УДК 621.315.592

Спектры отражения монослоя WSe_2 в зависимости от плотности свободных носителей заряда

© Д.С. Нураев, Г.М. Голышков, А.С. Бричкин, А.В. Черненко

Институт физики твердого тела им. Ю.А. Осипьяна Российской академии наук,
142432 Черноголовка, Россия

E-mail: nuraev.ds@phystech.edu

Поступила в Редакцию 31 марта 2026 г.
В окончательной редакции 1 июня 2026 г.
Принята к публикации 1 июня 2026 г.

Исследованы спектры отражения гетероструктуры на основе монослоя WSe_2, в которой один из электрических контактов подведен к монослою, а другой отделен от него слоем гексагонального нитрида бора. Такая конфигурация позволяла управлять плотностью носителей заряда в монослое вплоть до смены типа легирования с электронного на дырочный. Это дало возможность исследовать основные и возбужденные состояния нейтральных и заряженных экситонов, их эволюцию с изменением плотности заряда в монослое. Наблюдение тонкой структуры линии (дублета, характерного для отрицательно заряженных экситонов) позволило однозначно идентифицировать области отрицательной и положительной плотностей заряда монослоя.

Ключевые слова: монослои WSe_2, спектры отражения, экситоны.

DOI: 10.61011/FTP.2026.03.63581.9436

1. Введение

Монослои дихалькогенидов переходных металлов (ДПМ) привлекают повышенное внимание исследователей благодаря сильному взаимодействию их электронной системы со светом. Будучи прямозонными полупроводниками, они обладают шириной запрещенной зоны, соответствующей дипольным оптическим переходам в видимом спектральном диапазоне [1,2].

Ключевой особенностью двумерных ван-дер-ваальсовых материалов является усиленное по сравнению с объемными полупроводниками электронно-дырочное кулоновское взаимодействие, что делает их удобной платформой для изучения свойств двумерных экситонных комплексов. Это обусловлено двумя факторами: во-первых, ослабленным диэлектрическим экранированием в атомарно-тонких кристаллах, а во-вторых — пространственным ограничением носителей заряда в пределах плоскости. В отличие от объемных систем, где экранирование описывается трехмерной диэлектрической функцией, в 2D-материалах эффективное экранирование задается как собственными диэлектрическими свойствами, так и диэлектрическими свойствами окружающей среды. Эти материалы удобны для исследования свойств экситонов — связанных состояний электрона и дырки — с энергией связи, достигающей сотен мэВ. Это на один-два порядка выше, чем в таких полупроводниках, как GaAs, Si и гетероструктурах на их основе, что позволяет экситонам оставаться стабильными даже при комнатной температуре.

Кроме того, привлекательность двумерных материалов заключается в их высокой чувствительности к внешним воздействиям. Такие возмущения, как деформация и электрические поля, напрямую влияют на электронные и экситонные свойства на микроскопическом уровне, что обеспечивает точный контроль над ними, делая ДПМ, легко настраиваемыми потенциальной платформой для практических приложений.

Избыток электронов или дырок способствует образованию многочастичных комплексов, таких как трионы — заряженные экситоны, состоящие из двух носителей заряда одного знака и одного противоположного, а также экситоны, связанные на примесях и флуктуациях потенциала.

В ван-дер-ваальсовых материалах мономолекулярные слои слабо связаны между собой силами Ван-дер-Ваальса, что дает возможность объединять слои разных материалов в стабильные гетероструктуры [3]. Создание гетероструктур из двумерных ван-дер-ваальсовых материалов, таких как графен, дихалькогениды переходных металлов и гексагональный нитрид бора (hBN), стимулировало интенсивное изучение их электронных, оптических и механических свойств [1].

Инкапсулирование hBN монослоев ДПМ позволяет защитить чувствительный монослой от воздействия подложки и окружающей среды, сделать структуру устойчивой к многократному термоциклированию и значительно подавить неоднородное уширение экситонных резонансов, делая их более узкими и интенсивными. Кроме того, технология сборки позволяет создавать гетероструктуры путем последовательного наложения различных 2D-материалов, не требуя согласования кристаллических решеток и углов между слоями.

