

Сложная структура оптических переходов с остовных d -уровней кристаллов InAs и InSb

© В.В. Соболев, Д.А. Перевощиков

Удмуртский государственный университет,
426034 Ижевск, Россия

E-mail: sobolev@uni.udm.ru

(Получена 22 ноября 2016 г. Принята к печати 25 января 2017 г.)

Усовершенствованным беспараметрическим методом объединенных диаграмм Арганда спектры диэлектрической проницаемости кристаллов InAs и InSb в области 15–40 эВ разложены на тринадцать и двенадцать отдельных компонент соответственно с определением для каждой из них трех основных параметров: энергий максимума и полуширины, а также силы осциллятора. Силы осцилляторов находятся в интервалах 0.006–0.10 (InAs) и 0.014–0.076 (InSb). Спектры диэлектрических проницаемостей предварительно рассчитаны на основе экспериментальных спектров отражения и поглощения методом интегральных соотношений Крамерса–Кронига. Предложена природа полученных полос переходов по модели межзонных и экситонных переходов.

DOI: 10.21883/FTP.2017.08.44793.8454

1. Введение

Соединения группы A^3B^5 весьма популярны в прикладных применениях и теоретических модельных исследованиях [1–5]. Наиболее изучены особенности лишь трех-четырех нижних зон проводимости (НЗП), а также оптические переходы в области до ~ 10 эВ [1,3,6–12]. При энергии $E > 10$ эВ экспериментальные кривые отражения $R(E)$ очень сильно понижаются, что существенно затрудняет регистрацию их возможных сложных структур, связанных с переходами из остовных d -зон. В работе [13] при комнатной температуре в спектрах отражения кристаллов группы A^3B^5 в области 17–25 эВ наблюдалась одна широкая полоса, которую качественно объясняли переходами из остовных d -уровней катионов. Дальнейшие экспериментальные исследования спектров поглощения [14], отражения [15,16], диэлектрической проницаемости [17] в данной области энергий выявили 2–4 максимума и еще 3–4 ступеньки, формирование которых качественно объяснялось спин-орбитальным расщеплением остовных состояний и экситонными переходами. При этом в теоретических работах [2,18–22] по d -зонам основное внимание уделено не природе этих структур, а проблеме завьшения положения среднего уровня d -зон на ~ 3 –4 эВ в приближении локальной плотности (LDA) и обобщенного градиентного приближения (GGA). Попытка теоретического описания оптических свойств кристалла InAs без учета экситонных эффектов в области энергий > 10 эВ представлена в работе [23]. В области энергий 10–17 эВ теоретические спектры отражения в [23] в 2–3 раза интенсивнее экспериментальных [13] и содержат множество (~ 6 –7) очень слабых максимумов и ступенек.

Цель настоящей работы состоит в моделировании полного набора оптических переходов кристаллов InAs и InSb в области 15–40 эВ при использовании эксперимен-

тальных спектров отражения, поглощения и диэлектрической проницаемости с последующим теоретическим анализом полученных данных на основе теоретических расчетов межзонных переходов и учета возможного вклада метастабильных экситонов.

2. Теория и метод расчета

В стандартном способе определения набора оптических функций, в том числе реальной $\epsilon_1(E)$ и мнимой $\epsilon_2(E)$ частей диэлектрической функции $\epsilon(E)$, на основе экспериментального спектр отражения $R(E)$ или поглощения $\alpha(E)$ используют компьютерные пакеты программ с численной реализацией соотношений Крамерса–Кронига и аналитических формул связи между оптическими функциями. Данные методики нами подробно описаны [12,24] и обсуждены [25–28].

Разложение спектров $\epsilon_2(E)$ на элементарные компоненты и определение их основных трех параметров (энергии максимума E_j и полуширины H_j , силы осциллятора f_j) было выполнено в рамках усовершенствованного беспараметрического метода объединенных диаграмм Арганда (ОДА). Беспараметрический метод ОДА основан на предположении, что элементарная компонента оптического перехода имеет форму симметричного лорентцевского осциллятора [5,24]:

$$\epsilon_{1,j}(E) - 1 = \frac{\epsilon_{2\max,j} \cdot H_j \cdot E_j \cdot (E_j^2 - E^2)}{(E_j^2 - E^2)^2 + H_j^2 \cdot E^2}, \quad (1)$$

$$\epsilon_{2,j}(E) = \frac{\epsilon_{2\max,j} \cdot H_j^2 \cdot E_j \cdot E}{(E_j^2 - E^2)^2 + H_j^2 \cdot E^2}, \quad (2)$$

где $\epsilon_{2\max,j}$ — максимальное значение полосы $\epsilon_{2,j}(E)$. Отличительная особенность такой изолированной полосы состоит в том, что ее диаграмма Арганда (зависимость $\epsilon_{2,j} = F(\epsilon_{1,j})$) представляет идеальную окружность. ОДА для интегральных функций $\epsilon_1(E)$ и $\epsilon_2(E)$

