

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ВЫРОЖДЕННОМ ПОЛУПРОВОДНИКЕ (Pb, Sn)Se

Л.К.Водопьянов, Л.А.Фальковский¹⁾, Дж.Ирвин²⁾, С.Хименис²⁾,

Физический институт им. П.Н.Лебедева АН СССР
117924, Москва

¹⁾ Институт теоретической физики им. Л.Д.Ландау АН СССР
117334, Москва

²⁾ Simon Fraser University, Burnaby, Canada

Поступила в редакцию 22 апреля 1991 г.

Наблюдаемый широкий максимум в спектре интерпретируется как электронный вклад в комбинационное рассеяние света.

Квазибинарные соединения $Pb_{1-x}Sn_xSe$ привлекают внимание своими необычными физическими свойствами. В них при изменении состава и температуры происходит инверсия зон, при этом ширина запрещенной щели меняется от 0,3 эВ до нуля. Кроме того рассматриваемые соединения обладают высокой диэлектрической проницаемостью, большой подвижностью и малой эффективной массой носителей заряда. Фононный спектр сплавов (Pb, Sn)Se был впервые изучен с помощью нейтронов в работах ^{1,2}, а в работе ³ проведен расчет этих спектров. Нейтронные методы исследования сложны и требуют совершенных кристаллов больших размеров.

В настоящем сообщении приведены результаты первых исследований комбинационного рассеяния света (КР) в полупроводниковых соединениях $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($x = 0,07 - 0,42$). Высокая концентрация носителей, непрозрачность исследуемых кристаллов для возбуждающего лазерного излучения и низкое эффективное сечение рассеяния делают проблему КР спектроскопии весьма сложной. Для получения надежных экспериментальных результатов нами использовалась лабораторная модель рамановского спектрометра с компьютерным управлением и регистрацией слабого рассеянного света с помощью оптического многоканального анализатора (ОМА) с накопителем сигнала ИТТ F4146 "Meriscope". Весь спектр одновременно регистрировался 10^3 каналами микроканальной пластины с позиционно чувствительным резистивным анодом. Такая система характеризуется предельно низким темновым током, составляющим примерно 0,05 счета/с. Эффективность регистрации при заданном отношении сигнал/шум возрастает по сравнению со стандартной одноканальной схемой примерно в 10^3 раз. Задача подавления рассеянного света вблизи возбуждающей линии решалась путем создания тройного монохроматора на галлографических дифракционных решетках, включенных по схеме "вычитания дисперсии". Применение монохроматора снижало интенсивность рассеянного света на 4 - 5 порядков.

Измерение спектров КР проводилось в геометрии обратного рассеяния. Для предотвращения перегрева образца в канале лазерного пучка устанавливалась цилиндрическая линза. Измерения проводились в вакууме, образец помещался на хладопроводе гелиевого криостата с регулируемой температурой. Поверхность образцов подвергалась механической шлифовке на алмазном порошке с последующим электролитическим травлением.

Первые измерения спектров КР не дали положительных результатов - сигнал появлялся на уровне шума. Для повышения интенсивности сигнала был

использован эффект резонансного усиления, когда энергия возбуждающего света близка к энергии одного из электронных переходов. Для точки L в рассчитанной зонной схеме ⁴ частота одного из электронных переходов составляет 2,4 эВ. Она близка к частоте зеленой линии Ag^+ -лазера 514,5 нм. Поэтому дальнейшие измерения проводились на этой линии, что позволило существенно увеличить отношение сигнала к шуму.

На рис. 1 представлен спектр КР для образца $Pb_{0,93}Sn_{0,07}Se$, снятый при $T = 16K$ в поляризации $z(x, \bar{y})\bar{z}$ (возбуждающий свет поляризован по x , а рассеянный - не поляризован). Четко проявляются два широких максимума при 85 и 150 cm^{-1} . При повышении температуры до 300 К (рис. 2) характер спектра меняется. Наблюдается падение интенсивности с частотой. Резкий всплеск при 80 cm^{-1} связан с дефектом одного из каналов оптического многоканального анализатора. Для образцов твердых растворов других составов получены аналогичные спектры.

