

УДК 535.343.2

© 1990

ДИСПЕРСИЯ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ И ЗАТУХАНИЕ СВЕТОЭКСИТОНОВ В ОБЛАСТИ 1В-РЕЗОНАНСА В КРИСТАЛЛЕ CdS

М. И. Страшникова, В. В. Черный

Проведен детальный анализ перестройки светоекситонных ветвей в области 1В-резонанса кристалла CdS при различных значениях параметра затухания. Сравнение рассчитанных кривых с экспериментально измеренной прямой методом призмы дисперсией показателя преломления позволило впервые определить особенности спектра затухания экситонов.

Сложная энергетическая структура 1В-экситона в кристалле CdS обусловлена линейными по волновому вектору \mathbf{K} членами, появление которых возможно в подзонах носителей симметрии Γ_7 [1]. На рис. 1, а, в представлена дисперсия экситонов (штриховые линии) и светоекситонов

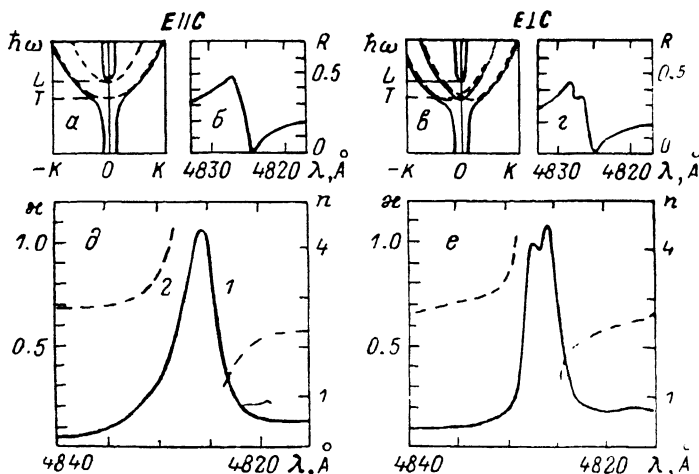


Рис. 1. Дисперсия светоекситонов и экситонов (а, в), спектры отражения (б, г), спектры поглощения (д) и дисперсия показателей преломления (е, з) в области 1В-резонанса при $T=4.2$ К.

(сплошные) в области 1В-резонанса при $\mathbf{K} \perp \mathbf{C}$ (\mathbf{C} — оптическая ось кристалла) и поляризациях света $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$ (а) и $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ (в) по работе [2]. Дно экситонной зоны при $\mathbf{K} \perp \mathbf{C}$, $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ описывает в \mathbf{K} -пространстве так называемую петлю экстремумов, а число добавочных световых волн в соответствии с теорией Пекара [3] равно числу экситонов, попадающих в резонанс, т. е. двум. Это экситоны симметрии Γ_2 и Γ_5 . Всего в области 1В-экситона при $\mathbf{K} \perp \mathbf{C}$, $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ имеются три светоекситонные ветви. При $\mathbf{K} \perp \mathbf{C}$, $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$ экситонная зона имеет обычный вид, поскольку линейные члены слабо смешивают состояния Γ_1 и Γ_{5L} , не совпадающие по энергии при $\mathbf{K}=0$ из-за продольно-поперечного расщепления Δ_{LP} .

Такая сложная структура обуславливает целый ряд особенностей в оптических спектрах. Впервые они были обнаружены в спектрах отражения [4]. При $E \perp C$ кривая $R(\omega)$ имеет дополнительный максимум (рис. 1, *а*), который отсутствует при $E \parallel C$ (рис. 1, *б*). На основании сравнения измеренных и рассчитанных кривых $R(\omega)$ в [4] были определены параметры $1B$ -экситонной зоны, в том числе и коэффициент ε при линейных по K членах. В дальнейшем спектры отражения при различных углах падения были подробно исследованы и проанализированы в [5].