суммирует вклады множества различных окружностей. Достаивая полуокружности на кривой ОДА полными окружностями, можно в итоге получить все неизвестные параметры в уравнениях (1) и (2): E_j , H_j , f_j . Это позволяет шаг за шагом разложить весь спектр диэлектрической функции на отдельные компоненты без использования подгоночных параметров. Однако у этого метода есть весомый недостаток: боковые хвосты лорентцевского осциллятора имеют физически необоснованную протяженность в широких областях энергии. Этому противоречит теоретически ожидаемое формирование полосы в весьма ограниченной области энергии. Несмотря на слабость, эти „хвосты“ могут приводить к сильному занижению интенсивности слабых полос переходов, вплоть до невозможности их выделения, несмотря на существование слабых структур на интегральной кривой диэлектрической функции. Поэтому было естественно усовершенствовать данную методику заменой хвостов обоих удлиненных осцилляторов на прямые линии, расположенные касательно к контуру на уровне $\varepsilon_{2\max,j}/4$, что эквивалентно замене начальной формы кривой лорентциана на гауссиан. Вводя таким образом форму элементарной полосы функции $\varepsilon_2(E)$, можно определить силу осциллятора переходов по элементарной формуле для количества валентных электронов, участвующих в переходе:

$$f_j = A \frac{\Omega}{z} \int_{a_j}^{b_j} E \varepsilon_{2,j}(E) dE, \quad (3)$$

где $A = 0.462 \text{ эВ}^{-2} \text{ нм}^{-3}$ — константа, Ω — объем элементарной ячейки (нм^3), $z = 4$ (для кристаллов A^3B^5) — число функциональных единиц в элементарной ячейке, a_j и b_j — начало и конец элементарной полосы (эВ).

Для многих кристаллов известны методы воспроизведения интегрального спектра набором ряда полос, используя 15–30 подгоночных параметров [5,29,30]. Существенное отличие примененной нами методики от известных многопараметрических моделей состоит в полном отсутствии подгоночных параметров. Так как в модели не заложена природа выделяемой полосы, то ей могут оказаться как межзонные переходы, так и экситонные, или их комбинация в случае малой энергии связи экситонов относительно полуширины полосы.

Для определения природы возникновения полученных полос мы будем опираться на модель межзонных переходов в рамках первопринципных методов расчета зон и возможных метастабильных экситонов [12,21,31].

Расчеты зон и межзонных переходов проведены нами на основе теории функционала электронной плотности при использовании обменно-корреляционного потенциала $GGA-PBE\text{Sol}$ [32], реализованной в пакете программ *exciting* [33]. Методы на основе GGA -потенциалов при больших достоинствах имеют три недостатка: 1) сильное занижение значения запрещенной

зоны, 2) завышение положений остовных уровней, 3) некорректное описание оптических переходов в верхние зоны проводимости. Для решения первой проблемы уже стало нормой простое смещение зон проводимости на постоянное значение энергии δ_{sc} до согласования теоретического и экспериментального значений запрещенной зоны [12,21,31]. Для устранения третьего недостатка наши расчеты ограничиваются рассмотрением переходов с d -уровней в три нижние зоны проводимости. Для существенного уменьшения второй проблемы введем поправку δ_{dc} для интересующих нас остовных d -зон, аналогичную δ_{sc} . В результате общая поправка для межзонных переходов с участием остовных d -состояний δ_{sh} будет представлять сумму δ_{sc} и δ_{dc} :

$$\delta_{sh} = \delta_{sc} + \delta_{dc}. \quad (4)$$

В расчетах зон с учетом многочастичных методов в приближении GW [21] или более сложных обменно-корреляционных частей в самосогласованном уравнении состояния [20,22] также в итоге лишь смещаются плоские остовные уровни в область меньших значений энергии на постоянную величину, без заметного влияния на их дисперсию. Существенное изменение дисперсии происходит лишь у НЗП в центре ЗБ.

Для определения функции диэлектрической проницаемости в нашей работе используется соотношение [33]:

$$\begin{aligned} \varepsilon(E) &= \varepsilon_1(E) + i \cdot \varepsilon_2(E) \\ &= 1 - \frac{8\pi}{\Omega N} \sum_{n=1}^N \sum_{C,V} \frac{|P_{CV}|^2}{(E + i \cdot \eta)^2 - E_{CV}^2} \cdot \frac{1}{E_{CV} + \eta}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $E_{CV} = E_C - E_V + \delta_{sh}$ — энергия межзонных переходов из валентной зоны V в зону проводимости C с учетом поправки δ_{sh} , P_{CV} — матричный элемент вероятности перехода из валентной зоны V в зону проводимости C , η — параметр уширения. Для более краткого обозначения межзонных переходов будем использовать следующие обозначения: например, переходы, связанные с $d^{3/2}$ -состояниями катиона $d(3)$ и зоной проводимости C_2 , обозначим в виде $d(3) \rightarrow C_2$, если с $d^{5/2}$ и C_3 , то $d(5) \rightarrow C_3$, если имеются в виду переходы в НЗП с $d^{5/2}$ - и $d^{3/2}$ -состояний одновременно, то $d \rightarrow C_1$.

