1988 ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА Том 30, в. 5
1988 SOLID STATE PHYSICS Vol. 30, № 5

УДК 535.56

ВЛИЯНИЕ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ ДОБАВОЧНЫХ ВОЛН НА ИНТЕГРАЛЬНЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ЭКСИТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

С. Б. Московский, А. Б. Новиков, Л. Е. Соловьев

Зависимость интегрального коэффициента экситонного поглощения (ИКЭП) от константы затухания тесно связана с нарушением дисперсионных соотношений Крамерса—Кронига для спектров пропускания. Оба этих явления могут быть интерпретированы единым образом на основе понятия об интерференции добавочных волн. Предложенная теория может быть применима в равной мере для поперечных и продольных экситонов.

Определим интегральный коэффициент поглощения $S=\int\limits_{-\infty}^{+\infty} K(\omega)\,d\omega$, где $K(\omega)$ — коэффициент поглощения, экспериментально определяемый по закону Бугера как отношение интенсивности прошедшего через вещество света к падающему, $I/I_0=\exp\left[-K(\omega)z\right]$ (z — оптический путь). Таким образом, S по смыслу является площадью под спектральной кривой коэффициента поглощения. Как правило, для газов, жидкостей и твердых веществ S не зависит от температуры (константы затухания γ). Однако в некоторых случаях такая зависимость была обнаружена в ряде полупроводниковых кристаллов в области экситонных линий поглощения [1-5]. В теоретических работах [6-9] зависимость $S=S(\gamma)$ объяснялась влиянием пространственной дисперсии света (ПД).

Поскольку к рассматриваемому явлению может приводить не только ПД, но и, в частности, зависимость γ от частоты [1], нам представляется необходимым наряду с амплитудными исследованиями проводить исследования фазовых спектров пропускания. В этом случае непротиворечивые результаты измерений могут, по нашему мнению, разъяснить ситуацию и явиться доказательством определяющей роли ПД на температурную зависимость интегрального коэффициента экситонного поглощения (ИКЭП).

В настоящем сообщении сделана попытка единым образом описать ИКЭП совместно с установленными в [11] дополненными дисперсионными соотношениями (ДС) Крамерса—Кронига для функции пропускания. Непосредственный учет интерференции добавочных волн Пекара [12, 13] снимает при этом ограничения на толщину кристаллов, существующие в приближенной теории [9], в которой наиболее полно и последовательно рассматривалась ранее зависимость от γ контура экситонных линий поглощения и ИКЭП. Необходимость совместных амплитудно-фазовых исследований становится очевидной также в связи с тем, что нарушения ДС и возникновение зависимости ИКЭП от константы затухания возникают в теории при одних и тех же критических значениях $\gamma_{кр}$. Кроме того, причиной нарушения ДС могут послужить пространственные неоднородности кристалла, что автоматически учитывается при совместных амплитудно-фазовых исследованиях.

Зависимость ИКЭП от γ возникает в [9] вследствие интегрирования однозначной функции $\varkappa(\omega) = \mathrm{Im}\,\tilde{n}(\omega)$ ($\tilde{n}(\omega)$ — комплексный показатель преломления), получаемой при пренебрежении добавочными волнами, обладающими на заданной частоте более сильным поглощением. Разделение волн на обычные и добавочные осуществляется в точке спектра, где выполняется условие $\varkappa_+(\omega) = \varkappa_-(\omega)$. Однако возникновение добавочных волн является одним из наиболее характерных эффектов пространственной дисперсии [13], поэтому их учет при вычислении $S(\gamma)$ является естественным обобщением.

Выражения для ИКЭП в области изолированного экситонного резонанса при учете добавочных волн можно получить, используя представление об аналитическом продолжении функции пропускания кристалла в верхнюю полуплоскость комплексной частоты ($J_+(\omega)$) [11].

Рассмотрим поглощение света в кристаллах типа сульфида кадмия при наиболее простой геометрии: $\mathbf{E} \perp C_6$, $\mathbf{k} \perp C_6$, где $\mathbf{k}$ — волновой вектор

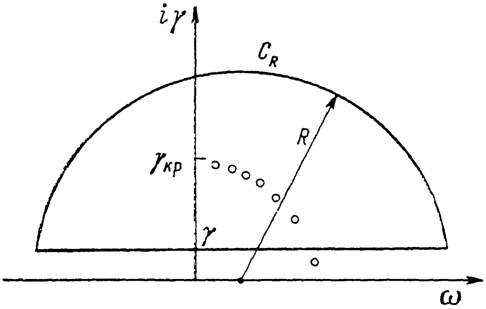

Рис. 1. Контур интегрирования в плоскости комплексной переменной $\tilde{\omega} = \omega + i\gamma$.