Особенности, связанные с линейными по K членами, были обнаружены также в спектре поглощения тонкого «свободного» кристалла CdS толщиной 0.18 мкм [6]. Четкая дублетная структура полосы поглощения с более сильной коротковолновой компонентой наблюдалась в поляризации $E \perp C$ (рис. 1, *в*), тогда как при $E \parallel C$ полоса поглощения была одиночной и бесструктурной (рис. 1, *д*). Это полностью коррелирует со спектрами отражения.

В работах [7-9] обнаружены оптическая активность и эффект инверсии оптической оси кристалла CdS в области $1B$ -экситона, обусловленные линейными по K членами. Исследования по мандельштам-бриллюэновскому рассеянию [2] позволили прямо восстановить ход светоэкситонных ветвей. Начиная с резонансной частоты поперечного экситона ω_T , в поляризации $E \perp C$ имеется дополнительная светоэкситонная ветвь, что приводит к появлению в рассеянии дополнительных компонент-спутников.

Что же касается дисперсии показателя преломления, то долгое время ее удавалось измерить лишь на крыльях полосы поглощения [10-12]. На рис. 1, *д*, *е* представлены наши данные, полученные методом интерферометра Жамена, скрещенного со спектрографом, на монокристалле CdS толщиной 0.34 мкм . Сравнение кривых $\kappa(\omega)$ и $n(\omega)$ показывает, что в области $1B$ -экситона, так же как в области $1A$ -экситона [13], не выполняются классические соотношения Крамерса—Кронига: размах кривой дисперсии на полуширине полосы поглощения примерно в три раза больше, чем максимальное значение κ (для классического осциллятора они должны быть равны)

$$\kappa = \lambda \ln(I_0/I)/4\pi d \cong \ln \bar{n}, \quad \bar{n} = n + i\kappa.$$

Впервые дисперсию показателя преломления в пределах всей полосы поглощения удалось измерить прямым методом призмы в [14]. Кратко сообщенные там экспериментальные данные подробно проанализированы в настоящей работе на основании сравнения их с рассчитанными кривыми $n(\omega)$ при учете сложной структуры $1B$ -экситона и различных значениях константы затухания.

1. Дисперсия светоэкситонов. Эксперимент и расчет

Измерения показателя преломления были выполнены на клинообразном монокристалле CdS средней толщиной 0.5 мкм с преломляющим углом $\approx 50''$ при температуре 1.8 К . В качестве источника излучения использовался перестраиваемый лазер. Эксперимент подробно описан в [5, 15], а полученные результаты при $E \perp C$ изображены на рис. 2, *б*, *в* точками. Как видно из рис. 2, на длине волны 4828.0 \AA наблюдаются разрыв непрерывного хода кривой $n(\omega)$ и резкий скачок вверх от значения $n=5.5$ до 12.2 . При дальнейшем увеличении энергии $n(\omega)$ непрерывно возрастает, пока на $\lambda=4826 \text{ \AA}$ не появится еще одна дисперсионная ветвь. В очень узком спектральном интервале $\Delta\lambda=0.5 \text{ \AA}$ обе ветви сосуществуют одновременно, а затем остается лишь нижняя кривая $n(\omega)$. Максимально измеренное значение $n=17$.

Если одновременное сосуществование двух волн выше продольной частоты ω_L уже наблюдалось ранее в области $1A$ -экситона, то такого вида

разрыв кривой $n(\omega)$ вблизи ω_T зафиксирован в оптике впервые. Необходимо подчеркнуть, что такой разрыв можно обнаружить, лишь применяя метод призм. Интерференционные методы измерения для этой

