

УДК 535.56

© 1991

УЧЕТ ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫХ НУЛЕЙ ПРОПУСКАНИЯ В ИНТЕГРАЛЬНЫХ СООТНОШЕНИЯХ ДЛЯ ЭКСИТОННЫХ СПЕКТРОВ КРИСТАЛЛА CdSe

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

Исследованы амплитудные и фазовые спектры пропускания тонких пластинок селенида кадмия в области экситонного перехода $A_{n=1}$ при различных температурах. Уменьшение интегрального коэффициента поглощения и нарушение классических соотношений Крамерса—Кронига объясняются в рамках единого подхода с учетом интерференции добавочных волн.

Неклассическое поведение экситонных спектров при возбуждении добавочных волн [1, 2] проявляется, в частности, в температурной зависимости интегрального коэффициента поглощения [3-5] и нарушении классических амплитудно-фазовых дисперсионных соотношений [6-8]. Оба этих эффекта можно трактовать, применяя единую теоретическую модель, в которой учет добавочных волн приводит к появлению особенностей амплитудно-фазовых функций в верхней полуплоскости комплексной переменной $\omega (I_+(\omega))$, связанных с интерференционными нулями коэффициента пропускания (или отражения) [8-10].

В данной работе приведены результаты, представляющие собой дальнейшее развитие изложенного в [10]. Указанные теоретические представления применяются к описанию амплитудно-фазовых спектров пропускания вблизи экситонного перехода $A_{n=1}$ кристалла CdSe. Одновременно рассмотрена температурная зависимость интегрального коэффициента дисперсионных соотношений. Исследовалась пропускательная способность тонких (до 0.5 мкм) плоскопараллельных пластинок селенида кадмия с гексагональной осью C_6 , ориентированной параллельно поверхности. В качестве спектральной функции, характеризующей пропускание в разрешенной поляризации ($E \perp C_6$), рассматривается полученный из экспериментальной кривой $P(\omega) = 1/2 \text{Ln} [D_0/D(\omega)]$, где $D_0 = \tau_0 \tau_0^*$, $D(\omega) = \tau(\omega) \tau^*(\omega)$ — энергетические коэффициенты пропускания; $\tau(\omega) = E_{tr}(\omega)/E_0$ — отношение комплексных амплитуд прошедшего и падающего света; τ_0 — его предельное значение вдали от резонанса. Вклад в поглощение экситона $A_{n=2}$ и других состояний, а также края полосы межзонного поглощения вычитался. Спектральная зависимость этого вклада задавалась параболой, определенной по трем опорным точкам, аналогично способу, описанному в [11]. В качестве спектральной фазовой функции бралась разность фаз прошедшего света между разрешенной и запрещенной ($E \parallel C_6$) поляризациями без учета постоянного сдвига, обусловленного разностью фоновых показателей преломления в разрешенной и запрещенной поляризациях.

В отличие от использованного ранее в наших работах понятия эффективного комплексного показателя преломления $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega)$ [8-10] такое описание амплитудно-фазовых спектров позволяет не пренебрегать спектральным изменением отражения, что существенно для тонких кристаллов с большими значениями сил экситонных осцилляторов.

В качестве интегральной характеристики экситонного поглощения в данной работе рассматривается площадь под контуром $P(\nu)$

$$S = \frac{1}{z} \int_{-\infty}^{\infty} \text{Ln} \frac{D_0}{D(\nu)} d\nu, \quad (1)$$

где z — толщина кристалла, $\nu = \omega/2\pi$. Для теоретического расчета формула (1) преобразуется с учетом равенств $D = \tau\tau^*$ и $D_0 = \tau_0\tau_0^*$, а также приближения изолированного резонанса

$$S = \frac{2}{z} \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} \nu \frac{\tau'}{\tau} d\nu. \quad (2)$$