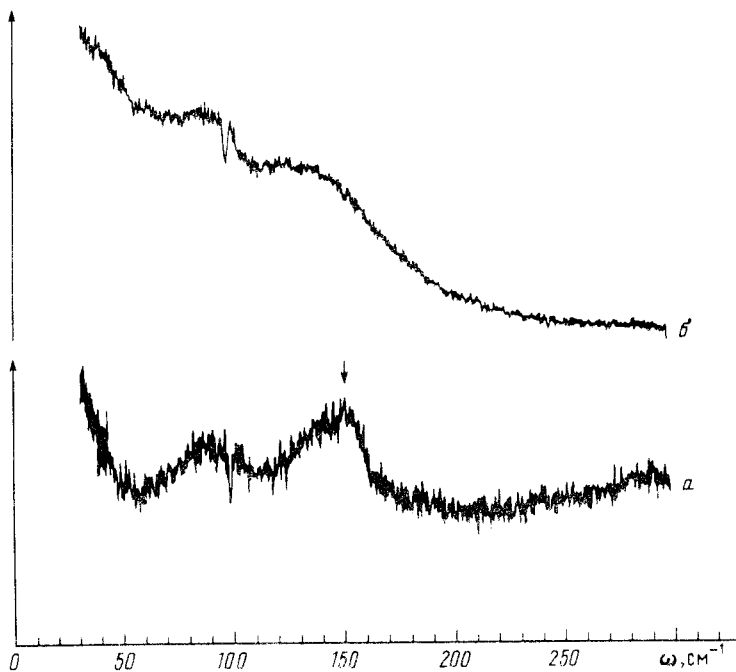


Рис. 1. Спектр комбинационного рассеяния света для образца $Pb_{0,93}Sn_{0,07}Se$, снятый при возбуждении линией 514,5 нм Ag^+ -лазера в поляризации $x(z, y)z$: $a - T = 16K$, $b - T = 300K$

Перечислим элементарные возбуждения, которые могли бы приводить к наблюдаемым особенностям спектра КР. Прежде всего это фононы. Их частоты известны из нейтронных измерений ^{1,2}. Для состава $x = 0,07$ наблюдаются $\omega_{TO} = 44 cm^{-1}$ и $\omega_{LO} = 140 cm^{-1}$. Они не соответствуют максимумам интенсивности КР и не обнаруживаются здесь, что объясняется правилами отбора для кристалла с центром инверсии.

Далее рассмотрим плазмоны или поляритоны. Их частоты определяются дисперсионным уравнением

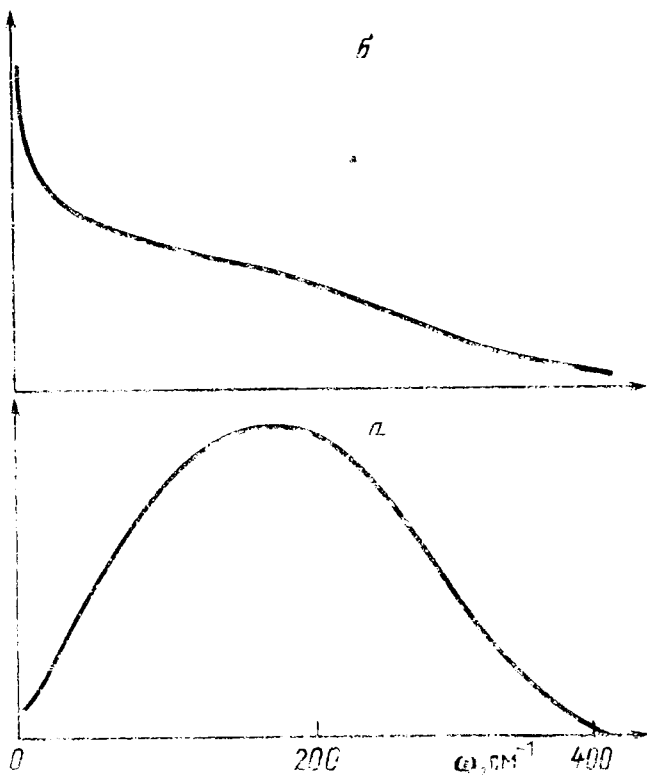


Рис. 2. Рассчитанная согласно (4) интенсивность КР при $n = 5,3$ и $\kappa = 2$: $a - T = 16\text{К}$, $b - T = 300\text{К}$

$$\left(\frac{cq}{\omega}\right)^2 = \epsilon_{\infty} + \frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2}(\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}) - \frac{\omega_n^2}{\omega^2} \quad (1)$$

