

НЕЛІНІЙНІСТЬ ПОГЛИНАННЯ ТА ОПТИЧНА БІСТАБІЛЬНІСТЬ ШАРУВАТИХ НАПІВПРОВІДНИКІВ В ЕКСИТОННІЙ ОБЛАСТІ

Методом функцій Гріна досліджується температурна трансформація функції форми смуги екситонного поглинання в шаруватому напівпровіднику з урахуванням нелінійної взаємодії екситонів із хвилями згину. На прикладі PbI_2 2H-політипу встановлено, що ефективне розсіяння екситонів на коливаннях цього типу в області низьких температур (20–40 К) приводить до аномального короткохвильового зсуву максимуму екситонної смуги поглинання та зміни частотних і температурних інтервалів спостереження оптичної бістабільності.

The theoretical investigation of the curve waves role in the process of creating conditions for observing optical bistability in layer semiconductors was performed by the Green function method. Using the 2H-polytype of PbI_2 as an example, we showed that effective exciton scattering by oscillations of this type lead to a short-wave shift of the frequency region of optical bistability realization and decrease of its sizes, the widening of the temperature interval of its observing and the shift of the hysteresis loop into bigger intensities, the decrease of its height and width.

Динамічна нелінійність оптичного поглинання напівпровідникових кристалів в екситонній області частот проявляється у можливості спостереження в них явища внутрішньої оптичної бістабільності (ОБ) [1-3]. Вивченню різноманітних аспектів природи цього явища присвячений цикл теоретичних робіт [4-8], де, зокрема, вказано на можливі особливості його прояву в шаруватих кристалах (ШК). Встановлено, що нелінійності, які сприяють реалізації ОБ при значних інтенсивностях освітлення, пояснюються конкуренцією процесів збудження екситонних станів при освітленні кристала та їх релаксації внаслідок екситон-фононної взаємодії [5]. Взаємодія зі специфічними, характерними для ШК, фононними модами типу хвиль згину (ХЗ) сприяє реалізації непрямих вертикальних фотопереходів, відповідальних за утворення мультистабільних станів [7]. Дана робота присвячена дослідженню ролі ХЗ у процесах реалізації ОБ у шаруватих напівпровідниках, що, на наш погляд, у зазначених роботах вивчене недостатньо. Показано, що розсіяння екситонів на ХЗ, ефективність якого різна в різних кристалах і суттєво залежна від напрямку поширення світла відносно кристалографічної осі, істотно впливає на положення і розміри частотної і температурної областей існування ОБ, а також петлі гістерезису.

Шаруватим кристалам властива істотна анізотропія їх фізичних властивостей, зокрема ефективних мас носіїв заряду [9,10] та оптичних спектрів, у тому числі й екситонних [10,11]. Відмінність взаємодій між атомами всередині шару та між ними приводить до аномалій фононних спектрів таких кристалів – появи у них низькоенергетичних оптичних фононів (НОФ) і специфічної гілки коливань акустичного типу – ХЗ [10]. Саме вони формують вигляд оптичного спектра ШК в екситонній області частот при низьких температурах. Це проявляється в суттєвій відмінності температурних змін екситонної смуги поглинання в цих кристалах порівняно з ізотропними напівпровідниками. Насамперед у шаруватих напівпровідниках, на відміну від ізотропних, у області низьких температур спектральні характеристики (наприклад, положення і висота піка поглинання) залежні від температури. По-друге, оскільки знак константи нелінійної екситон-фононної взаємодії у ШК залежить від напрямку поширення світла відносно кристалографічної осі [11], то напрямок низькотемпературного зсуву максимуму екситонної смуги за шкалою частот при нагріванні ШК може бути різним; у ізотропних кристалах він завжди однаковий – тільки в довгохвильову область [10]. Проте у дийодиді свинцю спостерігається аномальний температурний зсув екси-

тонної смуги – у короткохвильовий бік для різних напрямків поширення світла [12] (рис.1). Це пов'язане з тим, що знак функції нелінійного екситон-фононного зв'язку з ХЗ V_2 залежить також від співвідношення величин ефективних мас електрона й дірки [11], а дийодид свинцю вирізняється з-поміж інших ШК кристалів тим, що останні величини в ньому суттєво анізотропні ($m_e^{\parallel} > m_h^{\parallel}$, $m_e^{\perp} < m_h^{\perp}$) [10,13]. У підсумку знак V_2 виявляється однаковим для обох напрямків поширення світла, що й визначає короткохвильовий зсув.