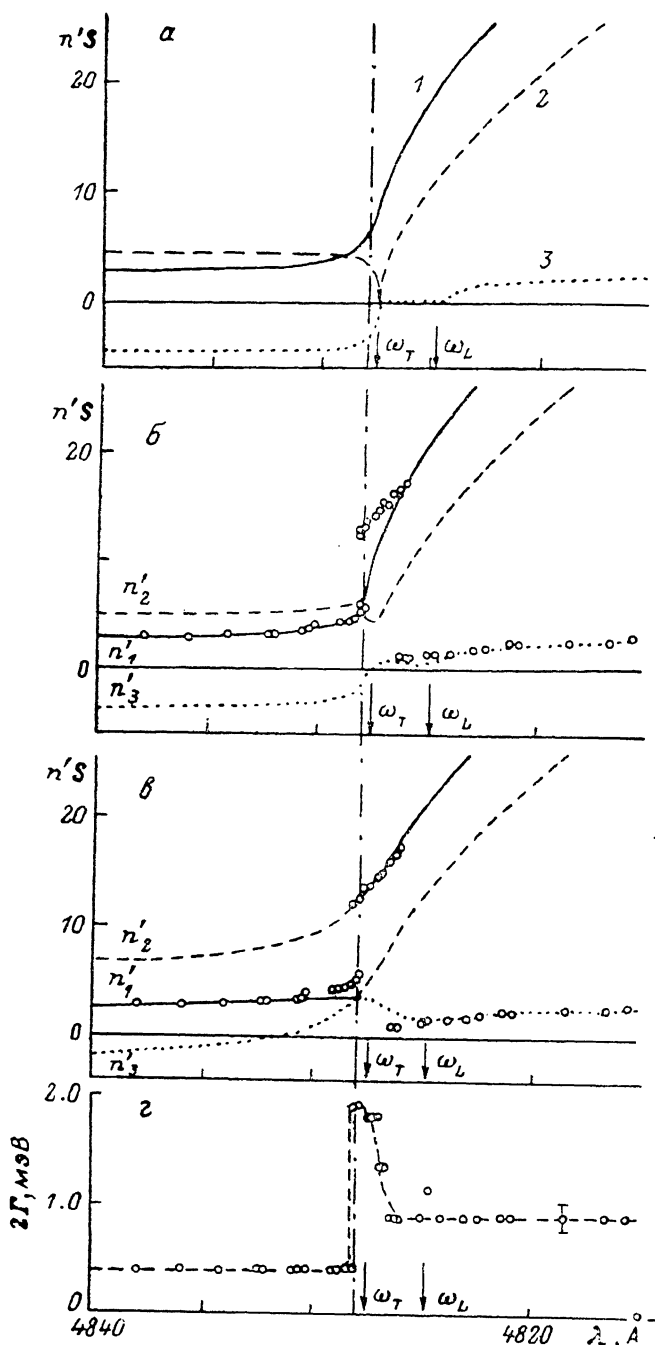


Рис. 2. Дисперсия показателей преломления при $K \perp C$, $E \perp C$ для $2\Gamma=0$, $S=K/|K|$ — единичный вектор в направлении распространения волны (а). Сравнение экспериментальной (точки) и рассчитанных кривых дисперсии для значений параметра затухания $2\Gamma=0.4$ (б) и 1.8 мэВ (в). Полученная зависимость $2\Gamma(\omega)$ (г).

Штрихпунктирная линия — положение дна экситонной зоны.

цели принципиально не годятся, поскольку скачок $n(\omega)$ должен привести к сдвигу всей серии интерференционных полос, а положение нулевой полосы остается неизвестным.

При расчете светозаксионных ветвей в области исследуемого резонанса использовалось такое же, как и в [4], уравнение, учитывающее пространственную дисперсию диэлектрической проницаемости при наличии линейных по \mathbf{K} членов, приведенное к виду

$$n^2 \cdot \epsilon_0^* = \frac{b}{2} \left(\frac{1}{n^2 - \mu + an} + \frac{1}{n^2 - \mu - an} \right), \quad (1)$$

где

$$\begin{aligned} \epsilon_0^* &= \epsilon_0 + \delta\epsilon = \epsilon_0 \left(1 + \frac{4\pi\alpha_{1A}\omega_{1A}^2}{\omega_{1A}^2 - \omega^2} + \frac{4\pi\alpha_{2A}\omega_{2A}^2}{\omega_{2A}^2 - \omega^2} \right), \\ b &= 4\pi\alpha_{1B} (M_{\perp} c^2 \hbar \omega_{1B} / \hbar^2 \omega^2), \\ \mu &= - \frac{M_{\parallel} c^2 \hbar \omega_{1B}}{\hbar^2 \omega^2} \left[1 - \frac{\hbar\omega}{\hbar\omega_{1B}} - i2\Gamma \frac{\hbar\omega}{\hbar^2 \omega_{1B}^2} \right], \\ a &= (2M_{\perp} c^2 / \hbar^2 c \omega) \varphi, \quad \varphi = (m_h C_h - m_e C_e) / (m_e + m_h). \end{aligned}$$

