

Спектры инфракрасного отражения пленок топологического изолятора $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2, 0.34$) на подложке ZnTe/GaAs и колебательные моды многослойных структур

© Н.Н. Новикова¹, В.А. Яковлев¹, И.В. Кучеренко^{2,†}, В.С. Виноградов², Ю.А. Алещенко^{2,4},
А.В. Муратов², G. Karczewski³, S. Chusnutdinov³

¹ Институт спектроскопии Российской академии наук,
108840 Москва, Троицк, Россия

² Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

³ Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,
PL-02668 Warsaw, Poland

⁴ Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,
115409 Москва, Россия

[†] E-mail: kucher@sci.lebedev.ru, vvs@sci.lebedev.ru

(Получена 8 июня 2017 г. Принята к печати 15 июня 2017 г.)

Измерены спектры коэффициента отражения пленок топологического изолятора $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2, 0.34$), выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке ZnTe/GaAs. Измерения проводились в диапазоне $12-2500\text{ см}^{-1}$ при комнатной температуре. Методом дисперсионного анализа определены частоты поперечных оптических фононов, плазменные частоты, высокочастотные диэлектрические проницаемости и толщины слоев. В квазистатическом приближении рассчитаны частоты интерфейсных мод четырехслойной структуры в функции параметра перекрытия χ_1 ($0 \leq \chi_1 \leq 1$). Параметр описывает степень перекрытия двух интерфейсных мод, локализованных на плоскостях, ограничивающих слой справа и слева. Наличие в структуре взаимодействующих интерфейсных мод делает ее спектр отличным от суммы спектров составляющих ее компонент. Эти отличия проявляются в эксперименте. Обсуждаются условия взаимодействия интерфейсных мод с ИК излучением.

DOI: 10.21883/FTP.2018.01.45316.8593

1. Введение

Узкозонные сплавы типа IV–VI, такие как PbSnSe, PbSnTe, вызывали большой интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения в 70-х–80-х годах прошлого века. Изменяя концентрацию Sn и температуру среды, можно варьировать величину запрещенной зоны в L -точке зоны Бриллюэна, достигая бесщелевого состояния. Зависимость E_g от температуры и состава (x) сплавов PbSnSe приведена в формуле [1]:

$$E_g \text{ (eV)} = 0.13 + 4.5x \cdot 10^{-4}T \text{ (K)} - 0.89x. \quad (1)$$

Согласно формуле, значения E_g могут быть как положительными, так и отрицательными. Это означает, что в первом случае волновые функции, описывающие зону проводимости и валентную зону в L -точке, имеют симметрию L^- и L^+ соответственно. Во втором случае происходит инверсия зон, и их симметрии соответствуют L^+ (зона проводимости) и L^- (валентная зона).

Полупроводники типа IV–VI $Pb_{1-x}Sn_xSe$ в отличие от $Pb_{1-x}Sn_xTe$ не образуют непрерывный ряд твердых растворов. При комнатной температуре кристаллы с содержанием олова $x < 0.43$ кристаллизуются в кубической фазе типа NaCl, а кристаллы с $x > 0.8$ образуют фазу с пониженной симметрией — орторомбическую решетку типа B29 [1,2]. Исследования фононных спектров кристаллов $Pb_{1-x}Sn_xSe$ в кубической фазе с $x = 0, 0.07$

и 0.2 проводились методом рассеяния медленных нейтронов [3,4] в интервале температур 300–10 К. В этих соединениях температура структурного фазового перехода лежит в отрицательной области шкалы Кельвина. В кристалле с $x = 0.41$ наблюдался структурный фазовый переход, начало которого соответствовало скачку сопротивления на 5 порядков в интервале температур 250–170 К при изменении концентрации носителей от $3 \cdot 10^{18}$ до $7.2 \cdot 10^{18}\text{ см}^{-3}$ [5]. Теория предсказывает, что температура фазового перехода T_c плавно уменьшается при увеличении концентрации свободных носителей в результате электрон–ТО фононного взаимодействия [6–8]. Кроме того, при достижении бесщелевого состояния ($E_g = 0$) может наблюдаться размягчение ТО фонона. Мы наблюдали методом рассеяния медленных нейтронов уменьшение частоты ТО фонона в монокристалле с $x = 0.20$ при $\sim 100\text{ К}$, соответствующей точке инверсии зон [5].

Сравнительно недавно, в 2012 г. [9] при исследовании спектров отражения методом ARPES обнаружилось, что на поверхности соединений PbSnSe с инверсным расположением зон в объеме на поверхности имеются состояния с дираковским спектром. Такие соединения в настоящее время стали относить к топологическим изоляторам.

Цель настоящей работы — исследование пленок $Pb_{1-x}Sn_xSe$ с $x = 0.2$ (нормальная зонная структура) и 0.34 (инвертированная зонная структура) методом ИК

спектроскопии и определение частот поперечных оптических фононов в зависимости от концентрации олова. Проведены предварительные исследования спектров нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО). Пленки были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке ZnTe/GaAs. Толщина буферного слоя ZnTe составляла 3–4 мкм. Насколько нам известно, такие измерения на пленках типа IV–VI проводятся впервые.

