чистые и оптически однородные образцы, в которых мало рассеяние спонтанного и когерентного излучения на оптических неоднородностях (флуктуации показателя преломления $\Delta n_0 \approx 10^{-5} - 10^{-6}$, где n_0 — показатель преломления невозбужденного кристалла).

Для отбора кристаллов CdS с интенсивной люминесценцией А-экситона использовался стандартный метод синхронного детектирования. Исследовались монокристаллические пленки нелегированного CdS, выращенные из газовой фазы методом сублимации, с концентрацией нейтральных доноров и акцепторов $N \leq 10^{13} - 10^{14} \text{ см}^{-3}$, представляющие собой пластинчатые образцы с естественными зеркальными гранями размерами $1 \times 1 \text{ см}$ и толщиной 3—4 мкм. Толщина пленок CdS предварительно измерялась с помощью интерференционного микроскопа МИИ-16. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) исследуемых кристаллов при $T = 80 \text{ К}$ состояли из линий свободного А-экситона с максимумом интенсивности $\hbar\omega_{\max} = 2,544 \text{ эВ}$ (при $\lambda = 487,3 \text{ нм}$) и двух хорошо выраженных фоновых повторений — первого А-ЛО $\hbar\omega_{\max} = 2,481 \text{ эВ}$ (при $\lambda = 495,0 \text{ нм}$) и второго А-2ЛО $\hbar\omega_{\max} = 2,472 \text{ эВ}$ (при $\lambda = 501,5 \text{ нм}$), с характерной формой полосы излучения (рис. 1). Параметры образцов, а также измеренное на этих образцах CdS время жизни А-экситона приведено в **таблице**. Соответствующий метод измерения описан в [3, 9].

