Список литературы

[1] Иоффе А. Ф. Полупроводниковые термоэлементы. М.—Л., 1960. 188 с.
[2] Гольцман Б. М., Кудинов В. А., Смирнов И. А. Полупроводниковые термоэлектрические материалы на основе Bi_2Te_3. М., 1972. 320 с.

Получено 18.04.1989
Принято к печати 5.06.1989

ФТП, том 23, вып. 10, 1989

ТРИ СВЕТОВЫЕ ВОЛНЫ В ОБЛАСТИ ЭКСИТОННОГО РЕЗОНАНСА В КРИСТАЛЛАХ CdS

Винецкий В. Л., Кудыкина Т. А.

Известно, что при падении на кристалл световой волны с частотой, близкой к экситонному резонансу, в изотропном кристалле возбуждаются две проходящие волны, имеющие одинаковые частоту ω и поляризацию, но различающиеся показателями преломления n и поглощения $\varkappa$ [1, 2]. Это теоретическое заключение было экспериментально подтверждено на кристаллах CdS с помощью прецизионных измерений дисперсии $n(\omega)$ [3, 4]. Однако существует ряд расхождений между предсказаниями теории и данными эксперимента [3, 4] о поведении так называемой (+)-волны. Это обстоятельство побудило авторов настоящей работы более детально рассмотреть вопрос о добавочных световых волнах Пекара. Оказалось, что одна из двух пекаровских волн [(+)-волна] в свою очередь в области экситонного резонанса расщепляется на две волны с различными, хотя и довольно близкими значениями n и заметно различающимися $\varkappa$, так что в этой области существует три, а не две волны. Учет трех волн значительно улучшает согласие теории с экспериментом.

Связь величин n и $\varkappa$ с диэлектрической проницаемостью ε определяется из решения $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ макроскопического уравнения Максвелла

$$\Delta\mathbf{E} - \operatorname{grad}\operatorname{div}\mathbf{E} = c^{-2}\partial^2\mathbf{D}/\partial t^2, \tag{1}$$

где $\mathbf{E}$ и $\mathbf{D}$ — электрическое поле и индукция. Вклад в диэлектрическую проницаемость, обусловленный экситонами, определяется средним удельным электрическим моментом $\mathbf{P}$, возникающим под действием поля световой волны,

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathscr{E}(\mathbf{k}, \omega)\exp[i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t)]. \tag{2}$$

Дипольно-разрешенный электронный переход с образованием экситона в m-м состоянии в изотропном кристалле приводит к величине ε, выраженной через параметры энергетического спектра экситона и равной [2]

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + A_m[\mathscr{E}_m + H^a_{mm} - \hbar\omega + (\hbar^2k^2_{\text{экс}}/2M_{\text{экс}})]^{-1}, \tag{3}$$

где ε_0 определяется вкладом в $\mathbf{P}$ неэкситонного происхождения, $\mathscr{E}_m + \hbar^2k^2_{\text{экс}}/2M_{\text{экс}}$ — энергия экситона с волновым вектором $\mathbf{k}_{\text{экс}}$ и эффективной массой $M_{\text{экс}}$, H^a_{mm} описывает взаимодействие экситона с фононами и дефектами, A_m — постоянная, пропорциональная силе осциллятора. Запишем (3) в виде

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + \bar{A}_m(\omega_0 - \omega + \gamma k^2 - i\Gamma)^{-1}, \tag{4}$$

где $\operatorname{Re}H^a_{mm}$ включена в энергию экситона $\hbar\omega_0$, а $\operatorname{Im}H^a_{mm}$ определяет время жизни экситона Γ^{-1}, $\gamma \equiv \hbar/2M_{\text{экс}}$. Выражение (4) получено в [5, 6] иными методами, однако при том же условии действительного $\mathbf{k}$.

Рассмотрим теперь решения уравнения Максвелла (1). В отсутствие дисперсии

$$\varepsilon = \text{const}\,(\mathbf{r},\ t), \quad \mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E}, \tag{5}$$

точное решение (1) имеет вид (2), причем для собственных значений справедливо соотношение

$$\varepsilon = k^2c^2/\omega^2. \tag{6}$$

При наличии поглощения постоянная диэлектрическая проницаемость комплексна и решение (2) содержит комплексное k, для которого справедливо соотношение (2). В этом случае существует одна световая волна.