2. Образцы и методика измерений

Измерения коэффициента отражения проводились в спектральном диапазоне $50\text{--}2500\text{ см}^{-1}$ на фурье-спектрометре фирмы Брукер IFS66V/S при падении излучения, близком к нормальному при комнатной температуре. Спектральное разрешение составляло 1.5 см^{-1} , а также на фурье-спектрометре Bruker IFS 125HR с разрешением до 1 см^{-1} в интервале волновых чисел $12\text{--}1000\text{ см}^{-1}$ ($833\text{--}10\text{ мкм}$). В качестве детектора использовался охлаждаемый жидким гелием кремниевый болометр HDL-5 (Infrared Laboratories, Inc.) с фильтрами с отсечкой при 800 и 60 см^{-1} , предотвращающими попадание на чувствительный элемент болометра фонового излучения от нагретых до комнатной температуры частей спектрометра. В измерениях использовались универсальный широкополосный многослойный светоделитель, а также светоделитель из майлара толщиной 75 мкм на самый дальний ИК диапазон. Измеренные спектры нормировались на спектр отражения золотого зеркала.

Исследованные гетероструктуры $Pb_{1-x}Sn_xSe/ZnTe$ были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) из ультрачистых источников Zn(7N), Te(7N), Se(7N), Sn(7N) и Pb(6N). Установка МЛЭ состоит из двух ростовых камер с ультравысоким вакуумом ($10^{-9}\text{--}10^{-10}$ Торр), соединенных между собой высоковакуумным рукавом. Вначале толстый (4 мкм) нелегированный буферный слой ZnTe осаждался на очищенную от окислов поверхность подложки (100) GaAs. Температура подложки составляла 360°C . Затем во второй камере слой $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2\text{--}0.4$) толщиной $\approx 700\text{ нм}$ осаждался на буферный слой ZnTe. Перед ростом буферный слой скалывался и травился в 0.01% растворе бромин-метанола. Температура роста слоев составляла 340°C .

3. Результаты измерений и их обсуждение

Параметры оптических фононов и плазмонов для пленок $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2$ и 0.34) определялись из дисперсионного анализа спектра отражения. Экспериментальный спектр сравнивался с расчетом, использующим формулы Френеля для отражения от многослойной структуры. Частотная зависимость диэлектрической

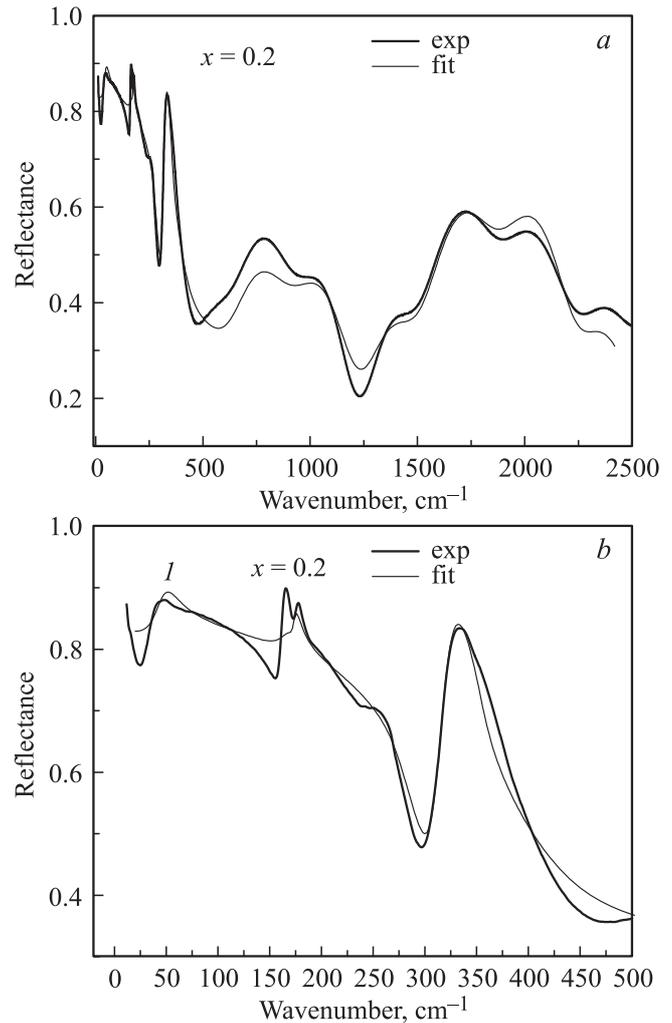


Рис. 1. *a* — спектр отражения пленки $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ в интервале $30\text{--}2500\text{ см}^{-1}$, осажженной на подложку ZnTe/GaAs. Эксперимент и расчет; *b* — спектр отражения пленки $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ в интервале $12\text{--}500\text{ см}^{-1}$, осажженной на подложку ZnTe/GaAs. Эксперимент и расчет.

проницаемости каждого слоя была представлена в виде суммы высокочастотной диэлектрической проницаемости ϵ_∞ , вклада свободных носителей (формула Друде) и затухающего лоренцевского осциллятора:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\omega_\tau} + \frac{S^2}{(\omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma)} \right). \quad (2)$$

Здесь ω_{TO} — частота ТО фонона, S — сила осциллятора, γ — затухание поперечной (ТО) моды, ω_p — плазменная частота, ω_τ — частота соударений свободных носителей. Эти параметры подбирались таким образом, чтобы получить наилучшее согласие с экспериментом. Для этого использовалась программа SCOUT [10,11].

На рис. 1, *a, b* и 2, *a, b* представлены спектры ИК отражения (эксперимент и расчет) для пленок $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2$ и 0.34), выращенных на подложке ZnTe/GaAs. В пленке с $x = 0.2$ электронный спектр в L -точке при

$T = 300$ К является прямым, а в пленке с $x = 0.34$ инверсным, согласно формуле (1).