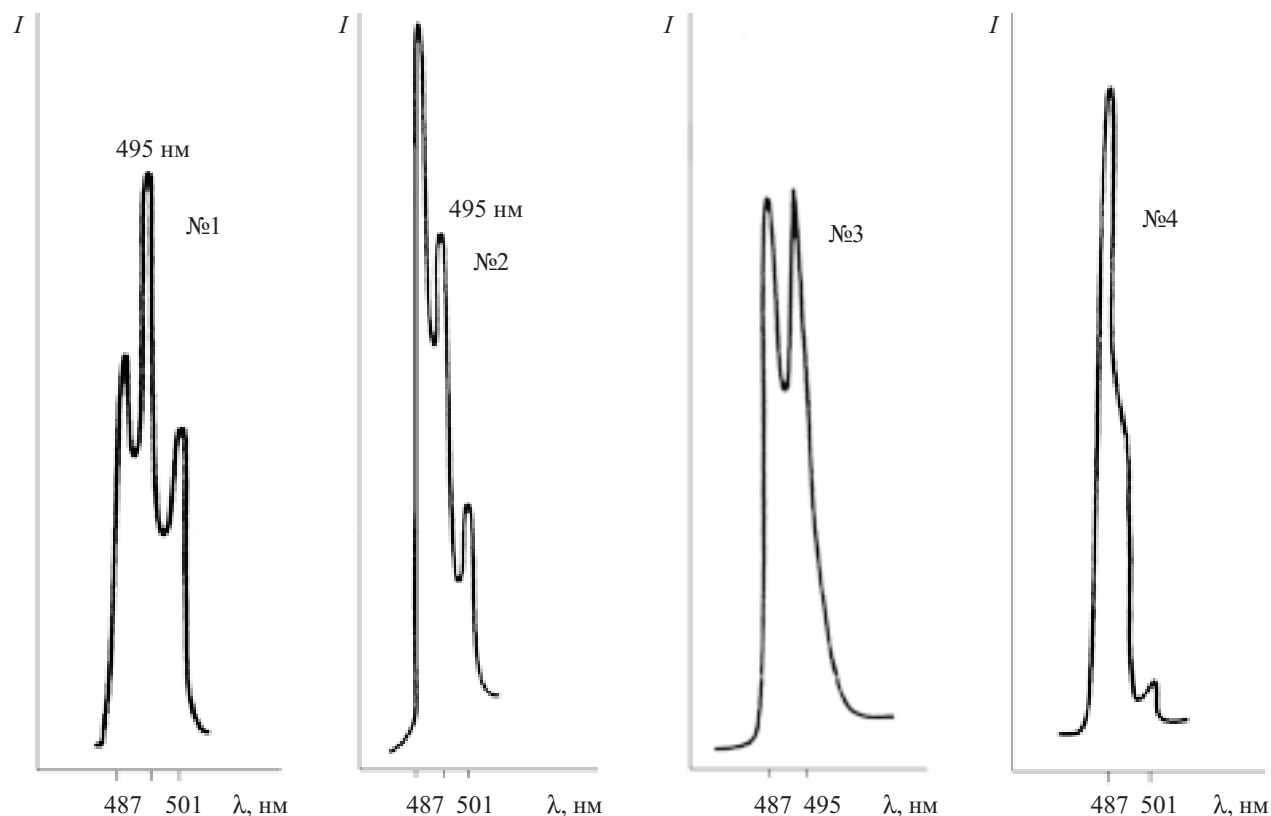


Рис. 1. Спектры экситонной ФЛ чистых оптически однородных образцов №1—4 монокристаллов CdS при 80 К (параметры образцов — в таблице)

Параметры и спектры ФЛ радиационно-модифицированных оптически однородных образцов CdS при T=80 K

№ образца CdS	Концентрация носителей N, см ⁻³	Время жизни А-экситона τ _{ex} , с	Флуктуации показателя преломления кристалла Δn	Спектры ФЛ	
				λ, нм	I/I _{осн}
1	1,5·10 ¹³	3·10 ⁻⁹	10 ⁻⁶	487 495 501	0,5 0,8 0,3
2	3,1·10 ¹⁴	5·10 ⁻⁹	10 ⁻⁵	487 495 501	1,0 0,7 0,3
3	3,3·10 ¹⁴	5,2·10 ⁻⁹	10 ⁻⁵	487 495	0,5 0,6
4	1,2·10 ¹³	2·10 ⁻⁹	10 ⁻⁶	487 501	1,0 0,1
5	2,5·10 ¹⁴	4,5·10 ⁻⁹	10 ⁻⁵	487 495 501	1,0 0,6 0,2

Для экспериментального доказательства экситонно-плазменного фазового перехода Мотта были исследованы зависимости времени жизни τ и спектров спонтанного излучения, возникающего при высоких уровнях возбуждения кристалла CdS электронным пучком, от концентрации неравновесных носителей ΔN [10]. Известно, что ΔN определяется формулой [11]

$$\Delta N = \frac{\tau j}{3eE_g} \left(-\frac{dE}{dx} \right),$$

где e — заряд электрона;
 E_g — ширина запрещенной зоны;
 j — плотность тока накачки;
 $(-dE/dx)$ — распределение ионизационных потерь энергии по глубине проникновения x электронов в кристалл.

Обычно значение ΔN рассчитывают, аппроксимируя распределение $(-dE/dx)$ функцией вида

$$A(E_0) \exp[-(x-a)^2/b^2],$$

где a и b — некоторые постоянные [11]. Автор использовал экспериментальный метод количественно-

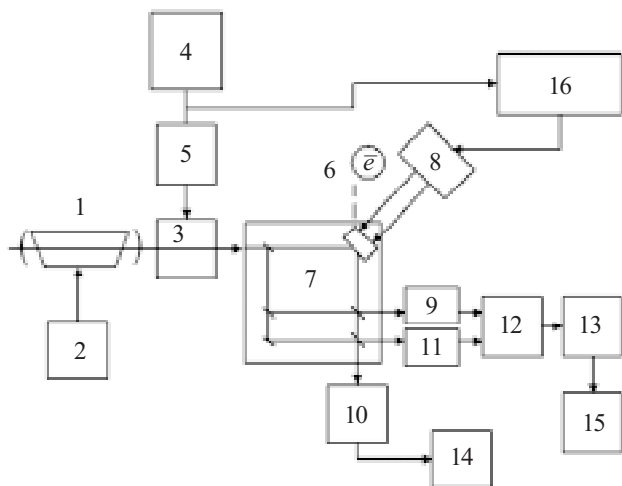


Рис. 2. Структурная схема установки:

1 — лазер на CO₂ (с λ=10,6 мкм); 2 — блок питания лазера; 3 — электронно-оптический модулятор; 4 — задающий генератор; 5 — генератор коротких импульсов; 6 — исследуемый образец; 7 — многолучевой интерферометр; 8 — электронно-оптическая система; 9, 10, 11 — фотоприемные устройства; 12 — масштабно-временной преобразователь; 13 — импульсный фазометр; 14, 15 — компьютеры; 16 — генератор высоковольтных импульсов

го определения Δ*N* и τ, в основе которого лежат методы импульсной лазерной фазометрии [3, 9, 12]. На **рис. 2** представлена структурная схема экспериментальной установки [10]. Исследуемый образец *b* находится на хладопроводе криостата при температуре 80 К. Электронно-оптическая система *8* генерирует быстрые электроны \bar{e} с энергией $E_0=100\text{—}200$ кэВ, от которой зависит глубина проникновения *x*, и плотностью тока $j=20\text{—}300$ А/см² для возбуждения полупроводникового кристалла. Длительность импульса накачки составляла порядка 10⁻¹⁰ с, а частота повторения импульсов Ω≈60 МГц. Остальная часть установки представляет собой оптический импульсный цифровой фазометр [12]. В результате взаимодействия зондирующего излучения CO₂-лазера *1* с частотой ω, ослабляемого набором калиброванных светофильтров, с неравновесными носителями заряда, созданными при возбуждении полупроводникового кристалла *b* электронным пучком (\bar{e}), происходит сдвиг фазы излучения Δφ, связанный с изменением показателя преломления кристалла Δ*n*:

$$\Delta\varphi = \frac{\omega x}{c} \Delta n.$$

В свою очередь,

$$\Delta n = \frac{2\pi e^2 \Delta N}{n_0 m^* \omega^2},$$

где n_0 — показатель преломления невозбужденного кристалла; m^* — эффективная масса электрона в кристалле.

В процессе эксперимента Δ*n* изменялось от 0,013 до 1,1, а Δ*N* соответственно от 1,2·10¹⁷ до 1·10¹⁹ см⁻³.

Измерение τ в этой же установке сводилось к определению времени задержки отраженного от поверхности образца ИК лазерного излучения по отно-

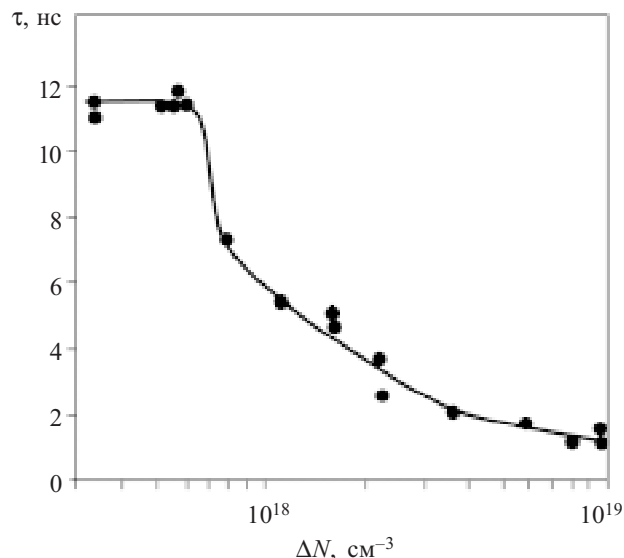


Рис. 3. Зависимость времени жизни экситона τ от концентрации неравновесных носителей Δ*N* в особо чистых оптически однородных монокристаллах CdS

шению к возбуждающему электронному импульсу, т. е., по сути, к измерению фазового сдвига Δφ, и определялось формулой [3, 9]

$$\tau = (1/\Omega) \operatorname{tg} \Delta\varphi.$$

Измеренные значения τ находились в диапазоне (11,5—1,2)·10⁻⁹ с.

