

УДК 535.33; 535.375

АНГАРМОНИЗМ ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ ГЕРМАНИЯ
ВБЛИЗИ ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛАВ. А. Гайслер, И. Г. Неизвестный, М. П. Силуков,
А. Б. Талочкин

Обнаружены различия в температурных зависимостях положения и полуширины фоновой линии германия при возбуждении спектра комбинационного рассеяния света (КРС) на различной глубине от поверхности кристалла. Показано, что наблюдаемые особенности можно объяснить с учетом изменения ангармонических поправок частоты оптического фонона в приповерхностной области по сравнению с объемом кристалла.

Настоящая работа посвящена исследованию КРС на оптических фононах в германии. Кристаллы германия характеризуются высоким коэффициентом поглощения для света видимой области спектра. Это обстоятельство позволяет регистрировать сигнал КРС от приповерхностной области размером $\sim 100 \text{ \AA}$ и изучать влияние поверхности на спектр колебаний кристалла. В [1] нами обнаружено, что ослабление приповерхностных атомных связей приводит к появлению дополнительного оптического колебания, локализованного вблизи поверхности Ge на расстоянии порядка длины свободного пробега оптического фонона, которое составляет $l \simeq v_0 \tau_0 \simeq 20 \text{ \AA}$, где v_0 — групповая скорость, τ_0 — время жизни оптического фонона. Наряду с этим взаимодействие акустических фононов с поверхностью также может приводить к изменению их частот в области с характерным размером $\Lambda \simeq v_a \tau_a$, где v_a , τ_a — групповая скорость и время жизни акустических фононов соответственно; причем значение Λ может существенно превышать l в силу того, что $v_a > v_0$. Поскольку ангармонические поправки частот оптических фононов Δ и Γ (Δ — константа перенормировки, Γ — константа затухания) определяются взаимодействием оптических колебаний с акустическими, то величины этих поправок вблизи поверхности на расстоянии Λ могут отличаться от объемных значений. В результате следует ожидать изменения частоты и затухания оптических фононов вблизи поверхности кристалла. Размер этой области должен зависеть от температуры из-за изменения времен жизни фононов. В связи с этим представляет интерес исследование температурных зависимостей положения и полуширины фоновой линии Ge при возбуждении спектра на различной глубине от поверхности кристалла.

Были использованы образцы собственного германия. Поверхность образцов подвергалась химико-механической полировке с последующей обработкой в полирующем травителе. Спектры КРС возбуждались линиями He—Ne ($\lambda = 632 \text{ нм}$) и Ar^+ ($\lambda = 514 \text{ нм}$) лазеров и регистрировались с помощью спектрометра ДФС-52. Эффективная глубина, с которой регистрируется сигнал КРС, для $\lambda = 632 \text{ нм}$ составляет $L \simeq (2\alpha)^{-1} \simeq 400 \text{ \AA}$, где α — коэффициент поглощения, а для света с длиной волны 514 нм $L \simeq \simeq 100 \text{ \AA}$. Энергия этих линий возбуждения находится в пределах полосы собственного поглощения Ge, где коэффициент поглощения слабо зависит от длины волны [2]. Считая, что с изменением температуры спектральная

зависимость коэффициента поглощения сдвигается как целое по шкале частот на величину, равную сдвигу края собственного поглощения, можно оценить, что для этих длин волн возбуждения коэффициент поглощения