На рис. 1, *b* (полоса 1) видна низкочастотная полоса поперечных колебаний PbSnSe ($x = 0.2$) с максимумом при 47.7 см^{-1} , полоса ТО фонона ZnTe ($\omega_{\text{ТО}} = 176 \text{ см}^{-1}$) и линия с максимумом при 166 см^{-1} . Важно отметить, что на спектре отражения подложки (рис. 3) присутствуют только полосы ТО фононов ZnTe и GaAs. Возможно, эта линия в спектре отражения пленок связана с тонким слоем ZnTeSe, образовавшимся на границе пленка — ZnTe в результате диффузии Se. Сдвиг частоты в слое ZnTeSe в красную сторону на 12 см^{-1} может быть связан с деформацией растяжения из-за большого рассогласования постоянных решеток ZnTe и ZnSe. Такая же деформация наблюдалась в сверхрешетках ZnTe/ZnSe на границе слоев [12].

Но есть и другое объяснение, которое нам представляется более правильным: линия с максимумом при

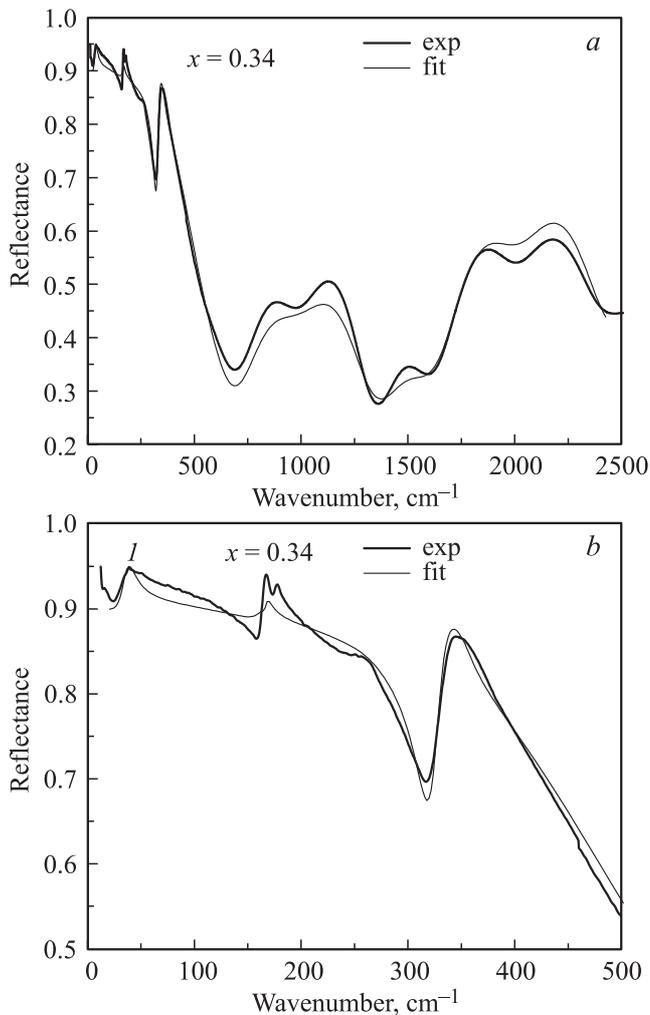


Рис. 2. *a* — спектр отражения пленки $\text{Pb}_{0.66}\text{Sn}_{0.34}\text{Se}$ в интервале $30\text{--}2500 \text{ см}^{-1}$, осажденной на подложку ZnTe/GaAs. Эксперимент и расчет. *b* — спектр отражения пленки $\text{Pb}_{0.66}\text{Sn}_{0.34}\text{Se}$ в интервале $12\text{--}500 \text{ см}^{-1}$, осажденной на подложку ZnTe/GaAs. Эксперимент и расчет.

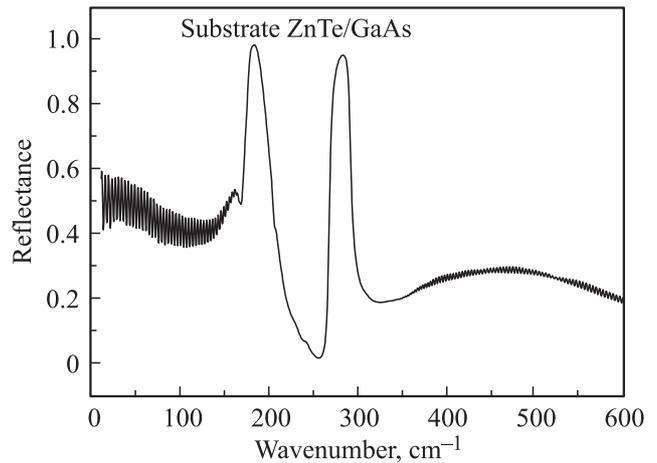


Рис. 3. Спектр отражения подложки ZnTe/GaAs.

$\approx 166 \text{ см}^{-1}$ связана с интерфейсной модой, которая, как будет показано в разд. 4, появляется на границе пленка — ZnTe (табл. 1, граница 2–3, частота ω_4). Наилучшее согласие с экспериментом выполняется для параметра $\chi_1 = e^{-0.015}$.