На основе полученных зон можно также провести анализ по возможным экситонным переходам, которые сопровождают межзонные переходы при энергии $E_{ex} = (E_C - E_V) - E_{\text{bind}}$, где E_{ex} — энергия экситонного перехода, E_C и E_V — энергии валентной зоны и зоны проводимости, E_{bind} — энергия связи электрон-дырочной пары. При обозначении энергии экситонного перехода мы будем ссылаться на энергию соответствующего межзонного перехода $E_{CV} = E_C - E_V + \delta_{sh}$. В формуле мы уже учли необходимое смещение остовных зон и зон проводимости на δ_{dc} и δ_{sc} соответственно. Сами экситонные переходы будем обозначать следующим образом: если переходы, например, происходят в точке X и

связаны с $d^{5/2}$ -состояниями катиона и второй НЗП (C_2), то обозначаем их как $X(5, 2)$; если будут иметься в виду оба остовных состояния $d(5)$ и $d(3)$, то просто $X(d, 2)$. Для метастабильных экситонов, если они связаны с максимумом (ступенькой) в межзонных переходах из состояний $d(5)$ во вторую НЗП, обозначение примет вид ME (*peak (shoulder)*, $d(5)$, C_2), или более кратко ME (*p (sh)*, 5, 2).

3. Результаты расчетов

На рис. 1 для InAs приведены наши данные по расчетам зон вдоль некоторых направлений в ЗБ: остовные d -уровни катионов ($\text{In}4d^{5/2}$ и $\text{In}4d^{3/2}$) и три НЗП (C_1 , C_2 и C_3 , причем $E(C_{j+1}) \geq E(C_j)$), за начало отсчета энергии принято положение максимума верхней валентной зоны (ВВЗ) в центре ЗБ. Наши данные по величине $\delta_{dso}(\text{In}) \approx 0.85$ эВ (для обоих соединений) хорошо согласуются с ранее рассчитанными в работах [2,18,19] значениями $\delta_{dso}(\text{In})$ 0.84–0.88 эВ и полученными экспериментально по данным фотоэмиссионных спектров (0.82–0.86 эВ [34,35]). Для сравнения наших результатов по зонной структуре с данными последних лет, полученными первопринципными методами, зоны проводимости были смещены в область больших энергий для согласования теоретических и экспериментальных значений запрещенных зон. Входящая в состав δ_{sh} поправка δ_{sc} в уравнении (4) обычно определяется по значению запрещенной зоны в точке Γ ($\delta_{sc} = \delta_{sc}(\Gamma)$), но в случае кристаллов группы A^3B^5 дополнительно известны энергии запрещенной зоны еще и в точках L и X [36–39]. Поэтому для более корректного определения погрешности в расчетах положения зон

проводимости величина поправки δ_{sc} определялась по соотношению:

$$\delta_{sc} = \frac{\delta_{sc}(\Gamma) + \delta_{sc}(L) + \delta_{sc}(X)}{3}. \quad (6)$$

Значения δ_{sc} составили: 0.55 (InAs) и 0.56 эВ (InSb).

Таким образом, расхождения по энергии наших зон проводимости и данных работ [1,3,10,20] не превышают 0.2 эВ, за исключением очень резкого минимума НЗП в точке Γ (~ 0.3 – 0.4 эВ). Последнее вполне ожидаемо, так как модели работ [1,3,10,20] по сравнению с методиками на основе GGA -потенциалов наиболее сильно различаются для НЗП в окрестности точки Γ .

На основе полученных зон по формуле (5) были подсчитаны парциальные вклады в $\varepsilon_2(E)$ переходов из $d(5)$ - и $d(3)$ -состояний в три нижние зоны проводимости. Для определения параметра δ_{dc} в формуле (4) использованы экспериментальные фотоэмиссионные данные положения остовных d -зон относительно максимума ВВЗ в точке Γ из работы [35]. Значения поправки δ_{sh} составили: 3.26 (InAs) и 3.05 эВ (InSb).

Для рассматриваемой области энергии переходов известны экспериментальные спектры: отражения монокристаллов от 17 до 26 эВ при 300 К [15] и до 20.2 эВ при 22 К [16], ε_1 и ε_2 монокристаллов (эллипсометрические данные) от 15 до 25 эВ при 300 К (InAs) [17], поглощения поликристаллических пленок от 15 до 40 эВ при 300 К [14]. Для расчетов методом Крамерса–Кронига по спектру отражения для области 1.5–17 эВ использованы данные работы [13]. После этого по формулам связи определены спектры функций $\varepsilon_1(E)$, $\varepsilon_2(E)$ и α . По известному на предыдущем шаге спектру поглощения от 1.5 до 15 эВ и данным работы [17] по формулам связи рассчитаны кривые показателя поглощения ($k(E)$) и по соотношениям Крамерса–Кронига — кривые показателя преломления ($n(E)$). Далее по известным $n(E)$ и $k(E)$ из формул связи получены спектры $\varepsilon_1(E)$ и $\varepsilon_2(E)$.