Первые два слагаемых в правой части дают вклад полярной решетки в диэлектрическую проницаемость, последнее - вклад носителей с плазменной частотой $\omega_n = (4\pi N e^2 / m)^{1/2}$. Вышеприведенным значениям ω_{LO} и ω_{TO} соответствуют $\epsilon_0 = 300$ и $\epsilon_{\infty} = 28$ ($\omega_{LO} = \omega_0 \sqrt{\epsilon_0 / \epsilon_{\infty}}$, $\omega_{TO} = \omega_0$). В образце с $x = 0,07$ носителями являются электроны с эффективной массой $m = 0,07 \cdot 10^{-27}$ г концентрацией $N = 3 \cdot 10^{18}$ см $^{-3}$, плазменной частотой $\omega_n = 1,9 \cdot 10^3$ см $^{-1}$, фермиевским импульсом $k_F = 2,8 \cdot 10^6$ см $^{-1}$ и скоростью $v_F = 4 \cdot 10^7$ см/с. Как можно увидеть из уравнения (1), спектр поляритонов состоит из двух областей $0 < \omega < \omega_0$ и $\omega > \omega_n / \sqrt{\epsilon_{\infty}} = 360$ см $^{-1}$; при определении границ областей использовано выполняемое в нашем случае условие $\omega_n^2 \gg \epsilon_0 \omega_0^2$. Таким образом, в интересующем нас частотном интервале поляритонов нет.

Обратимся теперь к электронным возбуждениям. Их свойства существенно зависят от соотношения между длиной свободного пробега носителей l и расстоянием $\lambda \sim 10^{-5}$ см, на котором изменяется электромагнитное поле в образце. При малых $l \ll \lambda$ рамановское рассеяние происходит на диффузонах⁶, при больших - на электрон-дырочных парах⁵. Длина l оценивается по подвижности, которая при низких температурах достигает значения $\mu \sim 5 \cdot 10^4$ см 2 /В · с. Отсюда находим $l = \frac{\mu \hbar k_F}{e} = 10^{-4}$ см. Таким образом, возбуждения представляют собой электрон-дырочные пары, которые при условии $q \ll k_F$ занимают частотный интервал $0 < \omega < v_F q$. Их вклад в коррелятор плотности пропорционален отношению $\omega / v_F q$. Для того чтобы получить интенсивность рассеянного света, коррелятор плотности надо проинтегрировать по q с усредненным по ферми-поверхности квадратом матричного элемента $f = m_{\alpha\beta}^{-1} e_{\alpha}^{(i)} e_{\beta}^{(s)}$ и фактором

$$R(q) = \left\{ [q^2 - (n^2 - \kappa^2) \left(2 \frac{\omega^{(i)}}{c} \right)^2]^2 + 2^6 n^2 \kappa^2 \left(\frac{\omega^{(i)}}{c} \right)^4 \right\}^{-1}, \quad (2)$$

учитывающим распределение электрического поля в образце. Направление электрического поля в падающем и рассеянном свете задается векторами $\vec{e}^{(i)}$, $\vec{e}^{(s)}$, а эффективная масса зависит от соответствующих частот

$$m_{\alpha\beta}^{-1} = m_0^{-1} \delta_{\alpha\beta} + \frac{1}{m_0^2} \sum_v \left(\frac{P_{cv}^\alpha P_{vc}^\beta}{\epsilon_F - \epsilon_v(k) + \omega^{(i)}} + \frac{P_{cv}^\beta P_{vc}^\alpha}{\epsilon_F - \epsilon_v(k) - \omega^{(s)}} \right), \quad (3)$$

где индексом v нумеруются энергетические зоны, переход в которые дает эффект резонансного усиления.