На спектре отражения пленки с $x = 0.34$ (рис. 2, *b* (полоса 1)) полоса ТО фонона PbSnSe с максимумом при 38 см^{-1} сдвинута в сторону меньших частот, что объясняется уменьшением частоты ТО фонона с ростом концентрации олова и приближением к структурному фазовому переходу, который при 300 К происходит при $x \approx 0.43$. Остальные линии в спектре имеют те же частоты, что и в пленке с $x = 0.2$. На спектрах отражения при частотах $500\text{--}2500 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1, *a* и 2, *a*) видны биения, связанные с интерференцией в слое PbSnSe и буферном слое ZnTe. Из этих спектров мы определяли толщины слоев и высокочастотные диэлектрические проницаемости. Эти параметры были использованы при подгонке низкочастотных спектров.

Параметры пленок ($x = 0.2$ и 0.34) и подложки ZnTe/GaAs, рассчитанные из дисперсионного анализа, представлены в табл. 2 и 3. Параметры $\omega_{\text{ТО}}$, S , γ , ω_p , ω_r имеют размерность см^{-1} . В табл. 4 представлены частоты ТО фононов в сплавах PbSnSe, измеренные методом рассеяния медленных нейтронов [5] и из спектров ИК отражения пленок. Как видно из таблицы, $\omega_{\text{ТО}} = 49$ и 37 см^{-1} в пленках с $x = 0.2$ и 0.34 соответственно.

Концентрации свободных носителей и их подвижности в пленках вычислялись с учетом значений плазменной частоты ω_p и параметра затухания ω_r [13,14]. Они составляют: $p = 4.3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $\mu = 650 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ ($x = 0.2$) и $p = 7.8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $\mu = 1000 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ ($x = 0.34$) для $m^* = 0.1m_0$, где m_0 — масса свободного электрона.

Объемные плазмон–ЛО фононные моды в слое ZnTe ω_- и ω_+ равны 48 и 208 см^{-1} соответственно (плазменная частота $\omega_p = 54.3 \text{ см}^{-1}$, $\omega_{\text{ЛО}} = 206 \text{ см}^{-1}$, $\omega_{\text{ТО}} = 168 \text{ см}^{-1}$, табл. 3). Расчет частот этих мод (ω_{\pm}) проводился по аналитической формуле, приведенной в [15,16]. Объемные плазмон–фононные моды пленки $\text{Pb}_{0.76}\text{Sn}_{0.34}\text{Se}$, согласно расчету, имеют частоты

Таблица 1. Зависимость частот колебательных мод четырехслойной структуры (1 — вакуум, 2 — PbSnSe, 3 — ZnTe, 4 — GaAs) от параметра $\chi_1 = \exp(-qd_1)$, где q^{-1} — длина локализации, d_1 — ширина слоя 2 (PbSnSe). В первой строке приведены частоты интерфейсных мод для случая $\chi_1 = 0$. Под значениями частот располагаются две цифры, которые обозначают номера слоев, прилегающих к данной границе. В нижней строке ($\chi_1 = 1$) расположены частоты мод разного типа. Это моды продольных колебаний слоев 2 и 3, расщепленные взаимодействием с собственными электронами — $L\pm$, а также частоты поперечных мод — T . В колонке ω_7 располагается частота единственной в этом случае интерфейсной моды. (частоты ω имеют размерность cm^{-1})

| χ_1 | ω_1 | ω_2 | ω_3 | ω_4 | ω_5 | ω_6 | ω_7 | ω_8 |
|---------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| 0 | 31.3 | 39185 | 39.186 | 176.3 | 185.4 | 283.5 | 519.0 | 575.0 |
| | 3-4 | 1-2 | 2-3 | 2-3 | 3-4 | 3-4 | 2-3 | 1-2 |
| 0.3 | 31.3 | 39.185 | 39.186 | 176.1 | 185.4 | 283.5 | 505.5 | 577.2 |
| 0.5 | 31.3 | 39.185 | 39.186 | 175.8 | 185.4 | 283.5 | 479.0 | 579.9 |
| 0.7 | 31.8 | 39.185 | 39.186 | 174.9 | 185.6 | 283.1 | 426.5 | 582.5 |
| 0.9 | 37.1 | 39.184 | 39.225 | 171.2 | 186.7 | 262.5 | 312.0 | 584.9 |
| $e^{-0.015}$ | 39.2 | 39.189 | 45.381 | 166.4 | 193.1 | 213.6 | 298.6 | 585.3 |
| $e^{-0.0135}$ | 39.2 | 39.189 | 45.579 | 163.9 | 191.0 | 209.0 | 297.2 | 585.3 |
| $e^{-0.01}$ | 39.1 | 39.188 | 46.053 | 151.7 | 184.3 | 203.6 | 294.5 | 585.5 |
| 1 | 0 | 39.185 | 40 | 47.6 | 177 | 202.0 | 290.0 | 585.9 |
| | | $L-, 2$ | $T, 2$ | $L-, 3$ | $T, 3$ | $L+, 3$ | $1-4$ | $L+, 2$ |

Таблица 2. Параметры пленки $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ и подложки (ω_{TO} , S , γ , ω_p , ω_r в cm^{-1})

| x | Слой | ω_{TO} | S | γ | ω_p | ω_r | ϵ_r | d , мкм |
|-----|------|---------------|-----|----------|------------|------------|--------------|-----------|
| | 0.2 | PbSnSe | 49 | 715 | 18 | 451.3 | 171 | 24.3 |
| | ZnTe | 176 | 296 | 4.6 | 34.2 | 26 | 9.65 | 3.44 |
| | GaAs | 262 | 827 | 21 | — | — | 11.6 | 420 |