Особый интерес для фундаментальной физики представляют возбужденные состояния экситонов и их взаимодействие со свободными носителями заряда. Наблюдение экситонов и экситонных комплексов возможно

в спектрах отражения, однако из-за малой силы осциллятора высоковозбужденные состояния часто плохо различимы в исходных спектрах. Для их идентификации требуется высокое качество образцов, чувствительные методики измерения, а также тщательный анализ спектров отражения.

Исследование возбужденных состояний экситонов и их взаимодействие со свободными носителями заряда в монослоях WSe_2 ранее было выполнено в работе [4], где рассматривались процессы автоионизации возбужденных трехчастичных состояний (трионов). Было показано, что возбужденные состояния трионов подвергаются иной, отличной от экситонов многочастичной перенормировке их энергий с ростом уровня легирования.

В данной работе представлены результаты исследования экситонных резонансов в гетероструктуре hBN-ML WSe_2-hBN с одним электрическим контактом, подведенным непосредственно к монослою WSe_2, и другим контактом, отделенным от монослоя слоем hBN, что позволяло менять плотность носителей заряда в монослое приложением разности потенциалов между электродами. Авторами были изготовлены структуры высокого качества, позволяющие провести исследование спектров отражения с высокой точностью. Обнаружены возбужденные состояния нейтральных и заряженных экситонов, исследована их динамика в зависимости от приложенного напряжения (плотности носителей заряда в монослое).

2. Методика эксперимента

Гетероструктура hBN-ML WSe_2-hBN с графеновыми контактами, была изготовлена методом механической эксфолиации. Для инжекции носителей в монослой WSe_2 один из графеновых контактов подводился напрямую к монослою. Второй графеновый контакт накладывался поверх верхнего слоя hBN. Верхний и нижний слои hBN имеют толщину ~ 10 и 100 нм соответственно. На графеновые контакты толщиной 1–3 нм напылялся слой Cr(50 нм)/Au(200 нм). Такая конфигурация позволяет эффективно управлять плотностью носителей заряда при приложении внешнего напряжения.

Для изучения влияния свободных носителей заряда в монослое на основное и возбужденные состояния экситонных комплексов был использован метод микроотражения [1,4]. Источником широкополосного излучения для получения спектров отражения служила галогеновая лампа. Свет лампы пропускался через скрещенную щель и фокусировался на поверхности структуры в пятно диаметром ~ 2 мкм с помощью объектива с увеличением 50×. Такая „острая“ фокусировка является важным условием для наблюдения возбужденных состояний экситонов, позволяющая работать с малыми, оптически однородными областями образца. Отраженный от образца свет собирался тем же объективом, фокусировался на входную щель монохроматора и детектировался охлаждаемой ПЗС-камерой. Спектральное разрешение системы составляло 0.2 мэВ.

Для количественного анализа и подавления вклада интерференционных эффектов от многослойной структуры мы используем дифференциальный коэффициент отражения $R_C = (R_s - R_{\text{ref}})/(R_{\text{ref}} - BG)$, где R_s — амплитудный коэффициент отражения от области образца, содержащей монослой ДПМ, а R_{ref} — для позиции с теми же толщинами слоев hBN, но без монослоя; BG — фоновый сигнал, измеренный при выключенном источнике света. Характерные спектры микроотражения с позиции с монослоем и без него показаны на рис. 1, *a*, типичный разностный спектр и его производная 1-го порядка представлены на рис. 1, *b* и *c*, данная методика позволяет более четко выделить слабые возбужденные состояния.

