

PLAZMON – DVO FONON INTERAKCIJA KOD $PbTe_{0,95}S_{0,05}$ i $Pb_{0,98}Mn_{0,02}Te$ LEGURA

J. Trajić, N. Romčević, M. Romčević, *Institut za fiziku, P.O. Box 68, Pregrevica 118, 11080 Beograd, SCG*
V.N. Nikiforov, *Moskovski državni univerzitet, 119899 Moskva, Ruska Federacija*

Sadržaj – U ovom radu su predstavljeni rezultati proučavanja plazmon – dvo fonon interakcije kod $PbTe_{0,95}S_{0,05}$ i $Pb_{0,98}Mn_{0,02}Te$ monokristala. Snimani su spektri refleksije u dalekoj infracrvenoj oblasti, na različitim temperaturama. Prilikom analize eksperimentalnih rezultata korišćena je dielektrična funkcija koja unapred računa postojanje plazmon – dvo fonon interakcije. Na taj način smo iz najboljeg fita dobili učestanosti tri spregnuta moda, a zatim izračunali vrednosti dva LO moda i plazma učestanosti (ω_p). Dobili smo veoma dobro slaganje vrednosti dobijenih iz najboljeg fita eksperimentalnih spektara i teorijski predviđenih vrednosti.

1. UVOD

Apsorpcija elektromagnetnog zračenja slobodnim nosiocima je uslovljena njihovom interakcijom sa rešetkom. Naime, i individualni prelazi nosilaca i generacija plazmona je povezana sa apsorpcijom. Sprezanje elementarnih ekscitacija je proučavano od strane više autora [1-3]. Optička svojstva IV-VI uskozonskih poluprovodnika se proučavaju zbog njihove primene u infracrvenim uređajima (laseri i prijemnici).

Jedinjenja na bazi olovo – telurida spadaju u IV-VI grupu uskozonskih poluprovodnika. Širina zabranjene zone im zavisi od sastava i može imati vrednosti od približno 0 do 0,3 eV [4-8]. Poznato je (vidi na primer Ref. [6] i tamo citiranu literaturu) da kod olovo-halogenida i njihovih čvrstih rastvora prirodni elektro-aktivni tačkasti defekti (šupljine i intersticijalni atomi) dovode do stvaranja energetskih stanja koja se nalaze ispod dna provodne zone (donorski defekti) ili iznad vrha valentne zone (akceptori). To dovodi do visoke koncentracije slobodnih nosilaca. Usled toga, fononska svojstva ovih mešanih kristala još uvek nisu dovoljno proučena.

2. EKSPERIMENT

Uzorci $PbTe_{1-x}S_x$ su dobijeni "vapour-liquid-solid" (VLS) tehnikom [6], na Moskovskom državnom univerzitetu. Kao polazni materijali korišćeni su metali i halogenidi visoke čistoće. Koncentracija PbS u leguri $PbTe_{1-x}S_x$ je određena primenom rentgenostrukturne analize korišćenjem mikroanalizatora "Catebax" (MGU - Moskva).

Rast monokristala $Pb_{0,98}Mn_{0,02}Te$ je ostvaren modifikovanom Bridgeman-ovim metodom, na Hemijskom fakultetu Moskovskog Državnog Univerziteta, pri čemu su kao polazne komponente korišćeni materijali visoke čistoće. Koncentracija Mn je određena hemijskom analitičkom metodom, na način koji je opisan u [9].

Spektri refleksije u dalekoj infracrvenoj oblasti su snimljeni BOMEM i Bruker 113v spektrometrima.

3. ANALIZA SPEKTARA REFLEKSIJE I POSTUPAK FITOVANJA

Teorijski model dielektrične funkcije je detaljno diskutovan od strane više autora [10,11]. Niskofrekventna dielektrična svojstva PbTe se mogu opisati sa najmanje dva klasična oscilatora ($l \geq 2$) koja odgovaraju TO modovima, kojima je dodat Drude-ov član koji opisuje doprinos slobodnih nosilaca [11]:

$$\varepsilon_S(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_{k=1}^l \frac{\varepsilon_\infty(\omega_{LOk}^2 - \omega_{TOk}^2)}{\omega_{TOk}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TOk}\omega} - \frac{\varepsilon_\infty\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma_p)} \quad (1)$$

gde su ω_{LOk} i ω_{TOk} učestanosti longitudinalnih i transverzalnih optičkih fonona, ω_p je plazma učestanost, γ_{TOk} i γ_p prigušenja fonona i plazme i ε_∞ - visokofrekventna dielektrična propustljivost.