Кружки — схематическое изображение координат.

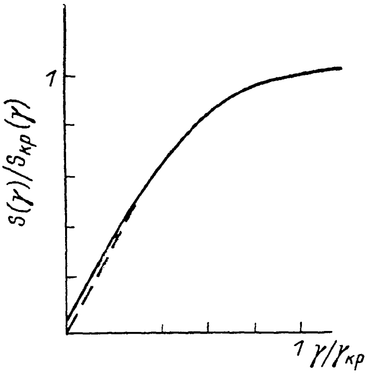

Рис. 2. Зависимость интегрального поглощения S от константы затухания γ в кристаллах CdS.

Сплошная линия $z = 0.2$ мкм, штриховая — $z = 1.0$ мкм.

света, C_6 — оптическая ось кристалла. Дисперсионное уравнение при этом выглядит следующим образом [10]

$$\varepsilon_\perp(\omega, \mathbf{k}) = \frac{c^2\mathbf{k}^2}{\omega^2},$$

а выражение для диэлектрической проницаемости в области изолированного резонанса есть

$$\varepsilon_\perp(\omega, \mathbf{k}) = \varepsilon_{0\perp}\left(1 - \frac{\omega_{LT}}{\tilde{\omega} - \omega_T - \dfrac{\hbar\mathbf{k}^2}{2m^*}}\right). \tag{1}$$

Решение дисперсионного уравнения имеет вид $n_\pm^2 = \varepsilon + \eta \pm \sqrt{\eta^2 + \alpha}$, где следует положить $\varepsilon = \varepsilon_{0\perp}$, $\eta = \dfrac{\tilde{\omega} - \omega_T - \beta_\perp\varepsilon_{0\perp}}{2\beta_\perp}$, $\alpha = \dfrac{\varepsilon_{0\perp}\omega_{LT}}{\beta_\perp}$, $\varepsilon_{0\perp} = n_0^2$ — фоновая диэлектрическая проницаемость, $\beta_\perp = \dfrac{\hbar\omega_T^2}{2m^*c^2}$, ω_T — частота поперечного экситона. ω_{LT} — продольно-поперечное расщепление; m^* — эффективная масса экситона.

В качестве функции, характеризующей пропускание, следует взять $\Theta(\omega) = \exp\left[i\dfrac{\omega_T}{c}\Delta\tilde{n}(\omega)z\right]$, где $\Delta\tilde{n}(\omega) = \tilde{n}^*(\omega) - n_0$ $\tilde{n}^*(\omega) = n^*(\omega) + i\varkappa^*(\omega)$ — эффективный показатель преломления [14].

Интегральный коэффициент поглощения при этом можно выразить

$$S(\gamma, z) = -\frac{2}{z} \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{+\infty} \operatorname{Ln} \Theta(\tilde{\omega}, z)\, d\omega. \tag{2}$$

Здесь учтено, что $K(\omega) = \frac{2\omega_T}{c} \varkappa(\omega)$. Интегрирование в приближении изолированного резонанса можно проводить по всей вещественной оси, так как формулы типа (1) не дают сопряженного резонанса в области отрицательных частот.

Преобразуя (2), получаем

$$S(\gamma, z) = \frac{2}{z} \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega \frac{\Theta'}{\Theta}\, d\omega.$$

Данный интеграл удается взять, рассмотрев аналитическое продолжение подынтегральной функции в I_+ ($\tilde{\omega}$) и замкнув контур интегрирования на бесконечности. Введем интеграл

$$I = \int_C (\tilde{\omega} - i\gamma) \frac{\Theta'(\omega)}{\Theta(\omega)}\, d\omega, \tag{3}$$