При наличии пространственной дисперсии поляризуемость χ зависит от r и t:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r},\ t) = \mathbf{E}(\mathbf{r},\ t) + 4\pi \int\limits_{-\infty}^{t} dt' \int d\mathbf{r}'\chi(\mathbf{r}-\mathbf{r}',\ t-t')\,\mathbf{E}(\mathbf{r}',\ t'). \tag{7}$$

Так как $\chi=0$ при $t' > t$, интегрирование в (7) можно распространить до ∞ [1]. Для определения отклика на гармоническое возмущение (2) необходимо разложить $\chi(\mathbf{r},\ t)$ на интеграл Фурье; тогда из (1), (2) следует соотношение

$$k^2c^2 = \omega^2\left[1 + 4\pi\int d\mathbf{s}\chi(\mathbf{s},\ \omega)\int d\mathbf{r}'e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{s})(\mathbf{r}'-\mathbf{r})}\right]. \tag{8}$$

Здесь $\chi(\mathbf{s},\ \omega)$ — компонента фурье-поляризуемости $\chi(\mathbf{r},\ t)$, поэтому $\mathbf{s}$, $\mathbf{k}$ являются действительными. При этом интеграл по $\mathbf{r}'$ приводит к δ-функции $\delta(\mathbf{k}-\mathbf{s})$ и (8) сводится к (6) при $\varepsilon(\mathbf{k},\ \omega)=1+4\pi\chi(\mathbf{k},\ \omega)$. Однако учесть поглощение простой заменой $\mathbf{k}$ на комплексное $\mathbf{k}$ в (8) нельзя, ибо при этом законность фурье-разложения теряет силу. Таким образом, вывод о существовании двух волн, следующий из соотношений (8) и (4), обоснован лишь в отсутствие поглощения.

При наличии и дисперсии (7), и поглощения уравнение Максвелла точно не решается. Однако может быть получено приближенное решение, справедливое при слабом поглощении. Решение (1) ищем в виде [7]

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},\ t) = \mathcal{E}(\mathbf{r},\ \omega,\ \mathbf{k})\exp[i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)], \tag{9}$$

где $\mathbf{k}$ действительно, а $\mathcal{E}(\mathbf{r},\ w,\ \mathbf{k})$ — слабо изменяющаяся на расстоянии порядка длины волны функция $\mathbf{r}$. Подстановка (9) в (1) с учетом (7) приводит к уравнению относительно $\mathcal{E}$, которое для изотропного кристалла и $\mathbf{k} \parallel 0x$ можно записать в виде

$$\mathcal{E}''_{xx} + 2ik\mathcal{E}'_x - k^2\mathcal{E} + \omega^2c^{-2}\left[\mathcal{E} + 4\pi\int d\mathbf{s}\chi(\mathbf{s},\ \omega)\int d\mathbf{r}'\mathcal{E}(\mathbf{r}',\ \omega,\ \mathbf{k})\,e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{s})(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}\right] = 0. \tag{10}$$

Воспользовавшись плавностью функции $\mathcal{E}(\mathbf{r}',\ \mathbf{k},\ \omega)$, вынесем ее из-под интеграла в (10) при $\mathbf{r}=\mathbf{r}'$. Тогда, полагая $\chi=\chi_1+i\chi_2$ и разделяя действительную и мнимую части в (10), получаем систему двух уравнений

$$\mathcal{E}''_{xx} - [k^2 - \omega^2c^{-2}\varepsilon_1]\,\mathcal{E} = 0, \tag{11}$$

$$2k\mathcal{E}'_x + \omega^2c^{-2}\varepsilon_2\mathcal{E} = 0, \tag{12}$$

где $\varepsilon(\mathbf{k},\ \omega)=\varepsilon_1(\mathbf{k},\ \omega)+i\varepsilon_2(\mathbf{k},\ \omega)$, $\varepsilon_1(\mathbf{k},\ \omega)=1+4\pi\chi_1(\mathbf{k},\ \omega)$, $\varepsilon_2=4\pi\chi_2(\mathbf{k},\ \omega)$. Решение (11), (12) имеет вид

$$\mathcal{E}(x,\ k,\ \omega) = \mathcal{E}_0(k,\ \omega)\exp[-\varkappa\omega x/c], \tag{13}$$

$$k^2c^2/\omega^2 = \varepsilon_1 + \varepsilon_2^2/4\varepsilon_1 = n^2, \tag{14}$$

где $\varkappa=\varepsilon_2\omega/2kc$. Соотношение (13) представляет собой закон Бугера—Ламберта, а (14) определяет коэффициент преломления света n. Из (13), (14) следует

$$\begin{aligned} \varepsilon_1 &= n^2 - \varkappa^2 - (\varkappa^2/n)^2, \\ \varepsilon_2 &= 2n\varkappa. \end{aligned} \tag{15}$$