Данное выражение отличается от исходного в [10] заменой функции $\theta(\nu)$, использованной при определении эффективного показателя преломления [8, 10], на $\tau(\nu)$. Связь между этими функциями в двухлучевом приближении (при пренебрежении многократными отражениями в кристалле) имеет вид [7]

$$\tau(\nu) = [1 + \beta(\nu)]\theta(\nu),$$

где $\beta(\nu)$ — отношение комплексных амплитуд отраженной и падающей волн (амплитудный коэффициент отражения). Интеграл (2) вычисляется при помощи аналитического продолжения подынтегральной функции в $I_+(\nu)$ аналогично [10]. В двухлучевом приближении, несмотря на различие подынтегральных функций, результат интегрирования (2) совпадает с конечным результатом в [10]

$$S(\gamma, z) = \pi \left\{ \nu_{LT} k_0 - 4/z \left[\sum_j (\gamma_{0j} - \gamma) \right] \right\}, \quad (3)$$

где ν_{LT} — продольно-поперечное расщепление; $k_0 = 2\pi n_0/\lambda_T$ — волновой вектор, соответствующий фоновому значению показателя преломления $n_0 = \sqrt{\epsilon_{0L}}$ на длине волны поперечного экситона λ_T ; γ — константа затухания; γ_{0j} — мнимые координаты нулей пропускания в $I_+(\nu)$: $\tilde{\nu}_{0j} = \nu_{0j} + i\gamma_{0j}$. Формула (3) записана здесь в более удобном виде, чем в [10]. Первое слагаемое в (3) $S_0 = \pi \nu_{LT} k_0$ дает высокотемпературный предел S , зависящий в данном приближении только от силы осциллятора экситонного перехода и не зависящий от толщины кристалла и величины затухания.

При учете многократных отражений света в кристалле интегрирование (2) приводит к выражению

$$S(\gamma, z) = \pi \left[\nu_{LT} k_0 \frac{R + \sqrt{F} (\sin 2k_0 z) k_0 z}{1 + F \sin^2 k_0 z} - \frac{4}{z} \sum_j (\gamma_{0j} - \gamma) \right], \quad (4)$$

где $R = (1 - R_0)/(1 + R_0)$, $R_0 = [(1 - n_0)/(1 + n_0)]^2$, $F = 4R_0/(1 - R_0)^2$. Высокотемпературный предел S в отличие от (3) здесь зависит от толщины кристалла. Метод вычисления координат нулей пропускания подробно описан в [10]. В данной работе при вычислении γ_{0j} и ν_{0j} использовались дополнительные граничные условия Пекара [1]. Значения γ_{0j} в двухлучевом приближении (3) и при учете многократных отражений (4) различны, но общее количество нулей одинаково.

Регистрация амплитудных и фазовых спектров пропускания проводилась установкой на базе спектрометра ДФС-12. Рассмотрим более подробно систему регистрации фазовых спектров.

Падающий линейно-поляризованный свет, пройдя через кристалл, становится в общем случае эллиптическим. Интенсивность света после

прохождения анализатора можно записать через интенсивность в s - и p -компонентах как

$$I_r = I_s + I_p + 2\sqrt{I_s I_p} \cos(\Delta(\lambda)), \quad (5)$$

$\Delta(\lambda) = \Delta_s(\lambda) - \Delta_p(\lambda)$ — сдвиг фазы света между этими компонентами. Экспериментальная задача упрощается в связи с тем, что экситонная линия в CdSe A_{n-1} полностью поляризована и при соответствующей ориентации кристалла s -компонента не обладает дисперсией сдвига фазы. В установке с помощью подвижного кварцевого клина вводится фазовый сдвиг, изменяющийся во времени по гармоническому закону и в узкой спектральной области не зависящий от длины волны

$$a(t) = a_0 \sin(\omega_M t),$$

a_0 — амплитуда колебаний клина, ω_M — частота модуляции. Тогда в соответствии с (5)

$$I_r(t) = I_s + I_p + 2\sqrt{I_s I_p} \cos[\Delta(\lambda) + a_0 \sin(\omega_M t)]$$