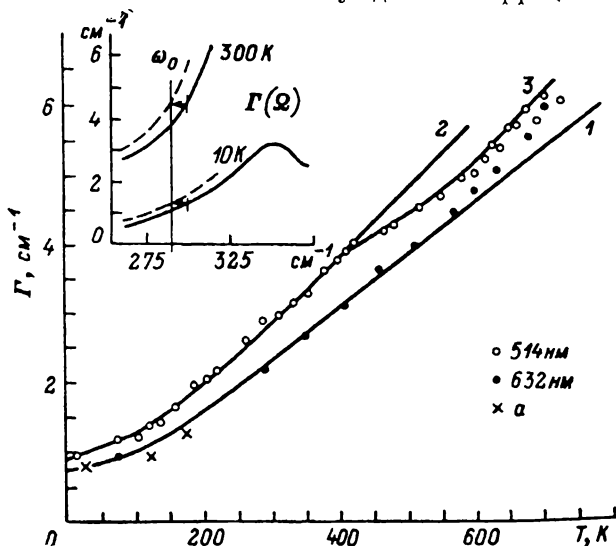


Рис. 1. Температурные зависимости полуширины фоновой линии Ge Γ , полученные при возбуждении спектра КРС вблизи поверхности ($\lambda=514$ нм) и в объеме кристалла ($\lambda=632$ нм).

α — данные работы [3].

изменяется не более, чем на 20 % при изменении температуры в диапазоне от $< T < 700$ К. Этим изменением L в дальнейшем мы будем пренебрегать, поскольку масштаб изменения λ с температурой существенно больше.

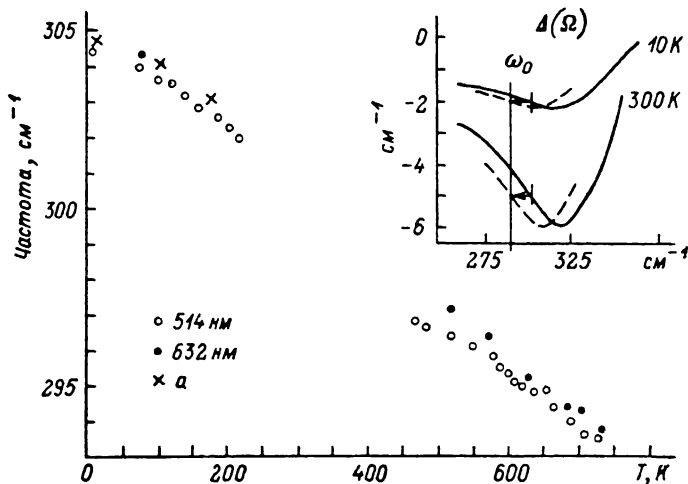


Рис. 2. Температурные зависимости частот фононов, полученные в тех же условиях, что на рис. 1.

На рис. 1, 2 представлены температурные зависимости полуширины и положения фоновой линии Ge, полученные с указанными лазерными линиями. Величина ошибки в определении положения и полуширины фоновой линии в данном эксперименте не превышала 0.2 см^{-1} до $T \sim 500$ К, а при дальнейшем повышении температуры погрешность возрастала до 0.5 см^{-1} из-за уширения линии. Эта точность обеспечивалась за счет большого времени накопления при записи спектров (величина отношения сигнал/шум была не менее 30).

Для случая объемного возбуждения ($\lambda=632$ нм) температурные зависимости полуширины и положения совпадают с результатами работы [3]. В ней показано, что основным механизмом, ограничивающим время жизни длинноволновых оптических фононов Ge, является их распад на TA - и LA -фононы с волновыми векторами вблизи границы зоны Бриллюэна. Для этого механизма распада полуширина фононной линии $\Gamma(T)$ описывается выражением

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 (1 + n_1 + n_2), \quad (1)$$

где n_1 и n_2 — числа заполнения TA - и LA -фононов с частотами 0.35ω и 0.65ω соответственно (ω — частота длинноволнового оптического фонона). Зависимость $\Gamma(T)$, вычисленная по формуле (1) с $\Gamma_0=0.75$ см $^{-1}$, представлена на рис. 1 (кривая 1). Отклонение экспериментальной зависимости $\Gamma(T)$ от теоретической (1), наблюдаемое при $T > 600$ К (рис. 1), по-видимому, обусловлено проявлением объемного ангармонизма более высокого порядка (четвертого) [4]. В отличие от $\Gamma(T)$ температурная зависимость частоты фонона не может быть представлена в таком же простом виде в силу того, что в перенормировку частоты фононов дают вклад другие типы колебаний кроме тех, которые определяют $\Gamma(T)$ [3]. Поэтому основное внимание будет уделено температурной зависимости полуширины линии.