где замкнутый контур интегрирования C (рис. 1) состоит из прямолинейного участка C, определяемого равенством $\operatorname{Im} \omega = \gamma$, и участка полуокружности C_R в I_+ (ω) радиуса R с центром на вещественной оси. В соответствии с разбиением контура интегрирования интеграл (3) можно представить в виде суммы $I = I_L + I_R$. Тогда в пределе $R \to \infty$ для искомого интегрального коэффициента поглощения получим

$$S = \frac{2}{z} \operatorname{Re} I_L = \frac{2}{z} \operatorname{Re}(I - I_R). \tag{4}$$

Следствием принципа причинности является аналитичность коэффициента пропускания в I_+ (ω). Аналогичное утверждение справедливо и для функции Θ ($\tilde{\omega}$) [11]. Поэтому особенностями подынтегральной функции в (3) могут быть только нулевые точки Θ ($\tilde{\omega}$), а для интеграла получаем

$$I = 2\pi i \sum_j (\tilde{\omega}_{0j} - i\gamma), \tag{5}$$

где $\tilde{\omega}_{0j} = \omega_{0j} + i\gamma_{0j}$ — координаты нулей пропускания, находящихся внутри контура интегрирования, т. е. таких, что $\gamma_{0j} > \gamma$.

При вычислении интеграла I_R удобно перейти к безразмерной переменной η. Участок контура интегрирования C_R при этом перейдет в дугу полуокружности C_{R_1} в I_+ (η) радиусом $R_1 = R/2\beta_\perp$, центр которой можно поместить в точку $\eta = 0$ (см. контур в [9]). Опустив промежуточные выкладки, получаем

$$I_R = \frac{-\pi a \beta_\perp \omega_T z}{2cn_0}, \tag{6}$$

что полностью совпадает с соответствующим результатом в [9]. Последнее легко понять, учитывая, что на дуге C_R, т. е. в удаленной от резонанса области I_+ ($\tilde{\omega}$), влияние добавочных волн исчезающе мало, а эффективный показатель $\tilde{n}$ ($\tilde{\omega}$) и рассмотренный в [9] комплексный показатель преломления $\tilde{n}$ (ω) стремятся к одному и тому же (классическому) пределу.

Подставляя в (4) результаты (5) и (6), окончательно можно записать

$$S(\gamma, z) = \pi \left[\frac{a\beta_\perp \omega_T}{cn_0} - \frac{4}{z} \sum_j (\gamma_{0j} - \gamma) \right]. \tag{7}$$

Для нахождения координат нулей функции $\Theta(\omega)$ необходимо задание дополнительных граничных условий (ДГУ). При этом в каждой точке спектра однозначно определяется соотношение амплитуд поляритонных волн

$$E_-(\omega)/E_+(\omega) \equiv q(\omega) = |q(\omega)| \exp[i\Phi(\omega)],$$

и условие $\Theta(\omega)=0$ при пренебрежении отражением от второй границы кристалла может быть представлено в виде системы двух уравнений

$$\left.\begin{aligned} \frac{\omega_T z}{c}[n_+(\omega) - n_-(\omega)] &= \Phi(\omega) + (2j-1)\pi, \\ \frac{\omega_T z}{c}[\varkappa_+(\omega) - \varkappa_-(\omega)] &= -\ln|q(\omega)|, \end{aligned}\right\} \tag{8}$$

где $=1, 2, \ldots N$. Значения корней данной системы $\tilde{\omega}_{0j}$ и их общее количество N зависят от толщины кристалла. Система (8) решается численно, причем область $I_+(\omega)$, в которой ведется поиск решений, должна быть разбита на N участков, в каждом из которых находится одно решение. Для осуществления такого разбиения нами рассматривались общие свойства функции $q(\tilde{\omega})$, $n_\pm(\tilde{\omega})$, $\varkappa(\tilde{\omega})$ и проводилось приближенное аналитическое решение первого из уравнений (8). Решения (8) $\tilde{\omega}_{0j}(z)$ были получены для ряда кристаллов A_2B_6 в диапазоне толщин $z=0\div1.5$ мкм.

В качестве ДГУ при этом использовалось граничное условие Пекара — обращение в нуль экситонной составляющей поляризации на границе кристалла.