Дальнейшее рассмотрение проводили на основе спектра $\varepsilon_2(E)$ (рис. 2, 3). Для обоих рассмотренных соединений его можно разделить на следующие четыре части: от ~ 17 до ~ 20.2 эВ область I, от ~ 20.2 до ~ 23 – 24 эВ область II, область низкой интенсивности с единичными структурами от ~ 23 – 24 эВ до ~ 31 – 32 эВ (область III), дублетная полоса высокой интенсивности при $E > 31$ эВ, связанная с началом переходов с остовных d -уровней аниона (область IV, получена лишь для InSb).

3.1. InAs

Хотя наш расчет по экспериментальным данным проведен до 40 эВ, структуры, связанные с остовными d -уровнями In представлены лишь до 32 эВ (рис. 2). От 17 до 20 эВ данные получены из спектра отражения (22 К) [16], от 20 до 22.5 эВ — использованы данные прямых эллипсометрических измерений (300 К) [17], при $E > 22.5$ эВ — получены по спектрам поглощения

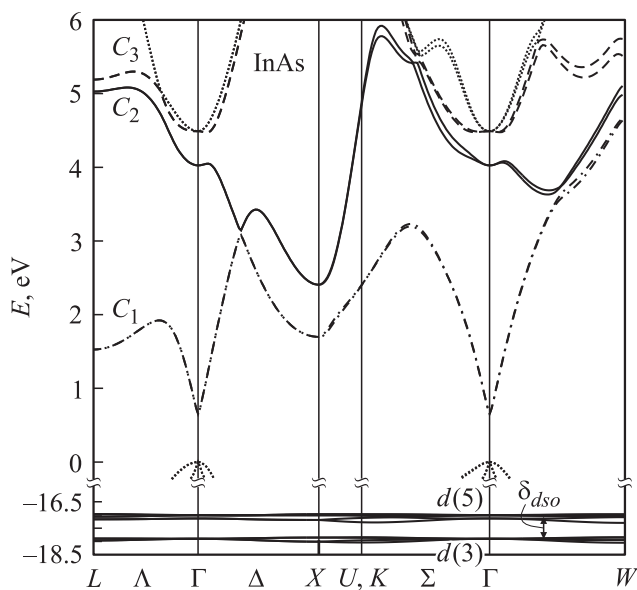


Рис. 1. Три нижние зоны проводимости C_1 , C_2 , C_3 и остовные d -зоны арсенида индия ($d(5)$ и $d(3)$).

Таблица 1. Основные параметры разложения $\epsilon_2(E)$ *InAs*: полуширина H_j (эВ), сила осциллятора f_j , энергия максимума E_j (эВ), а также энергии E_{CV} (эВ) максимумов и ступенек некоторых теоретических межзонных и возможных экситонных переходов. Звездочкой обозначены энергии E_{CV} , полученные не по расчетам зон, а по экспериментальным данным запрещенной зоны [36-39] и положения *d*-зон [35]

j	H_j	$f_j \cdot 10^{-2}$	E_j	Энергия E_{CV} и тип перехода	j	H_j	$f_j \cdot 10^{-2}$	E_j	Энергия E_{CV} и тип перехода
1	0.34	0.58	18.06	18.14*, $\Gamma(3, 1)$	8	0.91	10	21.45	21.7, $ME(p, 5, 2)$
2	0.33	1.7	18.49	18.45*, $L(5, 1)$					21.8, $ME(sh, 3, 2)$
3	0.34	3.0	18.84	18.8*, $X(5, 1)$					21.7, $d(5) \rightarrow C_2$
4	0.34	3.0	19.22	19.37*, $L(3, 1)$ 19.3, $X(5, 2)$	9	0.94	8.6	22.40	22.8, $ME(p, 5, 3)$
5	0.43	4.7	19.62	19.62*, $X(3, 1)$ 19.9, $ME(p, 5, 1)$					22.6, $ME(p, 3, 2)$
6	0.61	5.2	20.1	20.1, $X(3, 2)$ 20.8, $ME(p, 3, 1)$ 19.9, $d(5) \rightarrow C_1$	10	1.37	9.1	23.37	22.8 $d(5) \rightarrow C_3$
7	0.70	4.8	20.7	20.9, $ME(sh, 5, 2)$ 20.8, $d(3) \rightarrow C_1$					22.6, $d(3) \rightarrow C_2$
					11	1.47	2.8	26.0	
					12	1.93	4.7	29.1	
					13	1.94	5.5	30.2	

