

О ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ДИСПЕРСИИ И ЭКСИТОННОМ СПЕКТРЕ СЛОИСТЫХ МОНОКРИСТАЛЛОВ ТРЕХИОДИСТОГО ВИСМУТА

*С.В.Вурко, М.П.Лисица, Ф.В.Мощный,
С.О.Сергеев*

С помощью теории пространственной дисперсии в рамках дополнительных граничных условий Пекара впервые анализируются экситонные спектры отражения слоистых кристаллов (BiI_3), обладающих значительным затуханием экситонных волн. Наиболее удовлетворительное описание экспериментальной кривой теоретической достигается при больших массах ($M_{\perp} = 100m_0$) и затуханиях ($\hbar\gamma = 33$ мэВ) экситонов. Имеющееся различие между экспериментальным и расчетным спектрами с коротковолновой стороны от основного минимума отражения объясняется неучетом теорией квазиповерхностных экситонных состояний. Эффекты пространственной дисперсии в трехиодистом висмуте пренебрежимо малы, так как неравенство $\hbar\gamma/\hbar\gamma_{\text{крит}} > 1$ перекрывается примерно в тысячу раз.

В последние два десятилетия появились новые экспериментальные данные о добавочных световых волнах (ДСВ) Пекара [1,2]. К ним, в частности, относятся опыты по отражению света от тонких пластин CdSe [3], CdS [4], изменению фазы отраженной волны от поверхности монокристаллов CdSe , CdS в области 1А-экситонного перехода [5,6], резонансному комбинационному рассеянию света кристаллами GaAs , CdTe , CdS , InSe , HgI_2 , [7], прохождению сигналов пикосекундной длительности через монокристаллы S и Cl [7], преломлению света клинообразным монокристаллом CdS [8] и др. Во всех этих случаях имело место относительно небольшое затухание экситонных волн. В [2,9] показано, что с его возрастанием формулы Пекара трансформируются в классические формулы Френеля. Поэтому представляло интерес проанализировать с помощью теории Пекара экситонные спектры кристаллов, обладающих заведомо большим затуханием.

Удобным объектом для решения такой задачи является слоистый полупроводник BiI_3 . Его основная экситонная полоса имеет большую силу осциллятора и полуширину (36–40 мэВ) [10], а также не искажена наложением спектра фотолюминесценции. Поскольку в работе изучались спектры отражения (СО), то для исключения возможного окисления образцов и адсорбции компонентов атмосферы на их поверхности последние приготавливались скалыванием в жидком гелии.

Спектры отражения при $T = 4.2$ К и в поляризации $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ ($\mathbf{k} \parallel \mathbf{C}$) регистрировались при близком к нормальному падению света на установке с линейной дисперсией 7.2 А/мм [11].

Для поперечных волн показатель преломления света имеет вид [12]

$$n_{\perp}^2 = \varepsilon_{0\perp} + \frac{4\pi\alpha_0}{\left[1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} - i\frac{\omega}{\omega_0^2}\gamma\right] + \frac{\hbar\omega^2}{c^2 M_{\perp} \omega_0} n_{\perp}^2}. \quad (1)$$

Здесь $\varepsilon_{0\perp}$ — фоновая диэлектрическая проницаемость среды, α_0 — безразмерный параметр, ω_0 — резонансная частота, $M_{\perp} = (m_e + m_h)$ — масса экситона в плоскости, $\hbar\gamma$ — энергия затухания экситонов.

Решение этого уравнения дает четыре значения $n_{\perp}(\omega)$, из которых нас интересуют лишь два — те, у которых $\text{Re}(n_{\perp}(\omega)) > 0$, что отвечает условию распространения волн в кристалле по направлению падающей волны. Для определения коэффициента отражения R в классической дисперсионной среде ($\varepsilon = \varepsilon(\omega)$) достаточно граничных условий Максвелла, а в среде с пространственной дисперсией ($\varepsilon = \varepsilon(\omega, \mathbf{k})$) упомянутых условий недостаточно и возникает проблема дополнительных граничных условий (ДГУ).

В работе [13] показано, что для слоистого PbI_2 , родственного BiI_3 , наиболее подходящим является ДГУ Пекара

$$P_{z=0} = 0. \quad (2)$$

Воспользовавшись отмеченным, получаем

$$R = \left| \frac{1 - n_f}{1 + n_f} \right|^2, \quad (3)$$

где

$$n_f = (n_{1\perp} n_{2\perp} + \varepsilon_{0\perp}) / (n_{1\perp} + n_{2\perp}).$$

Для численного расчета R необходимо знать параметры $\varepsilon_{0\perp}$, ω_0 , α_0 , $\hbar\gamma$ и M_{\perp} . Так как

$$\alpha_0 = \frac{1}{4\pi} \varepsilon_{0\perp} \left(1 - \frac{\omega_0^2}{\omega_L^2} \right)$$

[13], то, положив для BiI_3 $\hbar\omega_0 = 2.07$ эВ [14], $\hbar\omega_L = 2.105$ эВ [14], находим $4\pi\alpha_0 = 0.22$. Приняв далее $\varepsilon_{0\perp} = 6.7$ [15], с помощью (1) и (3) можно рассчитать совокупность кривых отражения в области основного экситонного перехода при различных значениях $\hbar\gamma$ и M_{\perp} и сравнить с экспериментальной кривой.