Очевидно, що відмінності динаміки екситонного спектра ШК, внаслідок особливостей екситон-фононної взаємодії в них, можуть проявитись і в умовах реалізації ОБ. Для вивчення цього питання нами розглянуто модель збудження тривимірного екситона з параболічним законом дисперсії

$$\hbar\omega_{\vec{k}} = \hbar\omega_0 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{ex}}$$

у ШК при його освітленні (тут \vec{k} , $\hbar\omega_{\vec{k}}$, m_{ex} – хвильовий вектор, енергія і ефективна маса екситона). Візьмемо до уваги також два можливих механізми релаксації енергії екситонного збудження – внаслідок взаємодії з ХЗ, для яких $\Omega_{\vec{q}} = \Omega_2 q^2$, та з бездисперсійними оптичними фононами ($\Omega_{\vec{q}} = \Omega_1$) ($\Omega_{\vec{q}}$ і \vec{q} – частота і хвильовий вектор фонона). Перша взаємодія – нелінійна з функцією зв'язку [11,15]:

$\xi(T)$, меВ

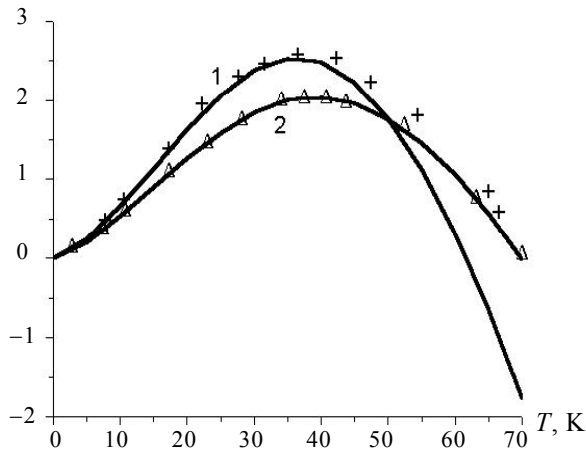


Рис. 1. Температурні залежності спостережуваних [12] і розрахованих [14] (суцільні лінії) значень ξ зсуву максимуму екситонної смуги поглинання у $2H\text{-PbI}_2$ для різних напрямків поширення світла відносно кристалографічної осі \vec{c} : $\vec{k} \parallel \vec{c}$ (1) та $\vec{k} \perp \vec{c}$ (2)

$$V_2(q, -q) = \pm f_0 \Omega_2 m_0 \left(\frac{1}{m_h (1 + \alpha_h q^2)^2} - \frac{1}{m_e (1 + \alpha_e q^2)^2} \right) q \equiv f_0 \Omega_2 F_2(q) q, \quad (1)$$

а друга – лінійна. Причому [16]

$$V_1^2(q) = F_0 \Omega_1 \left[\frac{1 - \alpha_e q^2}{(1 + \alpha_e q^2)^2} - \frac{1 - \alpha_h q^2}{(1 + \alpha_h q^2)^2} \right]^2 \equiv F_0 \Omega_1 F_1(q), \quad (2)$$

де f_0 і F_0 – константи відповідних взаємодій, $a_{ex} = \varepsilon(m_e + m_h)/(2m_e m_h)$ – екситонний радіус, $\alpha_i = (a_{ex} m_i)^2 / (2(m_e + m_h))^2$ ($i=e, h$), ε – діелектрична проникність кристала. Знак плюс у (1) відповідає випадку поширення світла вздовж шару, мінус – перпендикулярно до нього [11]. Тоді, у припущенні слабого екситон-фононного зв'язку і збудження найнижчого екситонного стану, коефіцієнт поглинання світла на частоті ω

$$\alpha(\omega) = 2\pi \cdot |D_0|^2 \frac{\Gamma}{(\omega - \omega_0 - \Delta)^2 + \Gamma^2} = 2\pi \cdot |D_0|^2 \cdot S(\omega), \quad (3)$$