(300 К) [14]. Заявленное в работе [16] разрешение по энергии составляет 0.01 эВ, в [17] — 0.04 эВ, в [14] — 0.1 эВ. Так как данные по спектру отражения в работе [16] приведены в относительных единицах, то для их нормировки мы использовали значение спектра отражения, полученное заранее по известным $\epsilon_1(E)$ и $\epsilon_2(E)$ из работы [17]. Рассчитанная функция $\epsilon_2(E)$ состоит из шести максимумов (№ 1*, 3*, 5*, 6*, 8*,

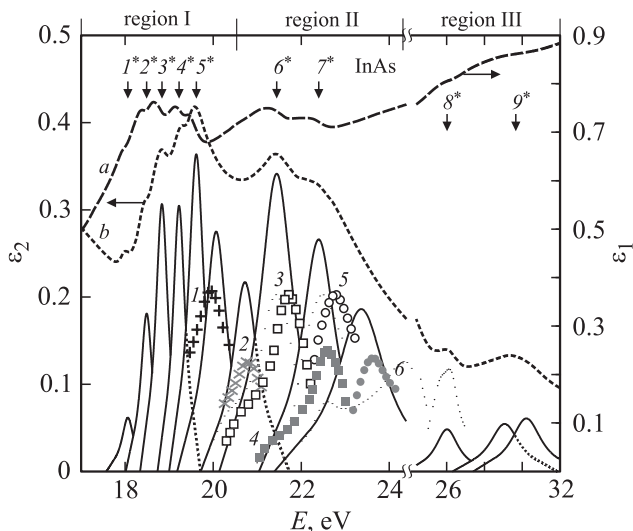


Рис. 2. Интегральные спектры $\epsilon_1(E)$ (a) и $\epsilon_2(E)$ (b) *InAs*, энергии максимумов (№ 1*, 3*, 5*, 6*, 8*, 9*) и ступенек (№ 2*, 4*, 7*) $\epsilon_2(E)$, полосы разложений $\epsilon_2(E)$ (сплошные кривые, интенсивность увеличена вдвое), кривые парциальных вкладов межзонных переходов с *d*-состояний индия в три НЗП: $d(5) \rightarrow C_1$ (1), $d(3) \rightarrow C_1$ (2), $d(5) \rightarrow C_2$ (3), $d(3) \rightarrow C_2$ (4), $d(5) \rightarrow C_3$ (5), $d(3) \rightarrow C_3$ (6).

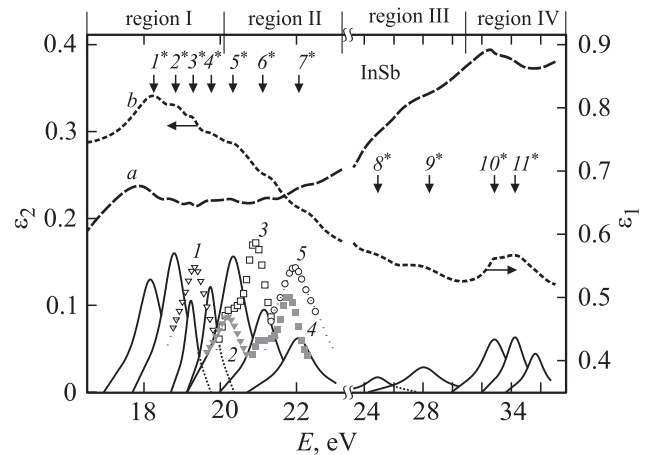


Рис. 3. Интегральные спектры $\epsilon_1(E)$ (a) и $\epsilon_2(E)$ (b) *InSb*, энергии максимумов (№ 1*, 11*) и ступенек (№ 2*–10*) $\epsilon_2(E)$, полосы разложений $\epsilon_2(E)$ (сплошные кривые, интенсивность увеличена вдвое), кривые парциальных вкладов межзонных переходов с *d*-состояний индия в три НЗП: $d(5) \rightarrow C_1$ (1), $d(3) \rightarrow C_1$ (2), $d(5) \rightarrow C_2$ (3), $d(3) \rightarrow C_2$ (4), $d(5) \rightarrow C_3$ (5).

9*) и трех ступенек (№ 2*, 4*, 7*) (рис. 2). После разложения получено 13 полос оптических переходов (сплошные кривые на рис. 2). В табл. 1 приведены их энергии максимумов и полуширин, силы осцилляторов, вычисленные по формуле (3), а также предполагаемая природа их возникновения. В качестве погрешности энергий максимумов ΔE можно принять заявленные в работах [14,16,17] разрешающие способности экспериментальных установок в соответствующей области энергий, а именно от 17 до 20 эВ $\Delta E \approx 0.01$ эВ, от 20 до 22.5 эВ $\Delta E \approx 0.04$ эВ, от 22.5 до 32 эВ $\Delta E \approx 0.1$ эВ.