Таблица 3. Параметры пленки $Pb_{0.66}Sn_{0.34}Se$ и подложки (ω_{TO} , S , γ , ω_p , ω_r в cm^{-1})

| x | Слой | ω_{TO} | S | γ | ω_p | ω_r | ϵ_r | d , мкм |
|-----|------|---------------|-----|----------|------------|------------|--------------|-----------|
| | 0.34 | PbSnSe | 37 | 836 | 7.6 | 574 | 130 | 26.5 |
| | GaAs | 262 | 827 | 21 | — | — | 11.6 | 420 |

Таблица 4. Частоты ТО фононов в сплавах PbSnSe ($x = 0-0.34$) при $T = 300$ К

| x | ω_{TO} , cm^{-1} | Данные экспериментов и теории |
|------|---------------------------|-----------------------------------|
| 0 | 54 | Теория [13] |
| 0.07 | 58 | Рассеяние медленных нейтронов [4] |
| 0.2 | 50 | Рассеяние медленных нейтронов [4] |
| | 49 | ИК отражение (наши данные) |
| 0.34 | 37 | ИК отражение (наши данные) |

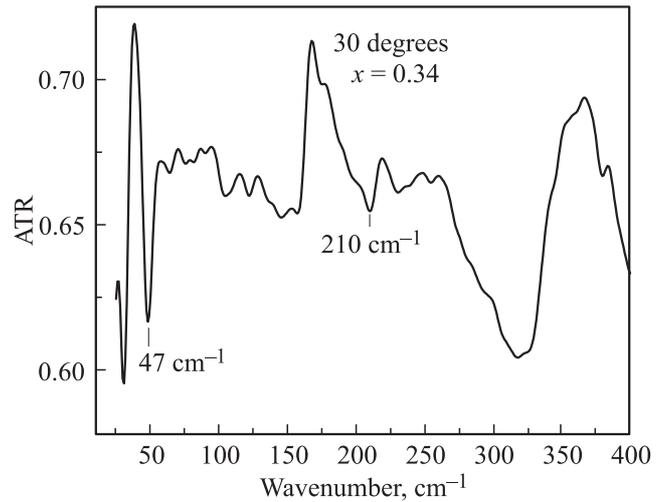


Рис. 4. Спектр НПВО (ATR) образца с $x = 0.34$ при угле падения света 30° .

590 (ω_+) и 34 (ω_-) cm^{-1} . Частота ЛО фонана принималась равной $140 cm^{-1}$ [17]. Плазмон-ЛО фононное взаимодействие в GaAs отсутствует из-за низкой частоты плазмонов. По данным предварительных измерений спектров НПВО (методика измерений описана в [18]), в пленке с $x = 0.34$ в p -поляризованном свете при угле падения 30° проявляются два минимума при частотах 210 и $48 cm^{-1}$, которые можно связать с плазмон-ЛО фононными модами ω_{\pm} в слое ZnTe (рис. 4). Эти данные находятся в удовлетворительном согласии с предсказанием теории (табл. 4, $\chi_1 = 1$, слои ω_4 и ω_6).

4. Колебательные моды многослойных структур

При попытке описать наблюдаемые спектры ИК отражения набором тех осцилляторов, которые входят в диэлектрические функции составляющих структуру веществ, не удалось воспроизвести некоторые его детали. Требовался учет дополнительных осцилляторов. Такие осцилляторы, в частности, могут появляться за счет интерфейсных мод, локализованных на границах между слоями. Нами был предпринят расчет частот таких мод в нескольких вариантах структур (трех- и четырехслойных). Расчет производился в квазистатическом приближении, когда переменное во времени и пространстве электрическое поле волны $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$ подчиняется уравнению $\text{div } \mathbf{D} = 0$, где $\mathbf{D}(\omega, \mathbf{r}) = \epsilon(\omega)\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$. Так как диэлектрические функции слоев считаем однородными, для потенциала ϕ ($\mathbf{E} = -\nabla\phi/\nabla\mathbf{r}$) получим уравнение $\Delta\phi = 0$. Будем считать, что волна $\phi \sim \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r})$ распространяется так, что компонента волнового вектора q_x направлена вдоль слоев, а q_z перпендикулярно слоям. Тогда из уравнения Пуассона следует, что $q_x^2 + q_z^2 = 0$, т.е. $q_z = \pm i|q_x| \equiv \pm iq$. Это означает, что для ϕ получа-

ется общее решение вида

$$\varphi \sim (A \exp(-qz) + B \exp(qz)) \exp(-iq_x x). \quad (3)$$

Будем считать, что самый левый полубесконечный слой является вакуумом. Решение в этом слое дается выражением (3) с $A = 0$, а самый правый слой состоит из GaAs, который также считается бесконечным в направлении $z \rightarrow \infty$. Решение в этом слое дается (3) с $B = 0$. Решение для внутренних слоев получается при $A \neq 0$, $B \neq 0$. Для определения коэффициентов A_i , B_i в каждом слое i используем условие непрерывности компонент электрического поля вдоль поверхности ($E_x = -\partial\varphi/\partial x$)

$$E_{xi} = E_{xk}, \quad (4)$$

где i и k — номера соседних слоев, а также условие непрерывности индукции для компонент поля, перпендикулярных поверхности ($E_z = -\partial\varphi/\partial z$),

$$\varepsilon(\omega)_i E_{xi} = E_{xk} \varepsilon(\omega)_k. \quad (5)$$

Получается система уравнений для коэффициентов A_i , B_i , условием разрешения которой является равенство нулю ее детерминанта. В случае трехслойной структуры (1 — вакуум, 2 — PbSnSe или ZnTe, 3 — GaAs) это условие имеет вид

$$(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3) + \chi^2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3) = 0, \quad (6)$$