$4\pi\alpha_j$ — поляризуемость для соответствующего перехода; ω_j — резонансные частоты; $M_{\perp} = (m_{e\perp} + m_{h\perp})$ — эффективная масса $1B$ -экситона для направления $\mathbf{K} \perp \mathbf{C}$; C_e, C_h — коэффициенты при линейных по \mathbf{K} членах в зоне проводимости и валентной зоне; ϵ_0 — фоновое значение диэлектрической проницаемости, за исключением вкладов от $1A$ - и $2A$ -экситонов, учтенных в явном виде; 2Γ — константа затухания (обозначена нами таким образом для удобства сравнения с соответствующей константой в теории Пекара [3]).

В соотношении (1) не учитывается расщепление между экситонными уровнями Γ_3, Γ_2 и Γ_1 за счет обменного взаимодействия электронов и дырок. В работе [17] на основании анализа экспериментальных данных, в том числе и спектра поглощения работы [6], это расщепление было оценено довольно большим ($\Delta_{\parallel} = 0.15, \Delta_{\perp} = 0.55$ мэВ), поскольку в качестве положений термов Γ_2 и Γ_3 принимались положения максимумов дублетной полосы поглощения при $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$, а терма Γ_1 — максимум одиночной полосы при $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$ (рис. 1, δ, e). Однако в дальнейшем в работе [9] было показано, что эти расщепления значительно меньше ($\Delta_1 = \Delta_2 = 0.01, \Delta_3 = 2\Delta_1 = 0.06$ мэВ). Причина расхождения состоит в том, что при существенности пространственной дисперсии диэлектрической проницаемости даже для простой экситонной зоны положение максимума полосы поглощения не совпадает с положением терма в отсутствие светозаксионного смешивания, а сдвинуто в коротковолновую сторону. Из-за малости Δ_1 и Δ_2 они не учтены в соотношении (1).

Поскольку уравнение (1) является кубическим относительно n^2 , оно имеет три решения — три светозаксионные ветви. Уравнение решалось стандартным методом Кардано. На рис. 2, a представлены рассчитанные зависимости от частоты реальных частей n' показателей преломления $\hat{n} = n' + in''$ трех поперечных волн, распространяющихся в области $1B$ -резонанса без учета затухания, т. е. при $2\Gamma = 0$. Ниже частоты ω_T реально в кристалле может распространяться лишь волна 1. Волны 2 и 3 являются комплексно-сопряженными и взаимно погашаются. Выше ω_T возможно распространение двух волн, а выше продольной частоты ω_L — трех. По мере роста параметра 2Γ он проходит через два критических значения (названных так по аналогии с $1A$ -экситоном [18]). Когда достигается значение, равное $2\Gamma_{12}^{кр}$, ветви 1 и 2, начиная с частоты вблизи ω_T , становятся генетическим продолжением друг друга. В дальнейшем, после достижения $2\Gamma_{23}^{кр}$, начиная с этой же частоты, генетическим продолжением ветви 1 является уже ветвь 3, ветви 2 — ветвь 1, а ветви 3 — ветвь 2.

Сравнение теоретически рассчитанных кривых дисперсии с экспериментальной представлено на рис. 2, $b, в$. На рис. 2, b показаны рассчитанные кривые n' для значения параметра $2\Gamma = 0.4$ мэВ, которое несколько больше, чем $2\Gamma_{12}^{кр}$, но меньше $2\Gamma_{23}^{кр}$. Ветви, являющиеся генетическим продолжением решений, полученных при $2\Gamma = 0$, обозначены соответ-

ственно сплошными (n'_1), штриховыми (n'_2) и пунктирными (n'_3) линиями. Видно, что дисперсионная ветвь n'_1 полностью описывает эксперимент (точки) вплоть до частоты разрыва в ходе кривой $n(\omega)$. Выше точки разрыва экспериментальные значения не укладываются на рассчитанную зависимость.