Таблица 2. Основные параметры разложения $\varepsilon_2(E)$ InSb: полуширина H_j (эВ), сила осциллятора f_j , энергия максимума E_j (эВ), а также энергии E_{CV} (эВ) теоретических межзонных и возможных экситонных переходов (энергии E_{CV} ступенек приведены в скобках). Звездочкой обозначены энергии E_{CV} , полученные не по расчетам зон, а по экспериментальным данным запрещенной зоны [36–39] и положения d -зон [35]

j	H_j	$f_j \cdot 10^{-2}$	E_j	Энергия E_{CV} и тип перехода	j	H_j	$f_j \cdot 10^{-2}$	E_j	Энергия E_{CV} и тип перехода
1	0.85	3.8	18.17	18.03*, $L(5, 1)$ 18.18*, $\Gamma(3, 1)$					20.3, $d(3) \rightarrow C_1$ (20.4), $d(5) \rightarrow C_2$
2	0.76	4.3	18.80	18.87*, $L(3, 1)$ 18.9*, $X(5, 1)$ 19.0, $X(5, 2)$ 19.4, $ME(p, 5, 1)$	6	0.81	3.1	21.16	21.9, $ME(p, 3, 2)$ 21.0, $d(5) \rightarrow C_2$ (21.2), $d(3) \rightarrow C_2$
					7	0.94	2.4	22.05	22.0, $d(5) \rightarrow C_3$ 21.9, $d(3) \rightarrow C_2$
3	0.37	1.4	19.23	19.3, $d(5) \rightarrow C_1$					
4	0.43	1.9	19.74	19.74*, $X(3, 1)$ 19.8, $X(3, 2)$ 20.3, $ME(p, 3, 1)$ 20.4, $ME(sh, 5, 2)$	8	1.9	1.5	24.9	
					9	2.6	4.0	28.1	
5	0.84	5.0	20.35	21.0, $ME(p, 5, 2)$ 21.2, $ME(sh, 5, 2)$	10	2.0	7.6	32.87	
					11	1.5	6.3	34.26	
					12	1.4	4.1	35.64	

Полученные значения сил осцилляторов находятся в интервале 0.006–0.10. Из упоминаемых работ лишь в работе [14] заявлена погрешность данных по интенсивности $\sim 20\%$. Так как в работе [14] измерения проводили на поликристаллических пленках, а в [16,17] — на монокристаллах, то погрешности по интенсивности в них должны быть заметно ниже. Также после выделения всех полос переходов среднее значение остатка составило $\sim 10\%$ от интенсивности полос. Таким образом, можем ориентировочно принять, что погрешность сил осцилляторов в областях I и II составила $\sim 20\%$, в областях III и IV — $\sim 30\text{--}40\%$.

В области I первая полоса, вероятнее всего, сформирована экситонными переходами $\Gamma(3, 1)$ ($E_{CV} = 18.14$ эВ, $E_{\text{bind}} \approx 0.08$ эВ). В поддержку этого варианта может служить то, что НЗП в центре ЗБ имеет не полностью s -тип, а содержит также в небольшом количестве вклады p -состояний [8]. Поэтому вместо ожидаемых запрещенных экситонных мы получаем частично-разрешенные переходы, интенсивность которых заметно выше запрещенных [24]. При формировании четвертой и пятой полос участвуют не только экситонные переходы в точках $L(3, 1)$ и $X(3, 1)$, но и переходы $X(5, 2)$ и $ME(p, 5, 1)$, что объясняет более высокую интенсивность полосы № 4 (№ 5), чем № 2 (№ 3). Для полос переходов при больших энергиях количество вкладов различной природы увеличивается. Начиная с шестой, полуширины полученных осцилляторов становятся существенно больше, чем у предыдущих, что чаще свойственно для межзонных переходов.

В области II в большинстве случаев энергии максимумов выделенных полос и соответствующие энергии максимумов межзонных переходов оказываются смещен-

ными на ~ 0.4 эВ. Это не связано с погрешностью в расчетах зон проводимости, так как после их смещения на δ_{sc} погрешность составила ~ 0.2 эВ, что заметно меньше разности в 0.4 эВ. Поэтому разумно предположить, что такое отклонение связано с существованием метастабильных экситонов в области от ~ 20 до ~ 24 эВ с энергией связи ~ 0.4 эВ, связанных с максимумами или ступеньками в межзонных переходах $d \rightarrow C_2$ и $d \rightarrow C_3$.

При $E > 24$ эВ интенсивность спектра $\varepsilon_2(E)$ падает в ~ 2 раза, а кривая состоит из двух широких максимумов. Как уже отмечалось, теоретические расчеты переходов выше четвертой НЗП получаются с большим количеством ложных структур и завышенной интенсивностью, поэтому сложно говорить о природе полос переходов в данной области энергий.