где $\chi = \exp(-qd)$, d — ширина внутреннего слоя, $\varepsilon_i \equiv \varepsilon_i(\omega)$. Для четырехслойной структуры (1 — вакуум, 2 — PbSnSe, 3 — ZnTe, 4 — GaAs) аналогичное условие имеет вид

$$\begin{aligned} &(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)(\varepsilon_3 + \varepsilon_4) + \chi_1^2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)(\varepsilon_3 + \varepsilon_4) \\ &+ \chi_2^2(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)(\varepsilon_3 - \varepsilon_4) \\ &+ \chi_2^2 \chi_1^2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)(\varepsilon_3 - \varepsilon_4) = 0, \quad (7) \end{aligned}$$

где $\chi_1 = \exp(-qd_1)$, d_1 — ширина слоя 2, $\chi_2 = \exp(-qd_2)$, d_2 — ширина слоя 3. Так как компоненты волнового вектора излучения q_x , а следовательно, и q зависят от угла падения излучения на поверхность образца, а с другой — дефекты на поверхности образца могут влиять на величины q_x , q , т.е. величины χ , χ_1 , χ_2 нам точно не известны, уравнения (4), (5) решались во всем диапазоне изменения величин χ , χ_1 от χ , $\chi_1 = 0$ (qd , $qd_1 \rightarrow \infty$) до χ , $\chi_1 = 1$ (qd , $qd_1 \rightarrow 0$), χ_2 выражалось через χ_1 с помощью соотношения $\chi_2 = (\chi_1)^{d_2/d_1}$. Выражения для диэлектрических функций брались в виде $\varepsilon(\omega)_i = \varepsilon_{\infty i} + (\varepsilon_{0i} - \varepsilon_{\infty i}) / [1 - (\omega/\omega_{oi})^2] - \varepsilon_{\infty i}(\omega_{pi}/\omega)^2$. Чтобы избавиться от полюсов в уравнениях (6), (7), эти уравнения умножались на произведения $\Pi(\omega_i/\omega_{pi})^2 [1 - (\omega/\omega_{oi})^2]$. Получались алгебраические уравнения вида $\Phi(x, \chi) = 0$ для трехслойной структуры и $\Phi(y, \chi_1) = 0$ для четырехслойной. В первом случае получается уравнение 5-го порядка для безразмерной переменной $x = [\omega/(\omega_{02}\omega_{03})^{1/2}]^2$,

а во втором — уравнение 8-го порядка для переменной $y = [\omega/(\omega_{02}\omega_{03}\omega_{04})^{1/2}]^2$. Уравнения решались при следующих значениях параметров: PbSnSe — $\varepsilon_0 = 250$ [19], $\varepsilon_{\infty} = 26$, $\omega_0 = 40 \text{ см}^{-1}$, $\omega_p = 574 \text{ см}^{-1}$; ZnTe — $\varepsilon_0 = 9.6$, $\varepsilon_{\infty} = 7.5$, $\omega_0 = 177 \text{ см}^{-1}$, $\omega_p = 54.3 \text{ см}^{-1}$; GaAs — $\varepsilon_0 = 12.9$, $\varepsilon_{\infty} = 10.9$, $\omega_0 = 268 \text{ см}^{-1}$, $\omega_p = 0$; $d_1 = 0.8 \text{ мкм}$, $d_2 = 4 \text{ мкм}$.

Перед тем как обсуждать результаты расчетов и сравнивать их с данными эксперимента, отметим некоторые интересные свойства уравнений (6), (7). При $\chi = 0$ ($qd \rightarrow \infty$) для уравнения (6), $\chi_1 = 0$ ($qd_1 \rightarrow \infty$) для (7) эти уравнения превращаются соответственно в уравнения $(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3) = 0$ и $(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)(\varepsilon_3 + \varepsilon_4) = 0$. Каждая скобка $(\varepsilon_i + \varepsilon_{i+1}) = 0$ дает частоты сильно локализованных на границе ($i, i+1$) интерфейсных мод. Эти моды не зависят от мод на других границах. При χ , $\chi_1 = 1$ (qd , $qd_1 \rightarrow 0$) уравнения (6), (7) превращаются соответственно в уравнения $(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)\varepsilon_2 = 0$ и $(\varepsilon_1 + \varepsilon_4)\varepsilon_2\varepsilon_3 = 0$. Крайние слои (1–3 и 1–4) дают частоты интерфейсных мод, а внутренние слои — частоты продольных мод этих слоев, расщепленных взаимодействием с собственными электронами. Интересно, что в данном случае две половинки волновой функции локализованного состояния, экспоненциально спадающие на \pm , разносятся в пространстве на расстояние нескольких слоев (вместо того, чтобы быть прикрепленными к одной границе, как это было бы в случае двухслойной структуры). Эта ситуация похожа на ту, которая была обнаружена при анализе свойств структур с майорановскими фермионами и названная „телепортацией“.

Рассчитанные частоты мод ω_i четырехслойной структуры в зависимости от параметра χ_1 (назовем его параметром перекрытия „волновых функций“ интерфейсных состояний, локализованных на соседних границах) приведены в табл. 1.