Положение и ширина экситонных линий в спектре могут существенно меняться в зависимости от позиции на образце из-за локальных флуктуаций потенциала. Для дальнейшего детального исследования всегда выбиралась оптимальная позиция, характеризующаяся максимальной интенсивностью, минимальной шириной и устойчивостью положения экситонных линий. Прецизионные микрометрические двухкоординатные пьезоподвижки позволяли позиционировать пятно от галогеновой лампы на образце с точностью до микрона и позволяли удерживать выбранную позицию на образце при изменении напряжения на затворе. Для каждого спектра для выбранной позиции на образце записывался соответствующий фоновый сигнал с другой позиции на образце, с теми же толщинами слоев hBN, но в которой отсутствует монослой.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1, *a* представлены характерные спектры отражения, полученные с позиций на монослое WSe_2 (красная кривая) и без монослоя (серая кривая). На полученных зависимостях явно идентифицируются основное состояние A-экситона ($1s$) при энергии ~ 1.72 эВ, его первое возбужденное состояние ($2s$) при энергии ~ 1.85 эВ и второе возбужденное состояние ($3s$) при энергии ~ 1.87 эВ, что свидетельствует о высоком качестве исследуемого образца. На рис. 1, *a* представлена схематическая иллюстрация основного и возбужденного состояний A-экситона, где их радиусы изображены с соблюдением масштаба в соответствии с расчетами из работы [4].

На рис. 2 представлена зависимость первой производной дифференциального коэффициента отражения от напряжения на затворе. Представленный диапазон напряжений соответствует области низкой плотности с концентрацией свободных носителей вплоть до нескольких единиц на 10^{11} см$^{-2}$ [5,6]. При напряжении на затворе V_g, соответствующем диапазону зарядовой нейтральности (пунктирные линии), доминирует пик нейтрального экситона $1s$. При V_g ниже по энергии пика, соответствующего $1s$, появляются дополнительные резонансы.