Результаты измерений представлены на **рис. 3**, где показана зависимость времени жизни экситона τ от концентрации неравновесных носителей Δ*N* (уровня накачки в диапазоне 10¹⁷—10¹⁹ см⁻³) в кристаллах CdS. В области низкого уровня накачки значение τ остается практически постоянным (τ=11—12 нс) вплоть до значения Δ*N*=7·10¹⁷ см⁻³, что характеризует процесс излучательной аннигиляции свободных экситонов. При достижении значения концентрации неравновесных носителей Δ*N*=7·10¹⁷ см⁻³ происходит резкий скачок, что характерно для фазового перехода, и τ уменьшается практически в 1,5 раза, а затем, начиная со значения концентрации 8·10¹⁷ и до 1·10¹⁹ см⁻³ монотонно падает с ростом Δ*N*.

Параллельно проводились измерения спектров спонтанного излучения в зависимости от уровня возбуждения (Δ*N*). Видимое излучение возбужденного образца с помощью телескопической системы (не показанной на рис. 2) направлялось на вход спектрально-вычислительного комплекса КСВУ-4. На **рис. 4** представлены измеренные спектры. Здесь видно, что при уровне возбуждения Δ*N* до 7·10¹⁷ см⁻³ спектр представляет собой обычное излучение А-экситона голубого цвета с двумя фоновыми повторениями, а при Δ*N*=8·10¹⁷ см⁻³ и более спектр сдвигается в зеленую область и имеет вид спонтанного излучения, характерного для переходов «зона—зона», что полностью коррелирует с результатами измерений времени жизни (рис. 3). Из рис. 3 и 4 видно, что излучение кристаллов CdS при высоких уровнях возбуждения при Δ*N*>*N*_{кр} (начиная с Δ*N*=8·10¹⁷ см⁻³) воз-

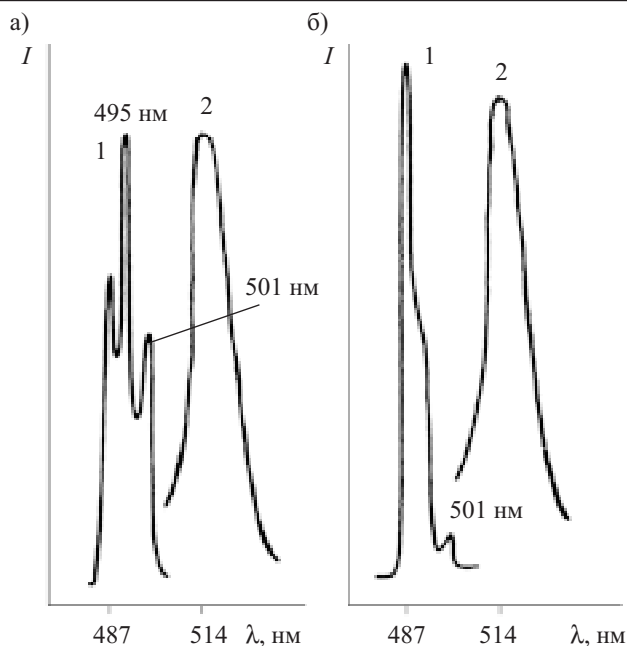


Рис. 4. Спектры экситонной катодоллюминесценции (*I*) и рекомбинационного излучения электронно-дырочной плазмы (2) чистых оптически однородных образцов №1 (*a*) и 4 (*б*) монокристаллов CdS при высоких уровнях возбуждения:

1 — экситонное излучение (при $\Delta N = 6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$; 2 — излучение за счет переходов «зона—зона» при $\Delta N = 8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$

никает в результате рекомбинации электронно-дырочной плазмы высокой плотности, образовавшейся после распада экситонов, и соответствует переходам «зона—зона». Таким образом, эти экспериментальные данные свидетельствуют о наличии экситонно-плазменного фазового перехода Мотта.