В верхней строке ($\chi_1 = 0$) приведены значения частот интерфейсных мод, локализованных на различных границах. Положение границы отмечается двумя цифрами, номерами двух слоев, прилегающих к границе слева и справа. Эти цифры помещены в той же строке под значениями частот. В нижней строке ($\chi_1 = 1$) приведены значения частот продольных (L) колебаний поляризации в слоях 2 и 3, значки + и – обозначают компоненты, возникающие вследствие взаимодействия продольных колебаний слоев с собственной электронной плазмой. В колонке ω_7 помещена частота единственной в этом случае интерфейсной моды, связанной с взаимодействием слоев 1 и 4 (см. уравнения (6), (7) в случае χ , $\chi_1 = 1$). Все эти моды не взаимодействуют ни между собой, ни с падающим перпендикулярно плоскости излучением. Также в этой строке помещены значения частот, соответствующих полюсам диэлектрических функций (столбцы ω_1 , ω_3 , ω_5). Эти моды отмечены буквой T . Из таблицы видно, что имеются области изменения параметра χ_1 , где частоты мод изменяются плавно, а есть такие его значения, вблизи которых они изменяются резко (см., например, столбцы ω_4 и ω_6). Чтобы

качественно объяснить такое поведение мод, рассмотрим одну из мод, которая возникает на границе $i-k$ и имеет частоту ω_{ik} . При $\chi_1 = 0$ она подчиняется уравнению $(\varepsilon_i(\omega_{ik}) + \varepsilon_k(\omega_{ik})) = 0$. Его решения можно трактовать как результат пересечения кривой, задаваемой функцией от ω^2 в левой части уравнения, с горизонтальной прямой, совпадающей сначала с осью абсцисс. При $\chi_1 \neq 0$ она смещается вниз и, может быть, немного наклоняется. Возникают новые точки пересечения — измененные решения уравнения. Если прямая пересекает дисперсионные кривые в тех областях, где они идут почти вертикально (например, вблизи частот поперечных фононов ω_{0i} , ω_{0k}), то решения изменяются плавно. Если же кривая дисперсии идет почти горизонтально (интервал между частотами ω_{0i} , ω_{0k}), то частота решения изменяется быстро, почти скачком (см. например, колонка ω_4 таблицы).

Займемся теперь сравнением расчетных данных с экспериментальными. Рассмотрим прежде всего моду $\sim 166 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1, *b* и 2, *b*). Ее частота не входит в набор частот изолированных слоев и является результатом взаимодействия между ними. Близкие по величине частоты содержатся в колонке ω_4 и строках со значениями параметра $\chi_1 = e^{-0.015}$ и $e^{-0.0135}$. На этих же рисунках при частоте $\sim 250 \text{ см}^{-1}$ имеется „полочка“, которая не описывается кривыми дисперсионного анализа. Близкие по частоте моды содержатся в колонке ω_6 . Предварительные результаты измерений спектров при наклонном падении в 30° p -поляризованного излучения (метод НПВО, [17]) в образцах с $x = 0.34$ (рис. 4) показывают, что при частоте $\sim 47 \text{ см}^{-1}$ имеется глубокий провал. Его положение совпадает с частотами мод в колонке ω_3 , (строки 7–8). Из рассмотрения эволюции частот в колонках ω_2 , ω_3 видно, что обсуждаемая мода возникает скачком из двух почти вырожденных при увеличении параметра перекрытия χ_1 . При ее формировании может иметь значение также резонанс с плазмон-фононной модой $L-$, 3. Вернемся теперь к моде $\sim 166 \text{ см}^{-1}$, измеренной при падении света, близком к нормальному. Из величины показателя экспоненты параметра χ_1 можно определить угол падения излучения. Положив $qd_1 = 2\pi\lambda^{-1} \sin \theta d_1 = 0.0135$, где θ — угол между нормалью и волновым вектором падающего излучения. Подставляя в последнее равенство частоту излучения $\lambda^{-1} \sim 200 \text{ см}^{-1}$ и ширину слоя $2 - d_1 = 0.8 \text{ мкм}$, получим величину угла $\theta = 8^\circ$. При проведении эксперимента угол θ составляет $10 \pm 3^\circ$. Обе величины неплохо согласуются друг с другом.

5. Заключение

Из спектров ИК отражения и дисперсионного анализа были определены частоты ТО фононов пленок $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0.2$ и 0.34). Показано, что частота „мягкой“ моды заметно уменьшается при увеличении концентрации олова. Используя значения сил осциллятора для ТО фононов и величины ε_∞ (табл. 2 и 3), мы оценили

величины статической диэлектрической проницаемости. Согласно оценке, усредненные значения $\varepsilon_0 = 235$ и 450 для пленок с $x = 0.2$ и 0.34 соответственно. Частоты продольных оптических фононов, рассчитанные из соотношения Лиддейна–Сакса–Теллера, составляют 150.2 ($x = 0.2$) и 150.3 см^{-1} ($x = 0.34$). Эти данные представляют интерес, так как комбинационное рассеяние света 1-го порядка запрещено в структурах типа $NaCl...$

В квазистатическом приближении рассчитаны частоты интерфейсных мод исследуемой четырехслойной структуры в функции параметра перекрытия χ_1 ($0 \leq \chi_1 \leq 1$). Этот параметр описывает степень перекрытия двух кусков „волновых функций“, прилежащих к плоскостям, ограничивающим слой справа и слева. Чем больше χ_1 , тем больше связь „волновых функций“ с состояниями своего слоя и меньше с состояниями соседних слоев и, следовательно, тем меньше степень локализации интерфейсных мод. В интервале $0 < \chi_1 \leq 1$ существуют интерфейсные состояния с различной степенью локализации и частотами, отличающимися от частот, характеризующих вещество слоя. Часть этих состояний со значением параметра χ_1 вблизи единицы взаимодействует с ИК излучением. Моды с рассчитанными частотами 47 , 166 и 209 см^{-1} наблюдались в эксперименте. Используя значения частоты и параметра χ_1 можно также рассчитать абсолютную величину и наклон волнового вектора излучения. Рассчитанные величины удовлетворительно согласуются с экспериментальными.