На рис. 2, в приведен аналогичный расчет при значении $2\Gamma = 1.8$ мэВ, которое больше, чем $2\Gamma_{кр}$. Поэтому каждая ветвь является генетически составной. Как видно, теперь экспериментальные значения выше точки разрыва хорошо описываются теоретической зависимостью, а ниже — не согласуются с расчетом. Следует подчеркнуть, что рассчитанные при разных 2Γ ветви $n'_i(\omega)$ асимптотически сближаются по мере удаления от ω_r , причем довольно быстро, поэтому высокоэнергетическая часть ветви оказывается малочувствительной к затуханию. В то же время ход кривой $n'_i(\omega)$ в окрестности ω_r очень зависит от величины 2Γ .

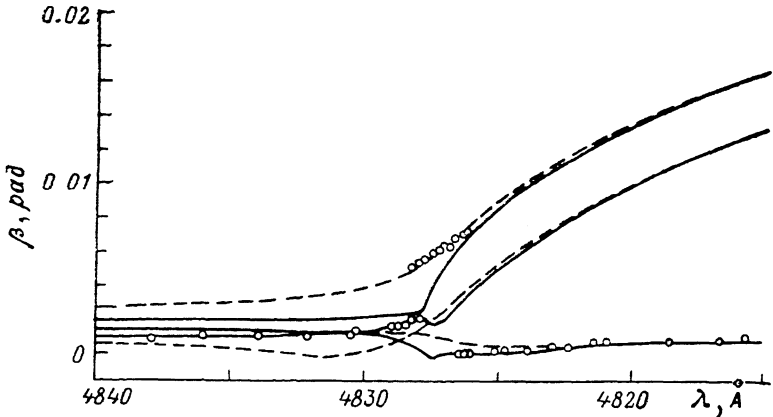


Рис. 3. Сравнение экспериментальных (точки) и рассчитанных углов отклонения светового пучка клинообразным кристаллом CdS в области 1B-экситона.

Что же касается экспериментальных точек третьей светозкситонной ветви, которая измерена начиная примерно с середины области Δ_{LT} и выше, то наилучшее согласие с расчетом получено при $2\Gamma = 0.9$ мэВ. С этим же значением согласуется и ход ветви n'_1 в этой спектральной области. Следует подчеркнуть, что третью ветвь можно зафиксировать в проходящем через кристалл свете в энергетическом интервале ниже продольной частоты только в том случае, когда значения n'_3 становятся равными или больше единицы. Это происходит как раз начиная с $2\Gamma = 0.9$ мэВ: при меньших Γ в области ниже ω_L $n'_3 < 1$.

Таким образом, чтобы согласовать экспериментально измеренную дисперсию показателя преломления с теоретическим расчетом, приходится предположить, что вблизи частоты разрыва резко возрастает и $2\Gamma(\omega)$ до 1.8 мэВ, а затем постепенно уменьшается до 0.9 мэВ. Полная зависимость $2\Gamma(\omega)$ в резонансной области 1B-экситона представлена на рис. 2, г. Каждая точка на графике соответствует такому значению 2Γ , при котором совпадают экспериментальные и рассчитанные значения показателей преломления.

Напомним, что в работе [19] на основании анализа спектра пропускания того же монокристалла CdS в области 1A-резонанса было получено значение $2\Gamma = 0.4$ мэВ начиная с ω_L и выше. Таким образом, оказывается, что между 1A- и 1B-экситонами 2Γ сохраняет постоянное значение и не зависит от частоты.