Полуширина и положение фононной линии, измеренные при возбуждении спектра КРС вблизи поверхности кристалла ($\lambda=514$ нм), отличаются от объемных значений ($\lambda=632$ нм). Как видно из рис. 1, 2, эта разница зависит от температуры. При $T < 100$ К полуширина и положение фононной линии вблизи поверхности незначительно отличаются от объемных значений. С повышением температуры эта разница увеличивается и достигает максимальной величины в районе $T \approx 400$ К. При дальнейшем повышении температуры параметры фононной линии в приповерхностной области начинают сближаться с объемными значениями, а при $T \approx 700$ К они практически не различаются.

Наблюдаемое различие в положении и полуширине фононных линий вблизи поверхности и в объеме мы связываем с тем, что ангармонические поправки частоты оптического фонона в приповерхностной области размером Λ отличаются от объемных значений. Размер этой области определяется скоростями и временами жизни TA - и LA -фононов, взаимодействие с которыми дает основной вклад в затухание и перенормировку частоты оптических колебаний Ge. Вид температурных зависимостей, приведенных на рис. 1, 2, подтверждает эту точку зрения. Увеличение разницы между поверхностными и объемными параметрами фононной линии, наблюдаемое при $0 < T < 400$ К, обусловлено тем что в этом интервале температур $\Lambda > L \approx 100$ Å. С повышением температуры Λ падает и при $T \approx 400$ К становится меньше L . В результате в спектре КРС начинает проявляться фононная линия с объемными значениями положения и полуширины. Однако поскольку разница в положениях фононных линий вблизи поверхности и в объеме меньше их полуширины (рис. 1, 2), то эти линии не проявляются в спектре в виде отдельных пиков. При дальнейшем уменьшении Λ с ростом температуры интенсивность линии от приповерхностной области падает, а при $T \approx 100$ К практически не проявляется по сравнению с линией объемного фонона.

Высказанные соображения позволяют количественно описать температурную зависимость полуширины фононной линии, полученную с $\lambda=514$ нм. В температурном диапазоне $0 < T < 400$ К, в котором $\Lambda > L \approx 100$ Å, эта зависимость должна описываться выражением (1) с константой Γ_s , отличной от объемного значения Γ_0 . На рис. 1 приведена зависимость, вычисленная по формуле (1) с $\Gamma_s=0.93$ см $^{-1}$ (кривая 2), которая хорошо описывает данные эксперимента. В интервале температур $400 \div 700$ К, в котором $\Lambda < L \approx 100$ Å, область возбуждения спектра КРС можно условно разбить на две части размером $L-\Lambda$ и Λ , которые разли-

чаются значениями ангармонических параметров. В силу того, что фоновые линии от этих двух областей не проявляются в спектре в виде отдельных пиков, температурную зависимость полуширины $\overline{\Gamma}(T)$ можно приближенно описать выражением

$$\overline{\Gamma}(T) = \Gamma_s(T) \Delta(T)/L + \Gamma(T) [L - \Delta(T)] / L, \quad (2)$$

где $\Gamma_s(T)$ и $\Gamma(T)$ — температурные зависимости полуширины фоновой линии вблизи поверхности и в объеме соответственно. Это выражение определяет среднее значение полуширины $\overline{\Gamma}(T)$ по длине L . Полагая, что $\Delta(T)$ падает с ростом температуры по закону $(T)^{-2,1}$ это выражение приводится к виду

$$\overline{\Gamma}(T) = \Gamma(T) [1 - A(T_0/T)^{-2}]. \quad (3)$$

где $A = (\Gamma_s/\Gamma_0 - 1)$, T_0 — температура, при которой $L \approx \lambda$. Зависимость, вычисленная с помощью выражения (3) для $T_0 = 400$ К, представлена на рис. 1 (кривая 3). Видно, что она описывает экспериментальную зависимость в диапазоне температур 400–700 К.