Следует отметить, что до нашего исследования ни в одной из известных автору экспериментальных работ фазовый переход Мотта как резкий скачок, характеризующий переход от экситонного газа к электронно-дырочной плазме, зафиксирован не был.

Таким образом, предложенная методика измерения сдвига фазы $\Delta\varphi(t)$ импульсного излучения, возбуждающего полупроводниковый кристалл, позволяет определять изменение показателя преломления Δn , а следовательно, и абсолютное значение нерав-

новесной концентрации носителей заряда ΔN и времени жизни экситона τ (при известном уровне возбуждения E_0, j). Впервые было получено прямое экспериментальное доказательство теоретически предсказанного фазового перехода Мотта.

Значение критической концентрации неравновесных носителей заряда составило $N_{\text{кр}} = 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, и это хорошо согласуется с теоретическими оценками [4].

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Лысенко В. Г., Ревенко В. И. Спектр экситона в газе неравновесных носителей высокой плотности в кристаллах CdS // Физика твердого тела.— 1978.— Т. 20, № 7.— С. 2144—2147.
2. Великович А. Л., Гаркавенко А. С., Голубев Г. П. и др. Модуляция излучения аргонового лазера за счет уширения экситонного уровня в кристалле CdS // Квантовая электроника.— 1985.— Т. 12, № 2.— С. 419—422.
3. Гаркавенко А. С., Зубарев В. В., Ленков С. В. и др. Новые лазерные методы, средства и технологии.— Одесса: Астропринт, 2002.
4. Mott N. F. Metal-insulator transitions // Contemp. Phys.— 1973.— N 14.— P. 401—413.
5. Гаркавенко А. С. Метод модуляции лазерного излучения / В кн.: Физические методы и средства контроля сред, материалов и изделий.— Киев—Львов, 1999.
6. Бродин С., Воловик Н. В., Резниченко В. Я., Страшников М. И. Особенности рекомбинационного излучения смешанных кристаллов $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ при высоких уровнях возбуждения // Физика твердого тела.— 1981.— Т. 23, вып. 5.— С. 1318—1323.
7. Стерлигов В. А., Колбасов Г. Я., Борцов В. Б. и др. Исследование оптических свойств активной поверхности CdS методом неравновесной спектроскопии отражения // Физика и техника полупроводников.— 1979.— Т. 13.— С. 1206—1208.
8. Ленков С. В., Мокрицкий В. А., Гаркавенко А. С. и др. Радиационное управление свойствами материалов и изделий опто- и микроэлектроники.— Одесса: Друк, 2003.
9. Видолоб В. В., Гаркавенко А. С., Ленков С. В., Мокрицкий В. А. Лазеры в метрологии полупроводников.— Одесса: Атлант, 2006.
10. Гаркавенко А. С., Календин В. В. Метод исследования неравновесных процессов в полупроводниковых лазерах с электронным возбуждением / В кн.: Физические методы и средства контроля материалов и изделий.— Киев—Львов.— 1997.— С. 57—60.
11. Богданкевич О. В., Дарзек С. А., Елисеев П. Г. Полупроводниковые лазеры.— М.: Наука, 1976.
12. Гаркавенко А. С., Календин В. В., Педоренко А. В. Оптические цифровые импульсные фазометры / Тр. ВНИИФТРИ «Фазовые и поляризационные измерения лазерного излучения и их метрологическое обеспечение».— М.— 1981.— С. 41—44.

НОВЫЕ КНИГИ

Тимошенко С. П., Калугин В. В., Анчутин С. А., Морозова Е. С. Микроэлектромеханические системы. — М.: МИЭТ, 2009.— 52 с.

Раскрыты общие вопросы микросистемной техники. Рассмотрены виды микроэлектромеханических систем, принцип их работы, особенности основных технологических процессов изготовления, материалы, а также области применения. Для студентов старших курсов технических вузов и специалистов, интересующихся проблемами микроэлектромеханических систем.