3.2. InSb

Расчеты проводили на основе экспериментальных спектров отражения (300 К, $E < 23$ эВ) [13,15] и поглощения (300 К, $E > 23$ эВ) [14] (рис. 3). Заявленное разрешение в работе [15] составляет 0.01 эВ, в [14] — 0.1 эВ. Как и в случае с InAs, данные по спектру отражения в работе [15] приведены в относительных единицах. К сожалению, прямых эллипсометрических измерений в данной области для InSb нет, поэтому нам пришлось ориентироваться на спектр отражения работы [13] и $R(E)$, рассчитанный по известным $\varepsilon_1(E)$ и $\varepsilon_2(E)$ [17] для InAs. Итоговая кривая $\varepsilon_2(E)$ содержит два максимума (№ 1* и 11*) и девять ступенек (№ 2*–10*) (рис. 3). Усовершенствованным беспараметрическим методом ОДА получено двенадцать полос

переходов (сплошные кривые на рис. 3). В табл. 2 приведены их энергии максимумов и полуширин, силы осцилляторов, а также предполагаемая природа их возникновения. Погрешность энергий максимумов в областях I и II составляет $\Delta E \approx 0.01$ эВ, в областях III и IV — $\Delta E \approx 0.1$ эВ. Значения f_j находятся в интервале 0.014–0.076. Как и в случае InAs, погрешность значений сил осцилляторов в областях III и IV ориентировочно составила ~ 30 –40%, в областях I и II ~ 20 –30%.

Полоса № 1 InSb значительно шире, чем у InAs, и содержит несколько неразрешенных экситонных переходов. В данном случае это $L(5, 1)$ и $\Gamma(3, 1)$ ($E_{CV} = 18.18$ эВ). Полоса № 2 содержит переходы $L(3, 1)$, $X(5, 1)$, $X(5, 2)$ и $ME(p, 5, 1)$ (по аналогии с InAs сила связи метастабильных экситонов составляет ~ 0.4 эВ), № 3 — межзонные переходы $d(5) \rightarrow C_1$. В области энергии переходов 19.5–23 эВ полосы переходов сформированы межзонными переходами и метастабильными экситонами. Аналогично кристаллу InAs, природа полос переходов в области III неясна из-за больших погрешностей в теоретических расчетах. Область IV соответствует межзонным и экситонным переходам с более глубоких d -зон сурьмы. К сожалению, разрешения, с которыми получены данные, не позволяют с достаточной уверенностью провести теоретический анализ трех полученных полос переходов.

4. Заключение

В настоящей работе рассчитаны диэлектрические функции кристаллов InAs и InSb в области переходов с остовных d -уровней в интервале энергий 15–40 эВ. Спектры $\epsilon_2(E)$ разложены на элементарные 13 (InAs) и 12 (InSb) компонент, определены энергии их максимумов и полуширин, силы осцилляторов. Значения f_j для InAs находятся в интервале 0.006–0.10, для InSb — 0.014–0.076. Теоретически рассчитаны остовные d -зоны обоих соединений и межзонные переходы из них в три нижние зоны проводимости с учетом поправки до экспериментальных значений запрещенных зон и положений d -уровней (3.26 (InAs) и 3.05 эВ (InSb)). В области энергий переходов от 17 до 23–24 эВ предположено существование экситонных переходов в точках Γ , X , L ЗБ, а также связанных с максимумами и ступеньками в межзонных переходах с энергией связи ~ 0.4 эВ.