U sistemu PbTe, LO – modovi rešetke ($\omega_{LO,PbTe}$) su pod jakim uticajem plazmon moda (ω_p) slobodnih nosilaca, usled čega dolazi do pojave kombinovanih (spregnutih) plazmon – LO fonon modova [3]. Spregnuti plazmon – fonon modovi se definišu kao nule realnog dela dielektrične funkcije (1) ($\text{Re}\{\varepsilon_S\}=0$). U slučaju sprezanja dva LO fonona i plazme, učestanosti tri spregnuta moda (ω_1 , ω_2 i ω_3) se dobijaju rešavanjem jednačine:

$$\omega^6 - A\omega^4 - B\omega^2 - C = 0, \quad (2)$$

gde su:

$$A = \omega_{LO1}^2 + \omega_{LO2}^2 + \omega_p^2, \\ B = \omega_{LO1}^2 \cdot \omega_{LO2}^2 + \omega_p^2 (\omega_{TO1}^2 + \omega_{TO2}^2), \\ C = \omega_{TO1}^2 \cdot \omega_{TO2}^2 \cdot \omega_p^2$$

Dielektrična funkcija koja unapred računa sprezanje m plazmona i n fonona, kao i postojanje s nespregnutih fononskih modova osnovnog kristala je oblika [12]:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty \frac{\prod_{j=1}^{m+n} (\omega^2 + i\gamma_{fj}\omega - \omega_{fj}^2)}{\omega^m \prod_{j=1}^m (\omega + i\gamma_{pj}) \prod_{j=1}^n (\omega^2 + i\gamma_{fj}\omega - \omega_{fj}^2)} \cdot \prod_{k=1}^s \frac{\omega^2 + i\gamma_{LOk} - \omega_{LOk}^2}{\omega^2 + i\gamma_{TOk} - \omega_{TOk}^2} \quad (3)$$

gde se prvim količnikom opisuje sparivanje m plazmona i n fonona a drugim nespareni fononski modovi osnovnog kristala. Učestanosti i prigušenja spregnutih plazmon – fonon modova su date sa ω_j i γ_j ; ω_j i γ_j su učestanosti i prigušenja transverzalnih fonona, dok su ω_{TOk} , ω_{LOk} , γ_{TOk} , i γ_{LOk} – transverzalne i longitudinalne učestanosti nesparenih fonona i njihova prigušenja. Takođe je $l = m + s$. U slučaju sprezanja jednog plazmona i dva fonona, plazma učestanost i vrednost LO moda se određuju postupkom dekuplovanja.

$$\omega_p = \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3}{\omega_1 \omega_2},$$

$$\omega_{\text{LO}1,2}^2 = \frac{1}{2}(\omega_1^2 + \omega_2^2 + \omega_3^2 - \omega_p^2) \pm \sqrt{\left(\frac{1}{4}(\omega_1^2 + \omega_2^2 + \omega_3^2 - \omega_p^2)^2 - \omega_1^2 \omega_2^2 - \omega_1^2 \omega_3^2 - \omega_2^2 \omega_3^2 + \omega_p^2(\omega_1^2 + \omega_2^2)\right)}$$

Parametri se usaglašavaju automatski, fitovanjem teorijskih (R) i eksperimentalnih (R_e) koeficijenata refleksije, primenom metode najmanjeg kvadrata u k proizvoljno uzetih tačaka:

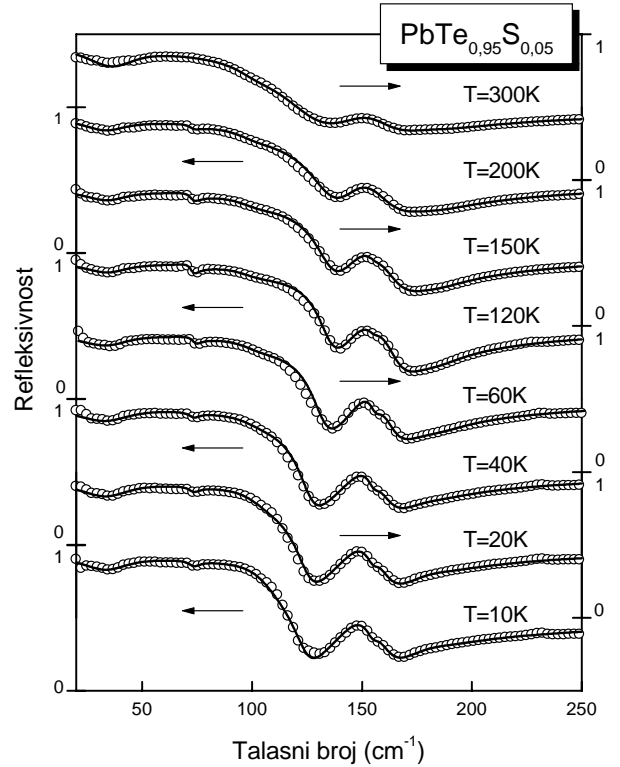
$$\chi = \sqrt{\frac{1}{k} \sum_{j=1}^k (R_{ej} - R_j)^2}, \quad R = \left| \frac{\sqrt{\epsilon} - 1}{\sqrt{\epsilon} + 1} \right|^2 \quad (5)$$

gde je ϵ dato jednačinom (1) ili (3). Vrednost χ se minimizira dok ne postane uporediva sa uobičajenom eksperimentalnom greškom. Praktično, za sve uzorke greška prilikom određivanja sopstvenih učestanosti i koeficijenata prigušenja iznosi oko 3-6% i 10-15%, respektivno.