Заметим, что обычная эффективная масса на дне зоны проводимости дается выражением (3) с $k = 0$ и $\omega^{(i)} = \omega^{(s)} = 0$, и основной вклад в нее возникает от самой близкой зоны v , для которой мал знаменатель в 3 . С этим замечанием связан вопрос о дебаевской экранировке флуктуаций плотности. Для рассматриваемой концентрации носителей дебаевский радиус $r_D = 10^{-6}$ см мал по сравнению с характерным значением $\lambda \sim q^{-1}$, определяемым при интегрировании выражения (2), в котором n и κ коэффициенты преломления и затухания на частоте падающего света $\omega^{(i)} \approx \omega^{(s)}$. При $\kappa \ll n$ характерное значение q совпадает с удвоенным волновым вектором света в среде, что соответствует геометрии обратного рассеяния. Дебаевская экранировка появляется при учете кулоновского взаимодействия носителей. При этом для малых переданных частот и волновых векторов из матричного элемента f вычитается его усредненное по ферми-поверхности значение 7 . Это означает, что для наблюдения в условиях дебаевского экранирования рамановского рассеяния матричный элемент должен быть анизотропен. Эффект резонансного усиления особенно существен, если эффективная масса на дне зоны изотропна. При этом и поляризационная зависимость носит специфический характер - в отличие от изотропного случая рассеяние наблюдается и при скрещенных поляризациях падающего и рассеянного света.

Интенсивность рассеянного света пропорциональна

$$I = \frac{\omega}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_0 T}}} \int_{\omega/v_F}^{\infty} R(q) \frac{dq}{q} \sim \frac{\omega}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_0 T}}} \left\{ \ln \left[\left(1 + \frac{x^2 + y^2}{z^2} \right)^2 - \left(2 \frac{x}{z} \right)^2 \right] + \frac{x^2 - y^2}{xy} \left(\operatorname{arctg} \frac{z+x}{y} - \operatorname{arctg} \frac{z-x}{y} \right) \right\} \quad (4)$$

где

$$z = \omega/v_F, \quad \omega = \omega^{(i)} - \omega^{(s)}, \quad x + iy = 2 \frac{\omega^{(i)}}{c} [n^2 - \kappa^2 + 2in\kappa]^{1/2}.$$

Коэффициент преломления для $\lambda = 514,5$ нм равен $n = 5,3$, коэффициент затухания в условиях резонансного поглощения не измерен. Мы построили зависимость (4) при нескольких значениях κ . На кривой имеется один максимум, который смещается в область меньших переданных частот при увеличении κ . Изменяется и его форма - он становится более симметричным при увеличении κ . Наиболее близко соответствует наблюдаемому при $T = 16$ К спектру параметр $\kappa = 2$, для которого и построены при двух значениях температур зависимости, приведенные на рис. 2. Форма и положение максимума

неплохо соответствует экспериментальному при $\omega = 150 \text{ см}^{-1}$. У нас нет достоверных соображений о природе второго экспериментального наблюдаемого максимума при $\omega \approx 85 \text{ см}^{-1}$.

Литература

1. Vodopyanov L.K., Kucherenko I.V., Shotov A.P., Scherm. R. Proc. Int. conf. Lattice dynamics, 1978, Paris, p. 673.
 2. Водопьянов Л.К., Кучеренко И.В., Шотов А.П., Шерм Р. Письма в ЖЭТФ, 1978, 27, 101.
 3. Prakash S., Gupta H., Tripathi B. J. Chem. Phys., 1983, 7, 663.
 4. Lin P., Kleiman L. Phys. Rev., 1966, 142, 478.
 5. Абрикосов А.А., Фальковский Л.А. ЖЭТФ, 1961, 40, 263.
 6. Фальковский Л.А. ЖЭТФ, 1989, 95, 1146.
 7. Абрикосов А.А., Генкин В.М. ЖЭТФ, 1973, 65, 842.
-