Необходимо отметить, что при расчетах показателя преломления по измеренному углу отклонения β светового пучка клинообразным кристаллом с малым преломляющим углом α использовалось приближенное соотношение

$$\text{Re } \bar{n} = [\sin^2 \theta + \cos^2 \theta (1 + \beta/\alpha)^2]^{1/2}, \quad (2)$$

которое получается из точного выражения [20]

$$\beta = \alpha \{ \operatorname{Re} [(\bar{n}^2 - \sin^2 \theta)^{1/2} / \cos \theta - 1] \}, \quad (3)$$

если пренебречь мнимой частью \bar{n} . При 2Γ , использовавшихся в расчетах, $\bar{n}_j = n'_j + in''_j$ для каждой из волн — существенно комплексная величина. В этом случае пренебрежение мнимой частью показателя преломления не очевидно. Поэтому было проведено прямое сравнение углов отклонения каждой из волн, измеренных на эксперименте и теоретически рассчитанных по (3), если подставить туда соответствующие значения $\bar{n}_j^2 = (n'_j + in''_j)^2$.

Основные параметры $1B$ -экситона

ω_0 , эВ	ΔLT , мэВ	2Γ , мэВ	φ , эВ · см	$M_{ex \perp}$	Ссылка
2.5676	1.4	0.4--1.8	$0.4 \cdot 10^{-9}$	1.1	Наст. раб. [2]
2.568	1.25	—	$0.56 \cdot 10^{-9}$	1.2	
2.5679	1.05	0.075	$0.5 \cdot 10^{-9}$	1.3	[4]
2.56815	1.4	0.26--0.6	$\varphi_1 = 0.6 \cdot 10^{-9}$ $\varphi_2 = 0.3 \cdot 10^{-9}$	1.3	[6]
2.56765	1.58	0.185	$\varphi_1 = 0.46 \cdot 10^{-9}$ $\varphi_2 = 0.58 \cdot 10^{-9}$	1.2	[8]

На рис. 3 изображены угловые отклонения трех поперечных волн для $2\Gamma=0.4$ (сплошные линии) и 1.8 мэВ (штриховые). Как видно, согласно теоретических зависимостей и эксперимента (точки) принципиально ничем не отличается от приведенных на рис. 2, б, в графиков $n'_j(\omega)$ при таких же параметрах затухания.

В таблице приведены определенные из расчетов параметры $1B$ -экситона, а также для сравнения данные других работ.

2. Обсуждение результатов

Прежде чем перейти к обсуждению зависимости $2\Gamma(\omega)$, следует отметить, что точка разрыва в экспериментальной кривой $n(\omega)$ совпадает с частотой дна экситонной зоны (дна петли экстремумов), а не с резонансной частотой ω_r . Именно на этой частоте и в расчетных зависимостях при возрастании 2Γ , начиная с $2\Gamma_{1cr}$, происходят разрыв непрерывности ветвей n'_1 и n'_2 и их генетическое продолжение друг в друга. Поэтому экспериментальные точки до и после разрыва принадлежат фактически одной дисперсионной ветви n'_1 . Лишь в окрестности ω_L актуальной становится третья светоэкситонная ветвь (n'_3). Характерно, что дополнительный длинноволновый максимум в спектре поглощения тонкого плоскопараллельного кристалла CdS (рис. 1, е) коррелирует со всплеском $2\Gamma(\omega)$ на рис. 2, з, а «просветление» кристалла выше основного коротковолнового максимума связано с появлением третьей светоэкситонной волны.

По-видимому, резкое возрастание 2Γ у дна петли экстремумов связано со смешиванием состояний экситонов, попадающих в резонанс. Наибольшее смешивание и соответственно наибольшее возмущение должны иметь место в точке пересечения экситонных ветвей — на резонансной частоте ω_r и вблизи нее. Кроме того, начиная с частоты ω_r и выше, вторая светоэкситонная ветвь становится актуальной и в процессах межзонных перебросов. Об этом прямо свидетельствует появление в рассеянии Манделштама—Бриллюэна дополнительных линий рассеяния на LA - и TA -фононах [2], что дополнительно увеличивает 2Γ . После прохождения через резонанс зависимость $2\Gamma(\omega)$ определяется только процессами внутри- и межзонного рассеяния и поэтому несколько уменьшается, выходя, по-видимому, на постоянное значение.