или, разложив в ряд Фурье,

$$I_r(t) = I_s + I_p + 2\sqrt{I_s I_p} [\cos \Delta(\lambda) \{J_0(a_0) + 2J_2(a_0) \cos 2\omega_M t + \dots\} - \sin \Delta(\lambda) \{2J_1(a_0) \sin \omega_M t + 2J_3(a_0) \sin 3\omega_M t + \dots\}].$$

Здесь J_n — функции Бесселя. Амплитуды первой и второй гармоник соответственно с точностью до постоянных множителей равны $U_1 = 2J_1(a_0) \sin \Delta(\lambda)$, $U_2 = 2J_2(a_0) \cos \Delta(\lambda)$. Можно подобрать такую амплитуду модуляции, что $J_1(a_0) = J_2(a_0)$. В этом случае $\Delta(\lambda) = \text{arctg}(U_1/U_2)$.

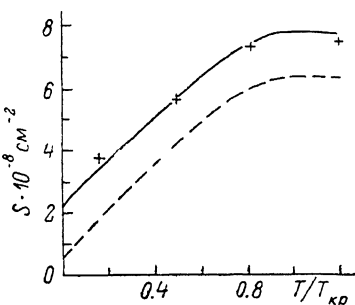


Рис. 1. Зависимость интегрального коэффициента поглощения от температуры.

Точки — эксперимент, штриховая и сплошная линии — расчет в двухлучевом приближении и при учете многократных отражений в кристалле.

Эксперимент ставился следующим образом. На заданной длине волны λ_k ЭВМ управляет перемещением кварцевого кристаллического клина по гармоническому закону, фиксируя сигнал для каждого конкретного положения клина. Далее проводится Фурье-анализ полученного массива точек $I_r(\lambda_k)$ для двух частот ω_M и $2\omega_M$ и вычисляется $\Delta(\lambda_k)$ согласно (4). Затем ЭВМ переводит спектрометр на новую длину волны и процедура повторяется.

Фурье-преобразование сохраняет информацию о знаке амплитуд интересующих нас гармоник, поэтому фаза прошедшего света может быть измерена с точностью до 2π . При измерении в пропускании набег фазы при низких температурах может составлять много единиц π , поэтому мы контролировали полное изменение фазы фотографически по картине Пуччанти [12].

Такая методика, обладая всеми преимуществами модуляционных способов регистрации, позволяет одновременно использовать чувствительный метод счета квантов. Использованная нами методика не требует многократного сканирования исследуемого спектрального диапазона, которое неизбежно приводит к ошибкам вследствие чрезвычайно резкого изменения фазы в окрестности экситонного резонанса (особенно в совершенных кристаллах при низких температурах).

На рис. 1 представлены зависимости интегрального поглощения от нормированной температуры $T/T_{кр}$, рассчитанные по формулам (3) и (4)

для кристалла CdSe при $z=0.37$ мкм. Зависимость константы затухания от температуры считалась линейной [13]. Критическая температура определяется критическим значением затухания $\gamma_{кр} = (k_0/\pi) \sqrt{\hbar v_{LT}/2m^*c}$ (m^* — эффективная масса экситона). На рис. 1 показаны также экспериментальные значения S в интервале температур 8—60 К для монокристаллической пластинки CdSe толщиной 0.37 мкм. Критическая температура для данного образца составляет около 50 К. Экспериментальные данные значительно лучше описываются расчетом, сделанным с учетом многократных отражений света в кристалле. Оценка величины затухания при $T=8$ К ($T/T_{кр}=0.15$) дает $\gamma/\gamma_{кр} \approx 0.2$.