Анализ теоретических экспериментальных кривых (рис. 1) позволяет констатировать следующее: 1) положение расчетных экстремумов смещено в коротковолновую область по сравнению с экспериментальными, 2) независимо от значения M_{\perp} с увеличением $\hbar\gamma$ от 0 до 50 мэВ размах основной экситонной осцилляции уменьшается. Поскольку использованные для выполненных расчетов параметры $\hbar\omega_0$, $\hbar\omega_L$ также получены теоретическим путем, для последующего сопоставления с экспериментом необходима корректировка указанных параметров и в первую очередь

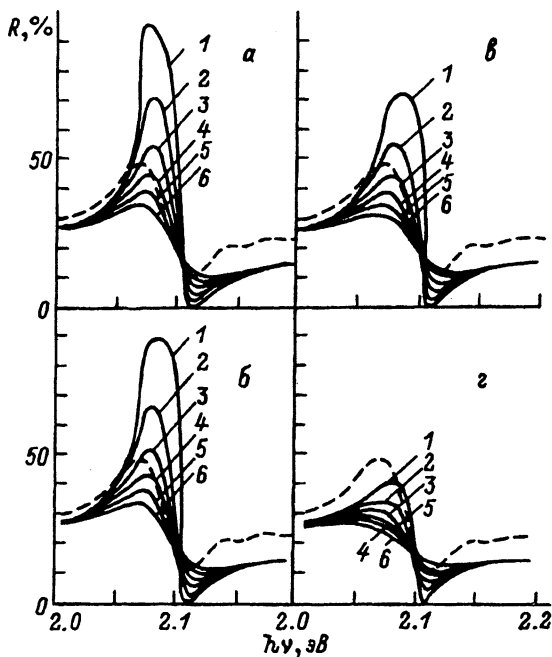


Рис. 1. Влияние параметра $\hbar\gamma$ на рассчитанные с учетом пространственной дисперсии спектры отражения BiI_3 в области основного экситонного резонанса при $T = 4.2$ К и $E \perp C$.

Сплошные кривые — теория, штриховая кривая — эксперимент. M_{\perp} : $10m_0$ (а); m_0 (б); $0.1m_0$ (в); $0.01m_0$ (г). $\hbar\gamma$: 0 (1), 10 (2), 20 (3), 30 (4), 40 (5), 50 мэВ (6).

$\hbar\omega_0$. Она легко достигается подгонкой энергетического положения расчетных максимумов к экспериментальному. Уточненные таким образом величины $\hbar\omega_0$ и $4\pi\alpha_0$ равны 2.059 эВ и 0.29 соответственно.

Результаты скорректированных по $\hbar\omega_0$ и α_0 кривых для тех же масс и констант затухания экситонов, что и на рис. 1, представлены на рис. 2. Видно, что уменьшение массы экситона сопровождается для заданных $\hbar\gamma$ понижением отражения в максимуме при постоянстве в минимуме; в результате для $M_{\perp} = 0.01m_0$ расчетная осцилляция располагается ниже экспериментальной даже при отсутствии затухания экситонов. Более того, независимо от M_{\perp} минимум расчетной кривой приближается к экспериментальному только при больших $\hbar\gamma$, причем его форма является существенно иной и сильно размытой. Из полученных результатов следует, что подгонку теоретических СО к экспериментальному следует начинать с длинноволнового крыла и максимума основной экситонной осцилляции, которые списываются наиболее адекватно при некоторых значениях M_{\perp} и $\hbar\gamma$. На основании вышеизложенного положив M_{\perp} равным $100m_0$ и $0.018m_0$, мы подобрали для каждого из них определенное значение $\hbar\gamma$, отвечающее 33 и 4 мэВ соответственно.