Список литературы

- [1] B.D. Malone, M.L. Cohen. J. Phys.: Condens. Matter, **25**, 105503 (2013).
- [2] В.В. Соболев, Д.А. Перевошиков. ФТП, **49**, 584 (2015).
- [3] S. Namjoo, A.S.H. Rozatian, I. Jabbari, P. Puschnig. Phys. Rev. B, **91**, 205205 (2015).
- [4] С.Е. Александров, Г.А. Гаврилов, А.А. Капралов, Г.Ю. Сотникова. ПЖТФ, **50** (5), 81 (2016).
- [5] В.В. Соболев. *Оптические свойства и электронная структура неметаллов. Т. 2. Моделирование интегральных спектров элементарными полосами* (М.—Ижевск, изд-во Института компьютерных исследований, 2012).
- [6] В.В. Соболев. *Оптические фундаментальные спектры соединений A^3B^5* (Кишинев, Штиинца, 1979).
- [7] D.E. Aspnes, A.A. Studna. Phys. Rev. B, **27**, 985 (1983).
- [8] В.Д. Дымников. ФТП, **43**, 1957 (2001).
- [9] А.Н. Пихтин, Х.Х. Хегази. ФТП, **43**, 1301 (2009).
- [10] А.В. Бакулин, С.Е. Кулькова. Изв. вузов. Физика, **57** (7), 122 (2014).
- [11] M.O. Nestoklon, R. Benchamekh, P. Voisin. J. Phys.: Condens. Matter, **28**, 305801 (2016).
- [12] В.В. Соболев. *Оптические свойства и электронная структура неметаллов. Т. 1. Введение в теорию* (М.—Ижевск, Изд-во Института компьютерных исследований, 2012).
- [13] H.R. Philipp, H. Ehrenreich. Phys. Rev., **129**, 1550 (1963).
- [14] W. Gudat, E.E. Koch, P.Y. Yu, M. Cardona, C.M. Penchina. Phys. Status Solidi B, **52**, 505 (1972).
- [15] D.E. Aspnes, M. Cardona, V. Saile, M. Skibowski, G. Sprussel. Solid State Commun., **31**, 99 (1979).
- [16] M. Skibowski, G. Sprussel, V. Saile. Appl. Optics, **19**, 3978 (1980).
- [17] J. Barth, R.L. Johnson, M. Cardona, D. Fuchs, A.M. Bradshaw. Proc. 19th Int. Conf. Phys. Semicond. (Warsaw, Poland, 1988) v. 2, p. 885.
- [18] M. Cardona, N.E. Christensen, G. Fasol. Phys. Rev. B, **38**, 1806 (1988).
- [19] J. Wang, Y. Zhang, L.-W. Wang. Phys. Rev. B, **92**, 045211 (2015).
- [20] A. Cakan, C. Sevik, C. Bulutay. J. Phys. D: Appl. Phys., **49**, 085104 (2016).
- [21] F. Bechstedt. *Many-body approach to electronic excitations. Concepts and applications* (Berlin, Springer Verlag, 2015).
- [22] S. Sharma, J.K. Dewhurst, C. Ambrosch-Draxl. Phys. Rev. Lett., **95**, 136402 (2005).
- [23] N.N. Anua, R. Ahmed, A. Shaari, M.A. Saeed, B.U. Haq, S. Goumri-Said. Semicond. Sci. Technol., **28**, 105015 (2013).
- [24] В.В. Соболев, В.В. Немошкаленко. *Методы вычислительной физики в теории твердого тела. Электронная структура полупроводников* (Киев, Наук. думка, 1988).
- [25] В.В. Соболев, В.Вал. Соболев, Д.В. Анисимов. ФТП, **50**, 30 (2016).
- [26] A.I. Kalugin, V.V. Sobolev. Phys. Rev. B, **71**, 115112 (2005).
- [27] V.Val. Sobolev, V.V. Sobolev. Semicond. and Semimet., **79**, 201 (2004).
- [28] В.В. Соболев, Д.А. Мерзляков, В.Вал. Соболев. ЖПС, **83**, 552 (2016).
- [29] S. Adachi. Phys. Rev. B, **35**, 7454 (1987).
- [30] T.J. Kim, S.Y. Hwang, J.S. Byun, M.S. Diware, J.Y. Kim, Y.D. Kim. J. Korean Phys. Soc., **61**, 1821 (2012).
- [31] R.O. Jones. Rev. Mod. Phys., **87**, 897 (2015).
- [32] J.P. Perdew, A. Ruzsinszky, G.I. Csonka, O.A. Vydrov, G.E. Scuseria, L.A. Constantin, X. Zhou, K. Burke. Phys. Rev. Lett., **100**, 136406 (2008).
- [33] A. Gulans, S. Kontur, Ch. Meisenbichler, D. Nabok, P. Pavone, S. Rigamonti, S. Sagmeister, U. Werner, C. Draxl. J. Phys.: Condens. Matter, **26**, 363202 (2014).
- [34] L. Ley, R.A. Pollak, F.R. McFeely, S.P. Kowalczyk, D.A. Shirley. Phys. Rev. B, **9**, 600 (1974).

- [35] N.J. Shevchik, J. Tejada, M. Cardona. *Phys. Rev. B*, **9**, 2627 (1974).
- [36] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. *J. Appl. Phys.*, **89**, 5815 (2001).
- [37] *Landolt–Börnstein — Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik*, ed. by O. Madelung, M. Schultz, H. Weiss (Heidelberg, Springer, 1982) v. 3, pt 17a.
- [38] *Landolt–Börnstein — Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik*, ed. by O. Madelung, M. Schultz, H. Weiss (Heidelberg, Springer, 1987) v. 3, pt 22a.
- [39] *Landolt–Börnstein Database (Springer Materials)*, ed. by O. Madelung, A. Goldmann, E.-E. Koch (Berlin, Springer, 1989).

Редактор Г.А. Оганесян

Complex structure of the optical transitions from the core *d*-states of InAs and InSb crystals

V.V. Sobolev, D.A. Perevoshchikov

Udmurt State University,
426034 Izhevsk, Russia

Abstract The permittivity spectra of InAs and InSb crystals were decomposed by improved unparametrical unified Argand diagram method in the region from 15 to 40 eV into thirteen and twelve separate components correspondingly with their three main parameters: energy of maxima and half-width and oscillator strengths also which are in the 0.006–0.10 (InAs) and 0.014–0.076 (InSb) intervals. The permittivity spectra were preliminarily calculated on the base of the experimental reflectivity and absorption spectra using method of Kramers–Kronig integral relations. The nature of transition bands were supposed using the models of interband and exciton transitions.