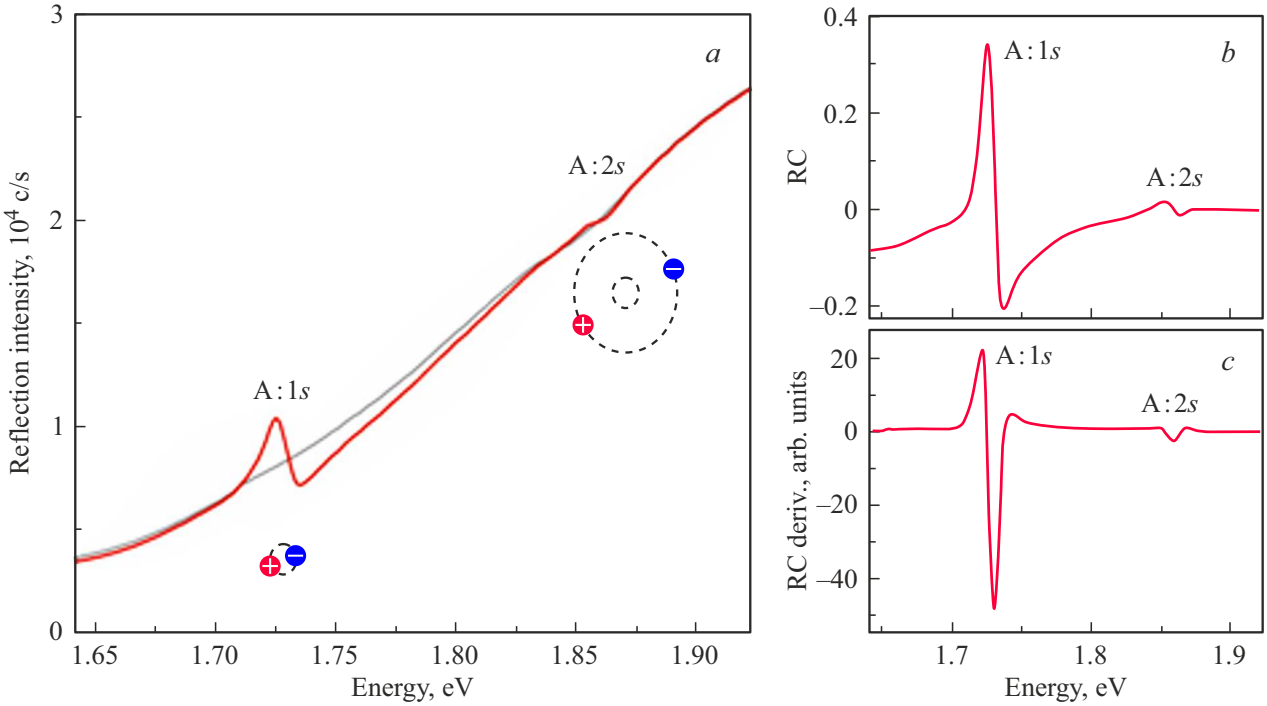


Рис. 1. *a* — спектры отражения, полученные с позиции на образце с монослоем WSe_2 и без него, обозначенные красной и серой кривой соответственно. Под кривыми показаны радиусы основного и первого возбужденного состояния экситона с сохранением пропорций, полученные в работе [4]. *b, c* — энергетические зависимости дифференциального коэффициента отражения и его производной 1-го порядка соответственно.

Они обозначены знаком заряда свободных носителей $(+/-)$ и обычно интерпретируются либо как трионы [7], либо как притягивающие ферми-поляроны [8]. Очень похожие особенности возникают в спектральной области резонанса $2s$ как на электронной, так и на дырочной сторонах легирования (рис. 3, *a*). Эти состояния обозначены как $2s^+$ и $2s^-$ и соответствуют заряженным экситонным комплексам, сформированным из возбужденного состояния экситона и свободного носителя. Величина энергии в полосе зарядовой нейтральности практически не смещается.

Для детального количественного анализа мы извлекли энергии экситонных резонансов по положению точек перегиба на спектрах второй производной дифференциального коэффициента отражения, получив значения первого $(2s)$ и второго $(3s)$ возбужденного состояний. Положения этих резонансов как функции напряжения на затворе представлены на рис. 3, *a*. На рис. 3, *b* показана энергетическая разность $\Delta_{1s} = E_{1s} - E_{1s\pm}$ для основных состояний и $\Delta_{2s} = E_{2s} - E_{2s\pm}$ для возбужденных. Обнаружены заметные различия между относительными энергетическими сдвигами для $2s^+$ и $2s^-$. Это согласуется с идентификацией состояний $2s^\pm$ как возбужденных состояний трионов, так как энергии связи триона для возбужденного состояния ожидаемо меньше. Для основного состояния они составляют $\sim 20-30$ мэВ, что типично для WSe_2. В случае возбужденного состояния $2s$ энергии связи трионов $(E_{tr,2s}) \sim 15-20$ мэВ.

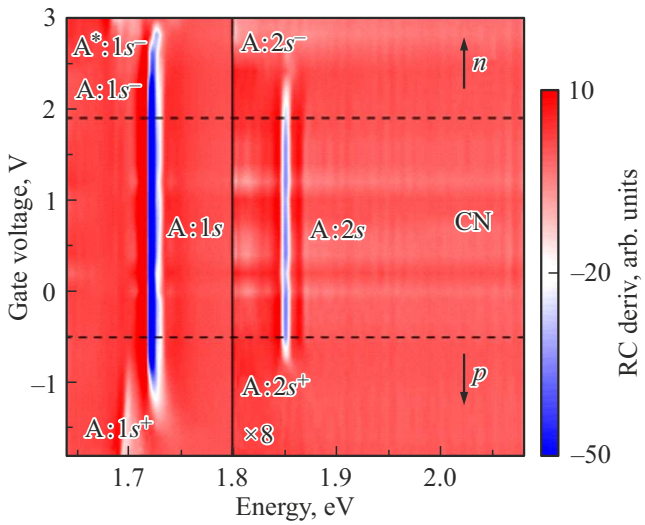


Рис. 2. Спектр первой производной дифференциального коэффициента отражения как функция от напряжения на затворе. Штриховыми линиями выделена область точек зарядовой нейтральности [5].