Найденные кривые сравнены с исследуемой на рис. 3. Обращает на себя внимание удовлетворительное описание эксперимента (кривая 1) теорией Пекара только для $M_{\perp} = 100m_0$ и $\hbar\gamma = 33$ мэВ (кривая 3). Наблюдаемое при этом различие между экспериментальным и расчетным спектрами с коротковолновой стороны от основного минимума отражения нельзя объяснить влиянием мертвого слоя, так как толщина последнего в BiI_3 невелика ($d^* \sim 2r_{ex} \sim 20$ Å). Оно не может быть вызвано и макроскопическим дальнедействующим поверхностным потенциалом, рассмотренным детально в [16,17] и приводящим к различным особенностям в СО, в том числе и к спайку, поскольку предсказываемые особенности не совпада-

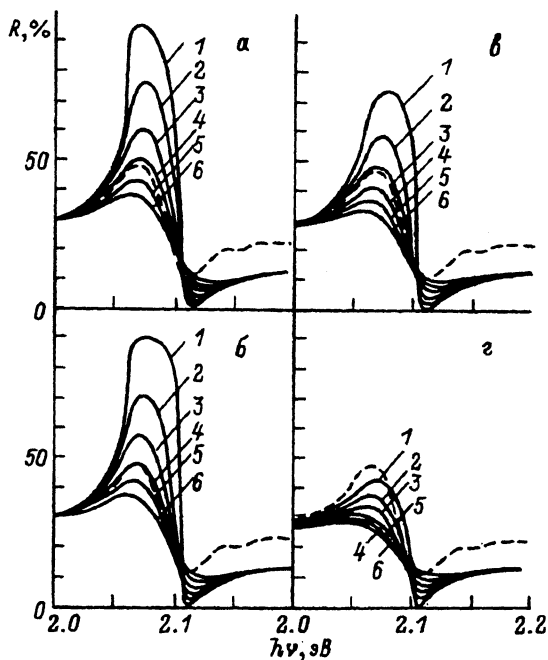


Рис. 2. Скорректированные по ω_0 и α_0 спектры отражения BiI_3 в области основного экситонного резонанса, рассчитанные при тех же значениях $\hbar\gamma$ и M_\perp , что и на рис. 1.

Сплошные кривые — теория, штриховая кривая — эксперимент. $T = 4.2 \text{ К}$. $E \perp C$.

ют с экспериментально наблюдаемыми для многочисленных образцов — чистых (специально не легированных) и намеренно легированных примесями разной природы, — полученных сублимацией из газовой фазы и по методу Бриджмена, с естественной и атомарно-чистой поверхностями. Более того, дополнительная осцилляция при энергии 2.125 эВ принадлежит не спайку, а квазиповерхностным экситонам [10,18], для проявления которых достаточно короткодействующего поверхностного потенциала. Поэтому глубина минимума и все коротковолновое крыло рассматриваемой осцилляции обусловлены наложением по меньшей мере двух осцилляций: основной объемной и квазиповерхностной, расположенной на длинноволновом крыле объемной с $n = 2$. Следовательно, проявляющееся несоответствие между экспериментальной и теоретической кривыми со стороны больших энергий от минимума отражения связано с учетом теорией Пекара квазиповерхностных экситонных состояний.

Отметим также, что с уменьшением M_\perp и $\hbar\gamma$ нижняя часть расчетной осцилляции смещается в длинноволновую часть спектра, изменяет заметную свою форму и при $M_\perp = 0.018m_0$ и $\hbar\gamma = 4 \text{ мэВ}$ (кривая 2) принимает вид ярко выраженного глубокого минимума, существенно отличающегося от исследуемого. Таким образом, удовлетворительное описание экспериментальной кривой теоретической имеет место при больших массах и затуханиях экситонов.

Наилучшая подгонка теоретических кривых к экспериментальной достигается при значениях параметров $\hbar\gamma$ и M_\perp , изображенных на рис. 4 кривой 1. Здесь же кривыми 2 и 3 представлены теоретическая зависимость для критического затухания $\hbar\gamma_{\text{крит}}$

$$\hbar\gamma_{\text{крит}} = \hbar\omega_0 \sqrt{\epsilon_{0\perp} (\hbar\omega_L - \hbar\omega_0) / 2M_\perp c^2}$$

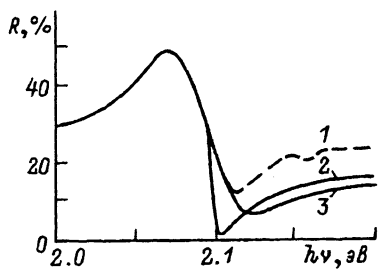


Рис. 3. Сравнение измеренных спектров отражения BiI_3 (1) с рассчитанными по теории пространственной дисперсии для следующих значений параметров M_{\perp} и $\hbar\gamma$: 0.018 m_0 , 4 мэВ (2), 100 m_0 , 33 мэВ (3).