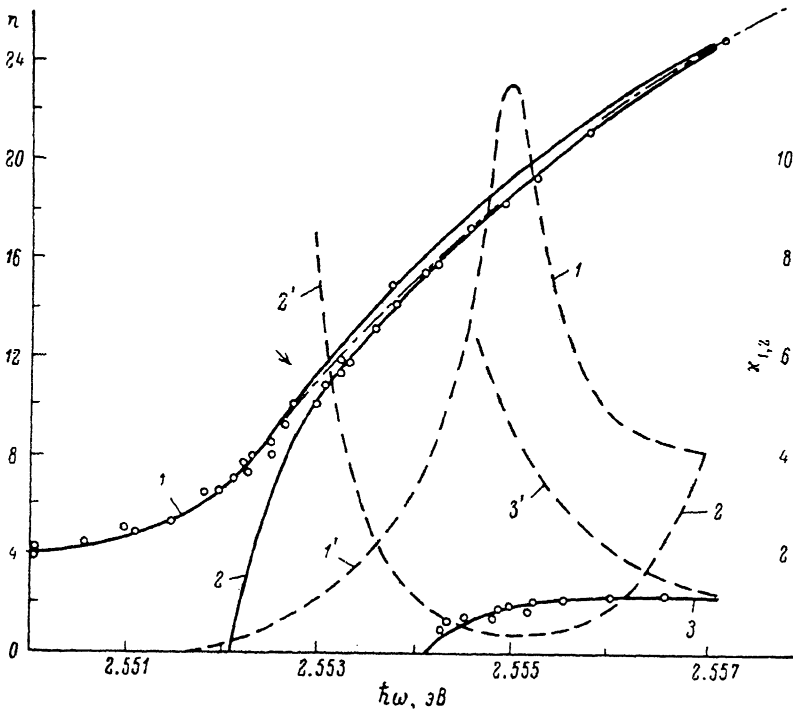
Условие плавности $\mathcal{E}$ соответствует малости параметра $\varkappa/n$. В 1-м порядке по малому параметру $\varkappa/n$ соотношения (15) совпадают с аналогичными соотношениями для точно решаемого случая отсутствия пространственной дисперсии.

Из (15), (4) следует

$$\varepsilon_1 \simeq n^2 - \varkappa^2 = \varepsilon_0 + A\,(\omega_0 - \omega + \beta n^2)\,[(\omega_0 - \omega + \beta n^2)^2 + \Gamma^2]^{-1}, \tag{16}$$

$$\varepsilon_2 = 2n\varkappa = A\Gamma\,[(\omega_0 - \omega + \beta n^2)^2 + \Gamma^2]^{-1}, \tag{17}$$

где $\beta \equiv (\hbar\omega_0)^2/2M_{\text{экс}}c$. Уравнение для n^2 оказывается теперь не ниже 3-го (а не 2-го [2]) порядка, что допускает одновременное существование трех световых волн. Система уравнений (16), (17) решалась численно в качестве примера для случая $A_{N=1}$-экситона в кристаллах CdS при поляризации света $\mathbf{E} \perp c$.



Дисперсия $n(\omega)$ (сплошные кривые) и $\varkappa(\omega)$ (штриховые) в области основного экситонного резонанса в кристаллах CdS.

1—3 и 1'—3' — три ветви кривых n и $\varkappa$ соответственно. Точки — экспериментальные данные [3], штрихпунктирные кривые — расчет из работы [2].

При этом использованы значения параметров, известные из экспериментов: $\varepsilon_0 = 7.4$, $\hbar\omega_0 = 2.55205$ эВ, $A = 0.0131$ эВ, $\beta = 8 \cdot 10^{-6}$ эВ, $\Gamma = 0.02$ мэВ. Подгоночные параметры не использовались. Результаты расчета приведены на рисунке. В определенных интервалах частот все три корня действительны и положительны. Результаты вычислений хорошо совпадают с экспериментальными значениями $n(\omega)$. Максимальное теоретическое значение n при этих параметрах $n_{\text{м}} = 24.8$ почти совпадает с максимальным экспериментальным значением $n_{\text{м}} = 25$ при той же частоте $\hbar\omega \simeq 2.557$ эВ, в то время как, согласно [2], $n_{\text{м}} \to \infty$ при любом значении Γ.

Визуальное наблюдение разделенных волн *1* и *2* затруднительно, так как n_1 и n_2 близки по величине. В условиях эксперимента [3] пучки расходятся под углом $\sim 4 \cdot 10^{-3}$ рад, центры пучков на экране находятся на расстоянии ~ 8 мкм. Для раздельного наблюдения пучков апертура каждого должна быть в 2—3 раза меньше, чем в [3]. Более доступным является наблюдение спаренного пятна на экране при переходе от частот с $\varkappa_1 \ll \varkappa_2$ к частотам с $\varkappa_1 \gg \varkappa_2$. Это наблюдается в эксперименте: излом на зависимости $n(\omega)$ (см. рисунок) в области $\hbar\omega \sim \sim 2.553$ эВ отражает перемещение спаренного пятна вследствие изменения угла преломления [3, 4].