Дополненные дисперсионные соотношения между фазовым спектром $\delta(\nu)$ и спектром $\text{Ln}[D_0/D(\nu)]$ аналогичны амплитудно-фазовым интегральным соотношениям в отражении [8]. В наших расчетах использована

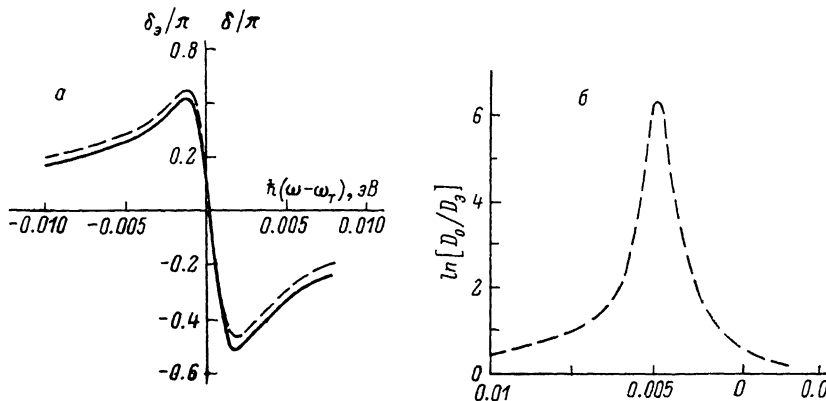


Рис. 2. Фазовый (а) и амплитудный (б) спектры пропускания кристалла CdSe.

$A_{n=1}$, $z=0.37$ мкм, $T=60$ К. Сплошная линия — расчет по формуле Крамерса—Кронига, штриховые — эксперимент.

лось соотношение, позволяющее восстановить фазовую функцию по спектру пропускания

$$\delta(\nu) = \frac{\nu}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\text{Ln}[(D_0/D(x))] dx}{x^2 - \nu^2} + \sum_j \left[2 \arctg \frac{\gamma_{0j} - \gamma}{\nu_{0j} - \nu} + \alpha_j \right]. \quad (6)$$

Здесь $\alpha_j=0$ при $\nu < \nu_{0j}$; $\alpha_j=2\pi$ при $\nu > \nu_{0j}$. Под знаком суммы, так же как в (3) и (4), учитываются только слагаемые, для которых $\gamma_{0j} > \gamma$. Фазовая функция, вычисленная по формуле (6) для экспериментального контура пропускания $D_s(\nu)$, сравнивалась с экспериментальным спектром $\delta_s(\nu)$.

При $T > T_{кр}$ экспериментальные данные хорошо описываются классическим интегральным членом в (6). Повышение температуры одновременно с уменьшением S приводит к появлению в фазовом спектре кратной 2π разности между предельными значениями $\delta(\nu)$ по разные стороны резонанса. Это указывает на необходимость учета внеинтегрального члена в (6). Приводимые нами данные сравнения расчетов с экспериментом относятся к тому же образцу CdSe ($z=0.37$ мкм), которому соответствуют измерения интегрального поглощения (рис. 1).

На рис. 2 представлены спектральные зависимости $\delta(\nu)$, $\delta_s(\nu)$ (а) и $\text{Ln}[D_0/D_s(\nu)]$ (б) при $T=60$ К. Расчет $\delta(\nu)$ проводился по классической формуле Крамерса—Кронига (первое слагаемое в (6)). Как видно из этого рисунка, расчетная кривая в пределах погрешности совпадает с экспериментальным фазовым спектром. Надежность регистрации пропускания в области, где $\text{Ln}[D_0/D_s(\nu)] > 4$, невысока, так при этом $D_s(\nu) < 0.02D_0$. Для уточнения значений пропускания в этой области

использовалось обратное соотношение, позволяющее восстановить спектр пропускания по фазовому спектру

$$\text{Ln} \frac{D_0}{D(\nu)} = -\frac{4}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{x \delta(x)}{x^2 - \nu^2} dx. \quad (7)$$

Уточненные таким образом значения пропускания в области максимума использовались и при определении экспериментальных значений S .