де D_0 – параметр екситон-фотонної взаємодії, Δ і Γ – дійсна і уявна частини масового оператора функції Гріна. Врахування екситон-фононної взаємодії у другому порядку теорії збурень дозволяє встановити для вибраної моделі частотну і температурну залежності масового оператора

$$M(\omega, T) = M_1(\omega, T) + M_2(T),$$

де

$$M_1(\omega, T) = \sum_{\vec{q}} V_1^2(\vec{q}) \left(\frac{1 + n_{\vec{q}} + N_{\vec{q}}}{\omega - \omega_{\vec{q}} - M_2(T) - \Omega_{\vec{q}} + i\eta} + \frac{n_{\vec{q}} - N_{\vec{q}}}{\omega - \omega_{\vec{q}} - M_2(T) + \Omega_{\vec{q}} + i\eta} \right), \quad (4)$$

$$M_2(T) = \sum_{\vec{q}} V_2(\vec{q}, -\vec{q})(1 + 2n_{\vec{q}}), \quad (5)$$

$\eta \rightarrow +0$, а

$$n_{\vec{q}} = \left[\exp\left(\frac{\hbar\Omega_{\vec{q}}}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1}, \quad N_{\vec{k}} = \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_{\vec{k}} - \mu}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1} -$$

числа заповнення фононних і екситонних станів. Хімічний потенціал екситонів μ визначає їх концентрацію у кристалі об'ємом V при температурі T :

$$N = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} N_{\vec{k}}. \quad (6)$$

Таблиця 1. Межі частотної (при $T=45$ К) і температурної областей реалізації ОБ у PbI_2 ($w=\hbar(\omega - \omega_0)/L$)

f_0	w_1	w_2	w_s	$T_1, \text{К}$	$T_2, \text{К}$
0,0003	-0,00348	-0,00313	-0,00335	39	110
0,003	-0,00345	-0,00310	-0,00331	37	115
0,01	-0,00318	-0,00301	-0,003085	35	117

Співвідношення (4) і (5) враховують внесок у масовий оператор процесів лінійної взаємодії екситонів з оптичними фононами та нелінійної – з акустичними (ХЗ) [17]. Замінюючи у них підсумовування за \vec{q} на інтегрування у межах зони Бріллюена за безрозмірною змінною $y=aq/\pi$ (a – постійна ґратки), одержано вигляд частотно-температурних залежностей дійсної

$$\Delta(\omega, T) = \Delta_1(\omega, T) + \Delta_2(T) \quad (7)$$

та уявної

$$\Gamma(\omega, T) = \Gamma_0 + \frac{\pi}{2} F_0 \Omega_1 [F_1(q_+) (n_1(T) - N_{q_+}) + F_1(q_-) (1 + n_1(T) + N_{q_-})] \quad (8)$$

частин масового оператора. Тут Γ_0 – радіаційна ширина екситонного рівня поглинання кристалу на заданій частоті.

$$\Delta_1(\omega, T) = F_0 \Omega_1 [(n_1(T) - N_{q_+}) I(\omega + \Omega_1) + (1 + n_1(T) + N_{q_-}) I(\omega - \Omega_1)], \quad (9)$$

$$\Delta_2(T) = f_0 \Omega_2 \int_0^1 [1 + 2n_2(y, T)] F_2(y) y^2 dy, \quad (10)$$

$$q_{\pm} \equiv \sqrt{\omega - \omega_0 - M_2(T) \pm \Omega_1},$$

$$I(z) \equiv \int_0^1 \frac{F_1(y) y dy}{z - \omega_0 - \Delta_2 - Ly^2},$$

Дійсно, внаслідок наявності зв'язку між хімпотенціалом екситонів та їх концентрацією у кристалі, числа заповнення $N_{q_{\pm}}$ виявляються залежними від N . Значення цієї величини визначається інтенсивністю освітлення кристала. Тому залежність між інтенсивностями освітлення I_0 та світла, що пройшло через кристал I , стає нелінійною. Це приводить до можливості існування певних частотних і температурних інтервалів, у яких одній величині інтенсивності I_0 буде відповідати два різних значення I , тобто стан ОБ [5].

У стані термодинамічної рівноваги системи екситонів, фононів і випромінювання виконуються рівняння балансу [4]

$$I_0 \alpha(\omega, T, N) - N = 0, \quad (11)$$

яке, з урахуванням закону Бугера-Ламберта, замикає $n_{1,2}$ і $N_{q_{\pm}}$ – числа заповнення фононів (оптичних та ХЗ) і екситонів; $L = \pi^2 \hbar / (2a^2 m_{ex})$ – ширина екситонної зони.