Отличие ангармонических поправок частоты оптического фонона вблизи поверхности от объемных значений мы связываем, как уже отмечалось, с изменением частот TA - и LA -фононов. Температурные зависимости, представленные на рис. 1, 2, позволяют получить представление об изменении спектра этих колебаний вблизи поверхности кристалла. Ангармонические поправки частоты оптического фонона Δ и Γ являются функциями, зависящими от частоты Ω [6]. Зависимости $\Delta(\Omega)$ и $\Gamma(\Omega)$ рассчитаны для Ge в [6] при 10 и 300 К. На вставках рис. 1, 2 приведены фрагменты этих зависимостей вблизи гармонической частоты ω_0 (вертикальная линия). Из вида $\Delta(\Omega)$ и $\Gamma(\Omega)$ можно предположить, что наблюдаемое уширение и низкочастотное смещение фоновой линии при возбуждении спектра КРС вблизи поверхности (рис. 1, 2, $\lambda = 514$ нм) соответствует тому, что $\Gamma_s(\Omega)$ и $\Delta_s(\Omega)$ в приповерхностной области смещены в сторону низких частот относительно объемных зависимостей. На вставках рис. 1, 2 штриховыми линиями показаны эти зависимости, полученные сдвигом объемных так, чтобы пересечение их с линией ω_0 соответствовало наблюдаемым значениям уширения и смещения фоновой линии при $T = 10$ и $T = 300$ К. Там же стрелками показан частотный сдвиг, величина которого для $\Gamma(\Omega)$ составляет 5 см^{-1} , а для $\Delta(\Omega)$ — 7 см^{-1} , причем значения величины сдвига совпадают для этих двух температур. Из вида выражений для $\Gamma(\Omega)$ и $\Delta(\Omega)$ [6] можно заключить, что смещение этих зависимостей соответствует уменьшению частот TA - и LA -фононов на величину $2\text{--}3\%$ в результате взаимодействия с поверхностью кристалла.

Таким образом, изменение ангармонических параметров, позволяющее объяснить различия в температурных зависимостях положения и полуширины фоновой линии Ge вблизи поверхности и в объеме, могут быть связаны с изменением частот TA - и LA -фононов в приповерхностной области кристалла.

Авторы выражают благодарность А. В. Субашиеву за полезное обсуждение результатов.

Л и т е р а т у р а

- [1] Гайслер В. А., Неизвестный И. Г., Синюков М. П., Талочкин А. Б. Письма в ЖЭТФ, 1987, т. 45, № 7, с. 347—350.
- [2] Aspnes D. E., Studna A. A. Phys. Rev., 1983, vol. 27, N 2, p. 985—1009.
- [3] Menendez J., Cardona M. Phys. Rev., 1984, vol. 29, N 4, p. 2051—2059.
- [4] Haisler V. A., Zaletin V. M., Kravchenko A. F. Phys. St. Sol. (B), 1984, vol. 125, N 2, p. K103—K108.
- [5] Акустические кристаллы / Под ред. М. П. Шаскольской. М.: Наука, 1982, с. 632.
- [6] Cowley R. A. J. Phys. (Paris), 1965, vol. 29, N 8, p. 659—671.

Институт физики
полупроводников СО АН СССР
Новосибирск

Поступило в Редакцию
29 мая 1987 г.
В окончательной редакции
12 октября 1987 г.

¹ Здесь использована зависимость длины свободного пробега фононов от температуры, полученная по данным о теплопроводности и теплоемкости германия [6].