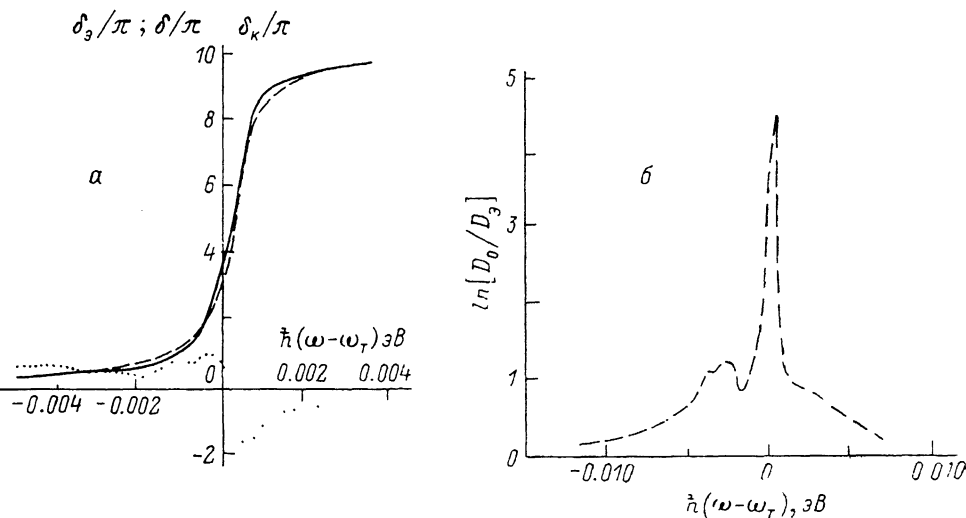


Рис. 3. Фазовый (а) и амплитудный (б) спектры пропускания кристалла CdSe. $A_{11}=1$, $z=0.37$ мкм, $T=8$ К. Сплошная линия — расчет по формуле (6), пунктир — интегральное слагаемое в формуле (6), штриховые линии — эксперимент.

Низкотемпературные спектры $\delta_3(\nu)$ и $\text{Ln} [D_0/D_3(\nu)]$ ($T=8$ К), а также кривая $\delta(\nu)$, рассчитанная по формуле (5), показаны на рис. 3. Можно видеть, что фазовый спектр $\delta_k(\nu)$ ни количественно, ни качественно не соот-

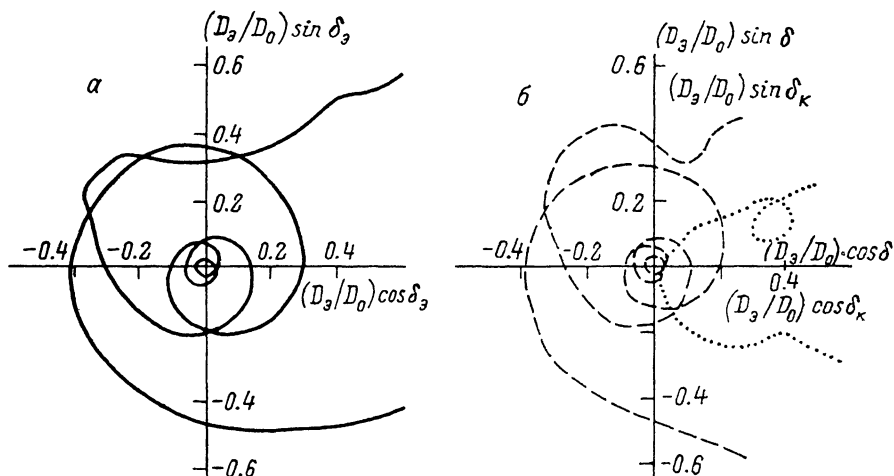


Рис. 4. Амплитудно-фазовые годограммы пропускания CdSe.