В ИК измерениях использовано оборудование ЦКП ФИАН.

Ю.А. Алещенко благодарит за поддержку Программу повышения конкурентоспособности НИЯУ МИФИ.

Исследования в Польше были частично поддержаны Национальным и Научным Центром (гранты № DEC-2012/06/A/ST3/00247 и DEC-2014/14/M/ST3/00484).

Список литературы

- [1] A.J. Strauss. Phys. Rev., **157**, 608 (1967).
- [2] L.C. Woolley, O. Berolo. Mat. Res. Bull., **3**, 445 (1968).
- [3] A. Okasaki. J. Proc. Soc. Jpn, **13**, 1151 (1958).
- [4] Zhiting Tian, Jivtesh Garg, Keivan Esfarjani, Takuma Shiga, Junichiro Shiomi, Gang Chen. Phys. Rev. B, **85**, 184303 (2012)
- [5] Л.К. Водопьянов, И.В. Кучеренко, А.П. Шотов, Р. Шерм. Письма ЖЭТФ, **27**, 101 (1978).
- [6] Б.А. Волков, И.В. Кучеренко. В.Н. Моисеенко, А.П. Шотов. Письма ЖЭТФ, **27**, 396 (1978).
- [7] K.L.I. Kobayashi, Y. Kato, Y. Katayama, K.F. Komatsubara. Phys. Rev. Lett., **37**, 772 (1976).
- [8] K.L.I. Kobayashi, Y. Kato, Y. Katayama, K.F. Komatsubara. Sol. St. Commun., **17**, 875 (1975).
- [9] P. Dziawa, B.J. Kowalski, K. Dybko, R. Buczko, A. Szczerbakow, M. Szot, E. Tusakowska, T. Balasubramanian, B.M. Wojek, M.H. Berntsen, O. Tjernberg, T. Story. Nature Materials, **11**, 1023 (2012).
- [10] W. Theiß. The SCOUT through CHAOS, Manual of the Windows application SCOUT.

- [11] W. Theiß. Surf. Sci. Reports, **29**, 91 (1997).
- [12] C.S. Chen, C.S. Ro, J.L. Shen. Phys. Rev. B, **59**, 8128 (1999).
- [13] Ondrey Kilian, Guy Allan, Ludger Wirtz. Phys. Rev. B, **80**, 245208 (2009).
- [14] Н.Н. Новикова, В.А. Яковлев, И.В. Кучеренко. ФТП, **50**, 1173 (2016).
- [15] Н.Н. Сырбу, А.П. Сничур, В.А. Чумак, С.Б. Хачатурова. ФТП, **25**, 1146 (1991).
- [16] A. Mooradian, G.B. Wright. Phys. Rev. Lett., **16**, 999 (1966).
- [17] Ю.И. Равич, Б.А. Ефимова, И.А. Смирнов. *Методы исследования полупроводников в применении к халькогенидам свинца PbTe, PbSe и PbS* (М., Наука, 1968). Приложение В.
- [18] Н.Н. Новикова, В.А. Яковлев, И.В. Кучеренко. Письма ЖЭТФ, **102**, 253 (2015).
- [19] Ю.И. Равич, Б.А. Ефимова, И.А. Смирнов. *Методы исследования полупроводников в применении к халькогенидам свинца PbTe, PbSe и PbS* (М., Наука, 1968) гл. 2, с. 69.

Редактор Г.А. Оганесян

Infrared reflection spectra of the films of topological insulator $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ on the substrate ZnTe/GaAs and vibrational modes of multilayer structures

N.N. Novikova¹, V.A. Yakovlev¹, I.V. Kucherenko², V.S. Vinogradov², Yu.A. Aleschenko^{2,4}, A.V. Muratov², G. Karczewski³, S. Chusnutdinov³

¹ Institute for Spectroscopy
Russian Academy of Sciences,
142190 Moscow, Troitsk, Russia

² Lebedev Physical Institute
Russian Academy of Sciences,
119991 Moscow, Russia

³ Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,
02-668 Warszawa, Poland

⁴ National Research Nuclear University MEPhI
(Moscow Engineering Physics Institute),
115409 Moscow, Russia

Abstract Infrared reflectivity spectra of the topological insulator $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ ($x = 0.2, 0.34$) films grown by the molecular beam epitaxy technique on ZnTe/GaAs substrate were studied. Using dispersion analysis of reflectivity spectra plasmon and phonon parameters for the samples under study were obtained. Interface mode frequencies were calculated in quasi-static approximation for four-layer structure as a function of overlapping parameter χ_1 ($0 \leq \chi \leq 1$). Spectrum of multilayer structure differs from the spectrum of the sum of noninteracting layers. Several interface modes were observed in the experimental spectra.