Отже, задавши значення відповідних параметрів, можна розрахувати спектральну залежність коефіцієнта поглинання при довільній температурі кристала. При цьому значення Δ , Γ , а тому і коефіцієнт поглинання α , будуть визначатися не тільки частотою ω і температурою T , але й інтенсивністю для визначення залежності $I(I_0)$ [5]. Вважаючи концентрацію екситонів змінною, що досягається зміною I_0 , із системи рівнянь (3), (7)–(11) можна знайти коефіцієнт поглинання для фіксованих значень частоти і температури, а за ним (із закону Бугера-Ламберта) – інтенсивність I випромінювання на виході з кристала певної товщини d , або його пропускання $\tau = I/I_0$ як функцію I_0 . Внаслідок нелінійності поглинання, можливе існування області зміни I_0 (при фіксованих ω і T), всередині якої ці величини стають неоднозначними [4,5]. Розміри областей існування ОБ можуть змінюватись при зміні частоти, температури та, очевидно, параметра взаємодії екситонів із ХЗ f_0 .

З метою дослідження впливу величини f_0 на положення і розміри частотної і температурної областей існування ОБ у ШК, нами реалізовано описану модель розрахунків на прикладі найпоширенішого $2H$ -політипу дийодиду свинцю [10], що характеризується сильною екситон-фононою взаємодією з ХЗ [12]. Аналіз розрахунків, реалізованих за різних значень константи f_0 у області зміни частот (при фіксованій температурі) та температур (на реперній частоті ω_s , значення якої залежить від величини f_0), при яких має місце ОБ, дозволяє встановити, що збільшення функції зв'язку з ХЗ приводить до

- короткохвильового зсуву частотної області реалізації ОБ $\Delta\omega = \omega_2 - \omega_1$ і зменшення її розмірів (таблиця 1);
- розширення температурної області реалізації ОБ $\Delta T = T_2 - T_1$ (таблиця 1);
- зсуву петлі гістерезису в область більших інтенсивностей, зменшення її висоти і ширини (рис. 2).

Зростання величини реперної частоти спостереження ОБ ω_s при збільшенні f_0 (таблиця 1) пояснюється зсувом у короткохвильову область максимуму смуги екситонного поглинання вна-

слідок взаємодії екситонів з ХЗ. Аналогічний короткохвильовий зсув частотної області реалізації ОБ і зменшення її розмірів у ізотропних кристалах викликається зменшенням константи лінійної екситон-фононної взаємодії F_0 [5]. З огляду на це можна стверджувати, що вплив ХЗ на умови спостереження ОБ протилежний до впливу оптичних фононів.

Нелінійна екситон-фононна взаємодія відповідальна також за зменшення мінімальної температури реалізації ОБ T_1 . У $2H-PbI_2$ лінійний механізм екситон-фононної взаємодії як канал дисипації енергії екситонного збудження, що сприяє бістабільності, актуалізується при $T \geq 40$ К [12], а низькоенергетичні коливання типу ХЗ збуджуються при нижчих температурах. Тому чим сильніша взаємодія екситонів з цими коливаннями, тим нижчі температури можливого спостереження ОБ. Зауважимо, що частотний інтервал області ОБ у $2H-PbI_2$ досить вузький ($1,7-3,5$ см $^{-1}$) як і у випадку HgI_2 , лінійна екситон-фононна взаємодія у якому характеризується близьким значенням константи F_0 [3]. Там це явище впевнено спостерігалось при меншій температурі – 25 К (її зниження приводить до зменшення $\Delta\omega$ [5]), але вищої від точки збудження оптичних фононів у цьому ШК (12 К), що свідчить про слабкість нелінійної екситон-фононної взаємодії у HgI_2 порівняно з PbI_2 , шаруватість структури якого більша [12].

Розширення температурної області реалізації ОБ у ШК з ефективним розсіянням на ХЗ, порівняно з ізотропними, дозволяє припустити, що спостереження явища безрезонаторної ОБ у них доступніше, але у вузькому частотному інтервалі.