$A_{11}=1$, $z=0.37$ мкм, $T=8$ К. а — эксперимент; б — расчетная фаза с экспериментальной амплитудой. Штриховая линия — для фазы, вычисленной по формуле (6); пунктир — для интегрального фазового слагаемого в (5).

ветствует эксперименту (на рисунке для этой кривой масштаб по вертикальной оси увеличен в 4 раза). В то же время соответствие фазовых спектров $\delta(\nu)$ и $\delta_3(\nu)$ вполне удовлетворительное. Величина константы

затухания, использованная в расчете $\delta(\nu)$, подбиралась из требования соответствия расчету эксперименту, а также с учетом значения интегрального поглощения. В данном случае удовлетворительный результат был достигнут при $\gamma/\gamma_{кр} = 0.2$ ($\gamma = 0.8 \text{ см}^{-1}$ или 0.1 мэВ).

На рис. 4 изображены зависимости экспериментального коэффициента пропускания $D_s(\nu)/D_0$ от фазовых функций $\delta_s(\nu)$, $\delta(\nu)$ и $\delta_k(\nu)$ в полярных координатах. Легко видеть, что экспериментальная амплитудно-фазовая годограмма (а) резко отличается от годограммы, соответствующей фазе $\delta_k(\nu)$, но близка к годограмме для фазы $\delta(\nu)$. Заметно также, что различия годограмм наблюдаются более отчетливо, чем различия спектров (рис. 3). В этом смысле их сравнение более наглядно.

Описанные здесь исследования экситонных спектров пропускания кристаллов CdSe показывают, что эффекты уменьшения интегрального коэффициента поглощения и нарушения классических соотношений Крамерса — Кронига на опыте наблюдаются одновременно. Весь набор экспериментальных данных удается описать в рамках единых представлений об интерференционных эффектах, обусловленных возникновением добавочных светоэкситонных волн. При этом оценки экситонного затухания, полученные по величине интегрального поглощения и по отклонению от классических дисперсионных соотношений на одном и том же образце, дают одинаковый результат.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Пекар С. И. // ЖЭТФ. 1957. Т. 33. № 4. С. 1022—1036; 1958. Т. 34. № 5. С. 1176—1186.
- [2] Киселев В. А., Разбирин Б. С., Уральцев И. Н. // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 18. № 8. С. 504—507.
- [3] Voight J. // Phys. St. Sol. (B). 1974. V. 64. 2. P. 549—556.
- [4] Ахмедиев Н. Н. // ЖЭТФ. 1980. Т. 79. № 4. С. 1534—1543.
- [5] Новиков А. Б., Соловьев Л. Е., Талалаев В. Г. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 6. С. 1931—1934.
- [6] Бродин М. С., Прихотько А. Ф., Соскин М. С. // Опт. и спектр. 1959. Т. 6. № 1. С. 28—32.
- [7] Бродин М. С., Страшников М. И. // ФТТ. 1962. Т. 4. № 9. С. 2454—2460.
- [8] Московский С. Б., Соловьев Л. Е. // ЖЭТФ. 1984. Т. 86. № 4. С. 1419—1430.
- [9] Григорьев С. Р., Московский С. Б., Новиков А. Б., Соловьев Л. Е. // Вестник ЛГУ, сер. 4. 1987. С. 107—110.
- [10] Московский С. Б., Новиков А. Б., Соловьев Л. Е. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 5. С. 1431—1436.
- [11] Певцов А. Б., Пермогоров С. А., Селькин А. В. // Письма в ЖЭТФ. 1984. Т. 39. С. 261.
- [12] Новиков А. Б., Соловьев Л. Е., Чайка М. О. // Опт. и спектр. 1987. Т. 63. № 3. С. 523—527.
- [13] Ахмедиев Н. Н., Голубев Г. П., Днепровский В. С., Жуков Е. А. // ФТТ. 1984. Т. 25. № 7. С. 2225—2227.

Ленинградский государственный университет

Поступило в Редакцию
2 апреля 1990 г.