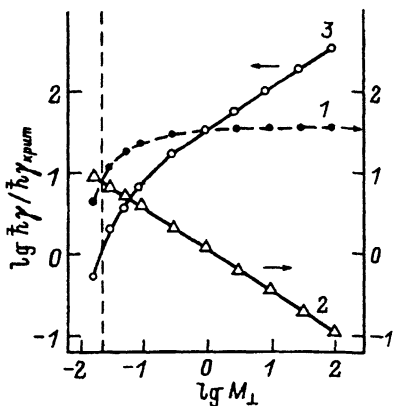


Рис. 4. Зависимость найденной из эксперимента константы затухания $\hbar\gamma$ (1) прямого экситонного перехода $n=1$ BiI_3 ; критической константы затухания экситонов $\hbar\gamma_{\text{крит}}$ (2), рассчитанной по формуле [15]; их отношения (3) от массы экситона M_{\perp} при $T = 4.2$ К и $E \perp C$.

[19] и отношения $\hbar\gamma/\hbar\gamma_{\text{крит}}$ от M_{\perp} соответственно. Характерно, что $\hbar\gamma/\hbar\gamma_{\text{крит}} > 1$ для $\lg M_{\perp} > -1.46$ и $\hbar\gamma/\hbar\gamma_{\text{крит}} \leq 1$, когда $\lg M_{\perp} \leq 1.46$. В [20] установлено, что при $\hbar\gamma/\hbar\gamma_{\text{крит}} > 1$ эффекты пространственной дисперсии пренебрежимо малы. В случае трехиодистого висмута это неравенство многократно перекрывается (примерно в тысячу раз), так как удовлетворительное согласие теории и эксперимента достигается при больших массах экситонов.

На основании вышеизложенного можно заключить, что в слоистом полупроводнике BiI_3 эффекты пространственной дисперсии несущественны и волны Пекара не могут возникнуть. Поэтому для расчета оптических характеристик BiI_3 при гелиевых температурах правомерно использовать классические соотношения Крамерса-Кронига.

Авторы признательны М.И.Страшниковой за обсуждение работы.

Список литературы

- [1] Агранович В.М., Гинзбург В.Л. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М.: Наука, 1979. 432 с.
- [2] Пекар С.И. Кристаллооптика и добавочные световые волны. Киев: Наукова думка, 1982. 296 с.
- [3] Киселев В.А., Разбирин Б.С., Уральцев И.Н. // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 18. № 8. С. 504-507.
- [4] Makarenko J.V., Uraltsev J.N., Kiselev V.A. // Phys. Stat. Sol. (b). 1980. V 98. N 2. P. 773-779.
- [5] Соловьев Л.Е., Бабинский А.Б. // Письма в ЖЭТФ. 1976. Т. 23. № 5. С. 291-295.
- [6] Комаров А.В., Рябченко С.М., Страшникова М.И. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 1. С. 251-259.
- [7] Котелес Э.С. // Экситоны. М.: Наука, 1985. С. 68-106.
- [8] Лебедев М.В., Страшникова М.И., Тимофеев В.Б., Черный В.В. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 7. С. 1948-1954.x
- [9] Страшникова М.И., Бессонов Е.В. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 6. С. 2206-2214.
- [10] Лисица М.П., Моцный Ф.В. // Письма в ЖЭТФ. 1984. Т. 40. № 10. С. 434-437.
- [11] Лисица М.П., Моцный Ф.В., Сергеев С.О. // ЖПС. 1988. Т. 49. № 4. С. 630-635.
- [12] Ивченко Е.Л. // Экситоны. М.: Наука, 1985. С. 107-129.

- [13] Biellmann J., Grosmann M., Nikitine S. // Polaritons. Proceedings of the first Taormina research conference on the structure of mater. Taormina, Italy, 1972.
- [14] Komatsu T., Kaifu Y., Karasawa T., Jida T. // *Physica B + C*. 1980. V. 99. N 1-4. P. 318-322.
- [15] Komatsu T., Kaifu Y. // *J. Phys. Soc. Jap.* 1976. V. 40. N 4. P. 1062-1068.
- [16] Киселев В.А. // *ФТТ*. 1978. Т. 20. № 7. С. 2173-2176.
- [17] Киселев В.А., Новиков Б.В., Чередниченко А.Е. Экситонная спектроскопия приповерхностной области полупроводников. Л.: Изд-во ЛГУ, 1987. 161 с.
- [18] Watanabe K., Takeyama S., Miura N., Komatsu T. // *Sol. Stat. Communs.* 1990. V. 74. N 1. P. 37-40.
- [19] Страшникова М.И., Черный В.В. // *ФТТ*. 1991. Т. 33. № 4. С. 1134-1143.
- [20] Резниченко В.Я., Страшникова М.И., Черный В.В. // *УФЖ*. 1991. Т. 36. № 5. С. 694-701.

Институт полупроводников
АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
3 марта 1992 г.
В окончательной редакции
17 ноября 1992 г.