Следует заметить, что учет многократных отражений внутри кристалла не приводит к существенному усложнению расчетов $S(\gamma, z)$. Вывод формулы (7) в этом случае не изменится, если в функции пропускания подразумевается учет многократных отражений. Тогда для нахождения нулей пропускания в (8) вместо $|q(\tilde{\omega})|$ и $\Phi(\tilde{\omega})$ следует подставить соответственно амплитуду и фазу функции

$$q_1(\tilde{\omega}) = q(\tilde{\omega}) \frac{\tilde{n}_-\left[\exp\left(2i\frac{\omega_T}{c}\tilde{n}_+ z\right) - 1\right]}{\tilde{n}_+\left[\exp\left(2i\frac{\omega_T}{c}\tilde{n}_- z\right) - 1\right]}.$$

В качестве начального приближения при этом можно использовать набор решений «двухлучевой» задачи. Все расчеты $\tilde{\omega}_{0j}(z)$ производились нами с учетом многократных отражений.

Одно из общих свойств решений системы (8) для различных моделей ДГУ заключается в том, что мнимые координаты нулей пропускания всегда меньше критического затухания $\gamma_{кр}=2\sqrt{\varepsilon_{0\perp}\omega_{LT}\beta_\perp}$. Поэтому в области $\gamma \geqslant \gamma_{кр}$ слагаемые, зависящие от γ, в (7) исчезают, и интегральный коэффициент поглощения перестает зависеть от затухания. Таким образом, отклонение интегрального коэффициента поглощения от своего классического (высокотемпературного) значения и нарушение классических дисперсионных соотношений [11] происходит в одной и той же области температур.

Используя понятие критического затухания, можно переписать (7)

$$S(\gamma, z) = \pi\gamma_{кр}\left(\frac{\omega_T\sqrt{\alpha}}{2cn_0} - \frac{4}{z}\sum_j \frac{\gamma_{0j} - \gamma}{\gamma_{кр}}\right). \tag{9}$$

Результаты вычислений по формуле (9) для кристаллов сульфида кадмия представлены на рис. 2.

Аналогичные соотношения легко вывести для более общей геометрии наблюдения, при которой возбуждаются смешанные экситоны. В этом случае экспериментальные исследования упрощаются.

Результаты сравнения предложенного теоретического рассмотрения с экспериментальными данными по одновременному наблюдению температурной зависимости ИКЭП и фазовых спектров пропускания кристаллов сульфида и селенида кадмия при двухчастотной регистрации будут опубликованы в дальнейшем.

Литература

[1] *Voigt J.* Phys. St. Sol. (B), 1974, vol. 64, N 2, p. 549—556.
[2] *Крейнгольд Ф. И., Макаров В. Л.* Письма в ЖЭТФ, 1974, т. 20, № 7, с. 441—445.
[3] *Bosacchi A., Bosacchi B., Franchi S.* Phys. Rev. Lett., 1976, vol. 36, N 18, p. 1086—1089.
[4] *Ахмедиев Н. Н., Голубев Г. П., Днепровский В. С., Жуков Е. А.* ФТТ, 1983, т. 25, № 7, с. 2225—2227.
[5] *Новиков А. Б., Соловьев Л. Е., Талалаев В. Г.* ФТТ, 1986, т. 28, № 6, с. 1931—1934.
[6] *Davidov A. S., Serikov A. A.* Phys. St. Sol. (B), 1973, vol. 56, N 1, p. 351—363.
[7] *Nkoma J. S.* Phys. St. Sol. (B), 1980, vol. 97, N 2, p. 657—662.
[8] *De Crscenzi M., Harbeke G.* Sol. St. Commun., 1979, vol. 32, N 9, p. 777—781.
[9] *Ахмедиев Н. Н.* ЖЭТФ, 1980, т. 79, № 4, с. 1534—1543.
[10] *Агранович В. М., Гинзбург В. Л.* Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теории экситонов. М.: Наука, 1979, 432 с.
[11] *Московский С. Б., Соловьев Л. Е.* ЖЭТФ, 1984, т. 86, № 4, с. 1419—1430.
[12] *Пекар С. И.* ЖЭТФ, 1957, т. 3, № 4, с. 1022—1036.
[13] *Киселев В. А., Разбирин Б. С., Уральцев И. Н.* Письма в ЖЭТФ, 1973, т. 18, № 8, с. 504—507.
[14] *Московский С. Б., Соловьев Л. Е.* Вестник ЛГУ, 1983, № 10, с. 85—87.

Ленинградский государственный
университет им. А. А. Жданова
Ленинград

Поступило в Редакцию
3 ноября 1987 г.
В окончательной редакции
7 января 1988 г.