Однако неясным из сравнения эксперимента с расчетом остается вопрос, почему в области продольно-поперечного расщепления Δ_{LG} видна сильно затухающая дисперсионная ветвь, а не кривая с аномальным участком, имеющая значительно меньшее n'' . Чтобы ответить на этот вопрос, необходимо в теории решить задачу пропускания клинообразного кристалла со сложной структурой зон, которая была решена в [20] для простой зоны 1A-экситона. В дальнейшем представляется интересным измерить наряду с дисперсией $n(\omega)$ и интенсивности прошедших волн.

Таким образом, впервые установлена особенность релаксации 1B-экситонов, обусловленная их тонкой структурой и влиянием линейных по волновому вектору \mathbf{K} членов в зависимости $E(\mathbf{K})$. Она проявляется в резком возрастании константы затухания 2Γ начиная с частоты, соответствующей петле экстремумов экситонной зоны. По-видимому, это связано со смешиванием взаимодействующих состояний и сильным возмущением светоэкситонного спектра, а также процессами межзонного рассеяния.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Рашба Э. И., Шека В. И. // ФТТ. 1959. Т. 2. № 1. С. 162—176.
- [2] Koteles E. S., Winterling G. // Phys. Rev. Lett. 1980. V. 44. N 14. P. 943—951.
- [3] Пекар С. И. Кристаллооптика и добавочные световые волны. Киев, 1982. 295 с.
- [4] Mahan G. D., Hopfield J. J. // Phys. Rev. 1964. V. 135. N 2A. P. 428—433.
- [5] Broser I., Rosenzweig M. // Phys. St. Sol. (b). 1979. V. 95. N 1. P. 141—154.
- [6] Страшникова М. И., Рудчик А. Т. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 4. С. 984—988.
- [7] Ивченко Е. Л., Пермогоров С. А., Селькин А. В. // Письма в ЖЭТФ. 1978. Т. 27. № 1. С. 27—29.
- [8] Ивченко Е. Л., Пермогоров С. А., Селькин А. В. // Письма в ЖЭТФ. 1978. Т. 28. № 10. С. 649—652.
- [9] Ивченко Е. Л., Селькин А. В. // ЖЭТФ. 1979. Т. 76. № 5. С. 1837—1855.
- [10] Бродин М. С., Страшникова М. И. // ФТТ. 1962. Т. 4. № 9. С. 2454—2460.
- [11] Бродин М. С., Крицкий А. В., Мясников Э. Н., Страшникова М. И., Шляхова Л. А. // УФЖ. 1973. Т. 18. № 5. С. 828—834.
- [12] Broser I., Broser R., Beckmann E., Birkicht E. // Sol. St. Comm. 1981. V. 39. № 11. P. 1209.
- [13] Страшникова М. И. // ФТТ. 1975. Т. 17. № 3. С. 729—734.
- [14] Лебедев М. В., Страшникова М. И., Тимофеев В. Б., Черный В. В. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 7. С. 1948—1954.
- [15] Лебедев М. В., Страшникова М. И., Тимофеев В. Б., Черный В. В. // Письма в ЖЭТФ. 1984. Т. 39. № 8. С. 366—369.
- [16] Демиденко А. А., Лебедев М. В., Пекар С. И., Страшникова М. И., Тимофеев В. Б., Цеквава Б. Е. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. № 7. С. 330—335.
- [17] Пикус Г. Е., Бир Г. Л. // ФТП. 1973. Т. 7. № 1. С. 119—131.
- [18] Davydov A. S., Myasnikov E. N. // Phys. St. Sol. (b). 1974. V. 63. N 1. P. 325—332.
- [19] Резниченко В. Я., Страшникова М. И., Черный В. В. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. № 10. С. 554—556.
- [20] Демиденко А. А., Пекар С. И., Цеквава Б. Е. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 3. С. 741—747.

Институт физики АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
11 мая 1989 г.
В окончательной редакции
2 октября 1989 г.