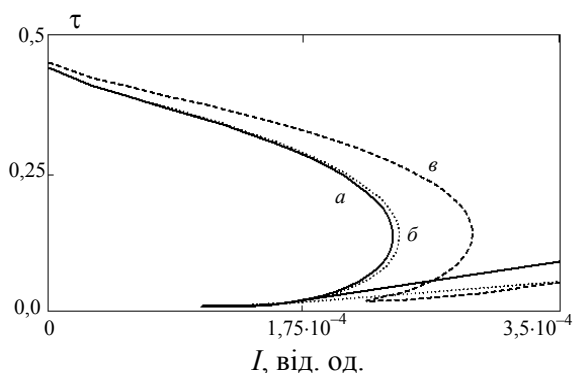


Рис. 2. Залежність пропускання τ від інтенсивності освітлення I , розрахована для випадку пластинки дийодиду свинцю товщиною 20 мкм на відповідних реперних частотах (таблиця 1) при 45 К і різних значеннях константи екситон-фононної взаємодії f_0 : 0,0003 (а), 0,003 (б), 0,01 (в)

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Miller D.A.B. Optical bistability and differential gap resulting from absorption increasing with excitation // J. Opt. Soc. Amer. B. – 1984. – 1, No.6. – P.857-873.
2. Henneberger F. Optical bistability in the absorption edge of semiconductor // Phys. Stat. Sol. B. – 1986. – 137, No. 2. – P.371-432.
3. Бродин М.С., Блонский И.В., Блажков В.С. и др. Оптическая бистабильность в области экситонного поглощения кристаллов HgI_2 // УФЖ. – 1989. – 34, №2. – С.178-181.
4. Крехивский О.В., Ницович Б.М., Фаленчук В.Д. Теория оптической бистабильности в области экситонных резонансов. – Киев, 1987. – (Препр. / ИФ АН УССР: № 27).
5. Крехивский О.В., Ницович Б.М. Теория абсорбционной бистабильности в области экситонных резонансов // УФЖ. – 1989. – т. 34, № 6. – С. 863-868.
6. Ницович Б.М., Крехивский О.В., Вивчарюк В.Н. Температурная оптическая бистабильность экситонных возбуждений // УФЖ. – 1992. – 37, №12. – С.1818-1822.
7. Ницович Б.М., Крехивский О.В. Оптическая мультистабильность в слоистых полупроводниках // ФТТ. – 1989. – 31, №3. – С.323-325.
8. Ницович Б.М., Зенкова К.Ю. Поляризационные аномалии экситонных спектров // ФТТ. – 1996. – 38, №5. – С.1626-1628.
9. Minder R., Ottaviani G., Canaly C. Charge transport in layer semiconductors // J. Phys. Chem. Sol. – 1976. – 37, No. 2. – P.417-424.
10. Бродин М.С., Блонский И.В. Экситонные процессы в слоистых кристаллах. – К.: Наук. думка, 1986.
11. Ницович Б.М. Электрон-фононное взаимодействие в слоистых полупроводниках // ФТТ. – 1986. – 28, №8. – С.2424-2427.
12. Бродин М.С., Блонский И.В., Григорчук Н.И. и др. Нелинейное экситон-фононное взаимодействие и его анизотропия в слоистых кристаллах // УФЖ. – 1987. – 32, №3. – С.394-399.
13. Крамар Н.К., Крамар В.М., Ницович Б.М. Розрахунок ефективних мас носіїв струму у шаруватому напівпровідниковому кристалі PbI_2 // Фізика і хімія твердого тіла. – 2001. – 2, №3. – С.423-431.
14. Kramar V.M., Kramar N.K., Nitsovich B.M. Temperature behavior of an exciton absorption bands in layer crystal PbI_2 // Ukr. J. Phys. Optics. – 2002. – 3, No. 2. – P.97-105.
15. Лубченко А.Ф., Ницович В.М., Ткач Н.В. Дисперсия тензора диэлектрической проницаемости ионных кристаллов в экситонной области // ТМФ. – 1974. – 21, №3. – С.415-423.
16. Nitsovich B.M., Zenkova C. Yu., Derevyunchuk O.V. Magneto-optical correlation of the exciton series // Proc. SPIE. – 2002. – 4607. – P.332-338.
17. Ткач Н.В. О роли линейного и квадратичного взаимодействия экситонов с акустическими фононами в формировании экситонной полосы поглощения света // УФЖ. – 1979. – 24, №12. – С.1785-1789.