Для отрицательно заряженных трионов вблизи основного состояния наблюдается тонкая структура — дублет. Она возникает из-за того, что существует 2 типа отрицательно заряженных оптически активных трионов: с электронами с разными спинами из одной долины

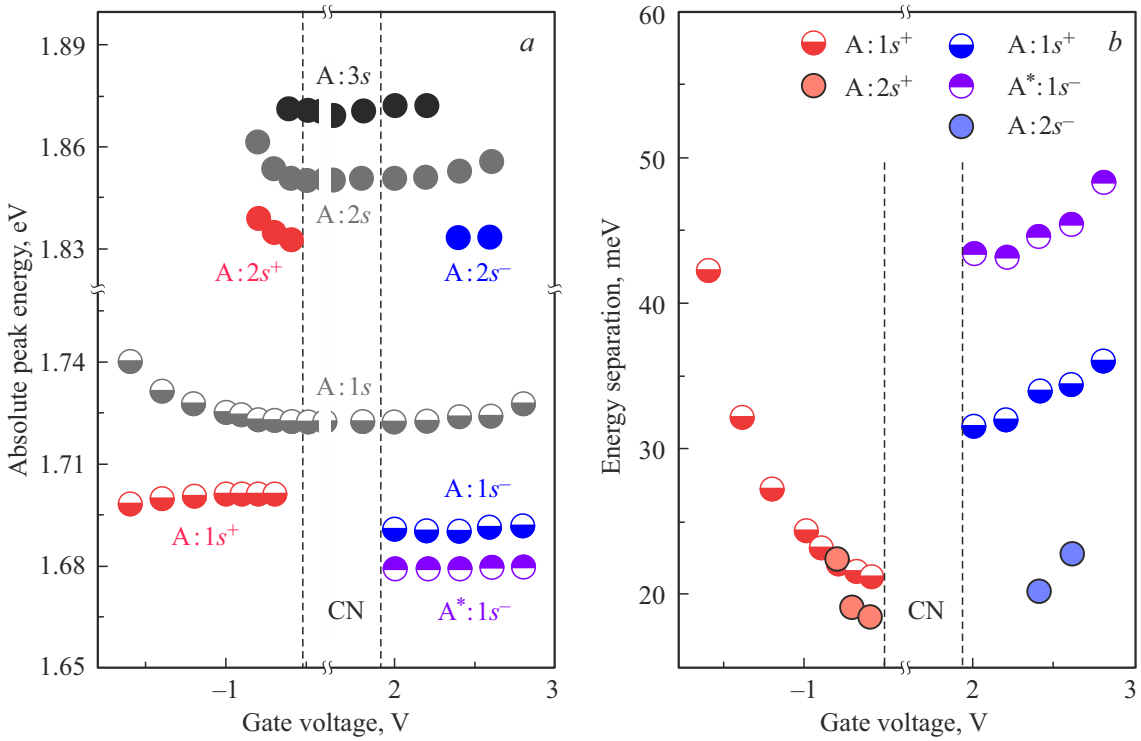


Рис. 3. *a* — абсолютные энергии пиков основного и первых двух возбужденных резонансов в зависимости от напряжения на затворе. *b* — энергия расщепления между пиками линий экситона и триона от напряжения на затворе. Штриховыми линиями выделена область точки зарядовой нейтральности.

и с электронами из разных долин. Разность энергий между линиями отражения этих двух типов трионов обусловлена разным значением обменного взаимодействия между разными парами электронов. В отличие от отрицательных трионов положительно заряженный трион формируется дырками из разных долин, поэтому дублета не наблюдается [9,10].

Полученные экспериментальные данные о поведении возбужденных состояний трионов могут быть проанализированы в рамках теоретической модели, предложенной в работе [5]. В этой работе для описания взаимодействия экситонов со свободными носителями заряда используется ферми-поляронный формализм, расширенный на случай возбужденных состояний. В рамках данной модели рекомбинация возбужденного состояния $2s^{\pm}$ происходит по механизму, аналогичному процессу автоионизации в атомной физике: $(2s + \text{electron})_{\text{bound}} \rightarrow 1s + \text{electron}'_{\text{free}}$. В этом процессе возбужденный экситон с дополнительным связанным электроном релаксирует в основное состояние, передавая избыток энергии электрону, который становится свободным. Другими словами, это ни что иное, как внутриэкситонный оже-процесс.

Наши экспериментальные данные по управлению плотностью носителей заряда в гетероструктуре позволяют проверить некоторые ключевые следствия этой модели. В частности то, что энергия связи триона в возбужденном состоянии должна быть меньше, чем в основном состоянии. Это полностью согласуется с результатами, представленными на рис. 3. Мы наблюдаем, что энергии расщепления между возбужденным состоянием триона и основным состоянием экситона в пределе низких плотностей составляют ~ 10 мэВ, что ниже значений в случае основного состояния триона и экситона (~ 12.5 мэВ).

Кроме того, мы наблюдаем, что возбужденные состояния экситонов $2s$ и $3s$ пропадают из спектров при заметно меньшей плотности свободных носителей, чем состояние $1s$. Такое поведение есть следствие большего по сравнению с основным размера 2D-экситона, что приводит к распаду возбужденных состояний экситона из-за экранировки свободными носителями заряда при их меньшей плотности.

На рис. 2 по мере увеличения напряжения на затворе интенсивность пика нейтрального экситона уступает по величине интенсивностям пиков заряженных экситонных комплексов $2s^+$ и $2s^-$. Это перераспределение интенсивности между нейтральным и заряженным состояниями, происходящее при относительно низких напряжениях, качественно согласуется с предсказанием теоретической модели об обмене силой осциллятора [5].

Резкое уменьшение интенсивности возбужденных состояний экситонов при изменении плотности электронов в монослое n_s (см. рис. 3) также наблюдалось в работе [6]. Извлекая размеры экситонов из величины диамагнитного сдвига в магнитном поле, перпендикулярном

плоскости структур, авторы работы оценили плотности, при которых возбужденные состояния экситона пропадают из спектра: $n_{1s} = 3.1 \cdot 10^{12}$ см$^{-2}$ ($a_{1s} = 1.1$ нм, $r_s = \frac{1}{a_B\sqrt{2\pi n_s}} \simeq 2.1$), $n_{2s} = 3.9 \cdot 10^{11}$ см$^{-2}$ ($a_{2s} = 3.2$ нм, $r_s \simeq 6.1$), $n_3 = 6.1 \cdot 10^{10}$ см$^{-2}$ ($a_{3s} = 8.1$ нм, $r_s \simeq 2$).

Так как гетероструктура аналогична измеренной в данной работе и полученные спектры отражения качественно совпадают, можно заключить, что значения r_s, при которых линии основного и возбужденных состояний экситона становятся неразличимы в спектре, имеют в нашем случае такой же диапазон значений. Отметим, что полученные значения параметра $r_s \simeq 2-6$ заметно меньше значений $r_s \geq 8$, полученных из анализа спектров фотолюминесценции нелегированных квантовых ям GaAs/AlGaAs разной толщины [11]. Дальнейший анализ полученных результатов может оказаться полезным для совершенствования теории и согласования ее с экспериментом [12].

4. Заключение

В работе исследована гетероструктура с монослоем WSe_2, инкапсулированным гексагональным нитридом бора, с возможностью электростатического управления плотностью носителей заряда. Гетероструктура, в которой один контакт подведен непосредственно к монослою, а другой отделен слоем hBN, позволила эффективно изменять тип легирования монослоя от электронного до дырочного.

Методом спектроскопии микроотражения с использованием анализа первой и второй производной дифференциального коэффициента отражения в данной конфигурации отчетливо идентифицированы не только основное состояние A-экситона ($1s$), но и его первые два возбужденных состояния ($2s$ и $3s$), что свидетельствует о высоком качестве исследуемых образцов.

При приложении напряжения на затворе наблюдалось формирование заряженных экситонных комплексов как для основного ($1s^{\pm}$), так и для первого возбужденного ($2s^{\pm}$) состояний. Обнаружена тонкая структура (дублет) для отрицательно заряженных трионов вблизи основного состояния, связанная со спин-орбитальным расщеплением. Она позволяет однозначно идентифицировать диапазоны значений напряжения, при которых монослой заряжен положительно или отрицательно.

Полученные экспериментальные данные проанализированы в рамках теоретической модели, описывающей взаимодействие экситонов со свободными носителями с использованием ферми-поляронного формализма. Наблюдаемое уменьшение энергии связи для возбужденных трионов ($2s^{\pm}$) по сравнению с основным состоянием ($1s^{\pm}$), а также обмен силой осциллятора между ними согласуется с предсказаниями данной модели. Данные экспериментов в основном совпадают с результатами работы [4].

Изготовленные структуры и отлаженная методика измерений и обработки результатов являются фундаментом для дальнейших исследований гетероструктуры на основе монослоя WSe_2 в зависимости от температуры в широком диапазоне изменения плотности и знака носителей заряда.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики твердого тела им. Ю.А. Осипьяна Российской академии наук (ИФТТ РАН).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] G. Wang, A. Chernikov, M. Glazov, T.F. Heinz, X. Marie, Th. Amand, B. Urbaszek. Rev. Mod. Phys., **90**, 021001 (2018).
[2] Q. Qiu, Z. Huang. Adv. Mater., **33**, 200812 (2021).
[3] A.K. Geim, I.V. Grigorieva. Nature, **499**, 419 (2013).
[4] K. Wagner, E. Wietek, J.D. Ziegler, Marina A. Semina, T. Taniguchi, K. Watanabe, J. Zipfel, M.M. Glazov, A. Chernikov. Phys. Rev. Lett., **125**, 267401 (2020).
[5] Г.М. Голышков, А.С. Бричкин, В.Е. Бисти, А.В. Черненко. Письма ЖЭТФ, **120**, 279 (2024).
[6] E. Liu, J. van Baren, Zh. Lu, T. Taniguchi, K. Watanabe, D. Smirnov, Y.-Ch. Chang, Ch.H. Liu. Nature Commun., **12**, 6131 (2021).
[7] A. Kormányos, G. Burkard, M. Gmitra, J. Fabian, V. Zólyomi, N.D. Drummond, V. Fal'ko. 2D Materials, **2**, 022001 (2015).
[8] M. Sidler, P. Back, O. Cotlet, A. Srivastava, T. Fink, M. Kroner, E. Demler, A. Imamoglu. Nature Physics, **13**, 255 (2017).
[9] C. Robert, S. Park, F. Cadiz, L. Lombez, L. Ren, H. Tornatzky, A. Rowe, D. Paget, F. Sirotti, M. Yang, D.V. Tuan, T. Tanoguchi, B. Urbaszek, K. Watanabe, T. Amand et al. Nature Commun., **12**, 5455 (2021).
[10] E. Courtade, M. Semina, M. Manca, M.M. Glazov, C. Robert, F. Cadiz, G. Wang, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. Pierre, W. Escoffier, E.L. Ivchenko, P. Renucci, X. Marie, T. Amand, et al. Phys. Rev. B, **96**, 085302 (2017).
[11] С.И. Губарев, О.В. Волков, В.А. Ковальский, Д.В. Кулаковский, И.В. Кукушкин. Письма ЖЭТФ, **76**, 673 (2002).
[12] Д.В. Кулаковский, С.И. Губарев, Ю.Е. Лозовик. Письма ЖЭТФ, **74**, 123 (2002).

Редактор А.Н. Смирнов

Control of charge carrier density in WSe_2 monolayer structures

D.S. Nuraev, G.M. Golyshkov, A.S. Brichkin, A.V. Chernenko

Ossipyan Institute of Solid State Physics
of the Russian Academy of Sciences,
142432 Chernogolovka, Russia

Abstract The reflection spectra of a heterostructure based on a WSe_2 monolayer were investigated. In this structure, one electrical contact was made directly to the monolayer, while the other was separated from it by a layer of hexagonal boron nitride. This configuration allowed for the control of the charge carrier density in the monolayer, up to switching the doping type from electron to hole. This enabled the study of the ground and excited states of neutral and charged excitons and their evolution with changing charge density in the monolayer. In the case of negatively charged excitons, a fine structure splitting of the line was observed, which made it possible to unambiguously identify the regimes of negative and positive charge density in the monolayer.