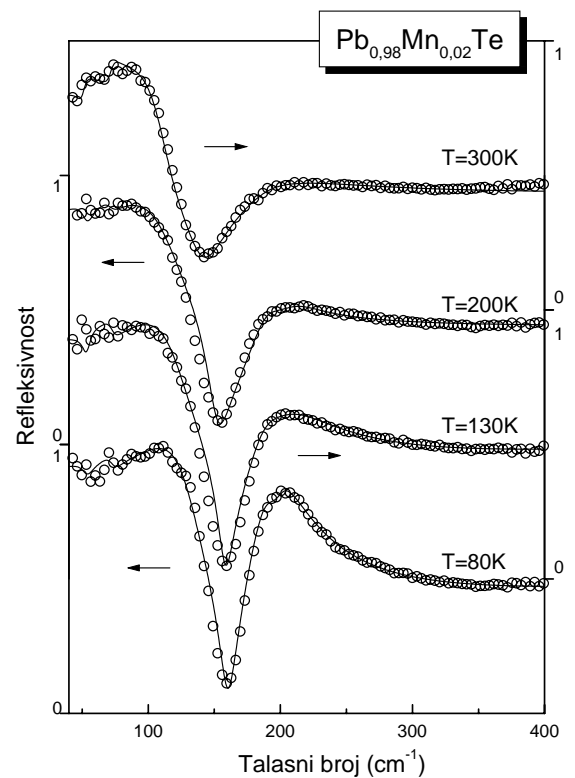
4. REZULTATI I DISKUSIJA

Infracrveni spektri refleksije monokristalnih uzoraka $\text{PbTe}_{0,95}\text{S}_{0,05}$ i $\text{Pb}_{0,98}\text{Mn}_{0,02}\text{Te}$ prikazani su na Sl. 1 i 2. Eksperimentalni podaci su predstavljeni kružićima, dok je puna linija dobijena korišćenjem dielektrične funkcije date jednačinom (3). Kao rezultat najboljeg fita dobili smo učestanosti spregnutih modova, a zatim smo izračunali vrednosti za $\omega_{\text{LO}1}$, $\omega_{\text{LO}2}$ i ω_p , kako je objašnjeno u delu 3 ovog rada. Karakteristični parametri dobijeni na ovaj način predstavljeni su na Sl. 3 za slučaj $\text{PbTe}_{0,95}\text{S}_{0,05}$ i Sl. 4 za $\text{Pb}_{0,98}\text{Mn}_{0,02}\text{Te}$.

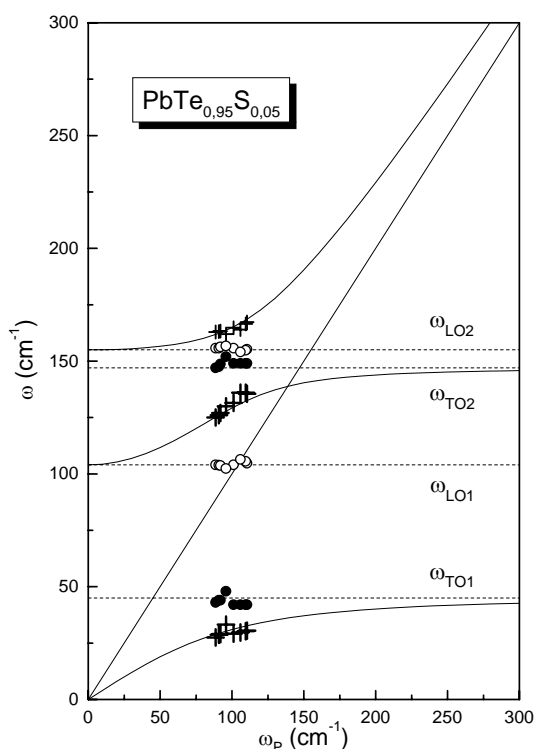
Na Sl. 3 i 4, krstićima su predstavljene sopstvene učestanosti spregnutih plazmon – dva LO fonon moda (ω_1 , ω_2 i ω_3), dobijene primenom jednačine 3 za $m=1$ i $n=2$. Pune linije su dobijene primenom jednačine (2). Kao što se sa Sl. 3 i 4 vidi, slaganje teorijski dobijenih vrednosti učestanosti spregnutih plazmon – dva LO fonon modova, dobijenih primenom jednačine (2), sa eksperimentalno dobijenim vrednostima je veoma dobra. Kružićima na Sl. 3 i 4 su predstavljene izračunate vrednosti za $\omega_{\text{LO}1}$ i $\omega_{\text{LO}2}$, dok su eksperimentalno dobijene vrednosti za $\omega_{\text{TO}1}$ i $\omega_{\text{TO}2}$ predstavljene punim kružićima. Vrednosti dobijene na ovaj način su u odličnoj saglasnosti sa vrednostima dobijenim primenom Gentzel – ovog modela [13, 14]. Rezultati predstavljeni na Sl. 3 i 4, su najbolja potvrda opravdanosti primene jednačine (3).



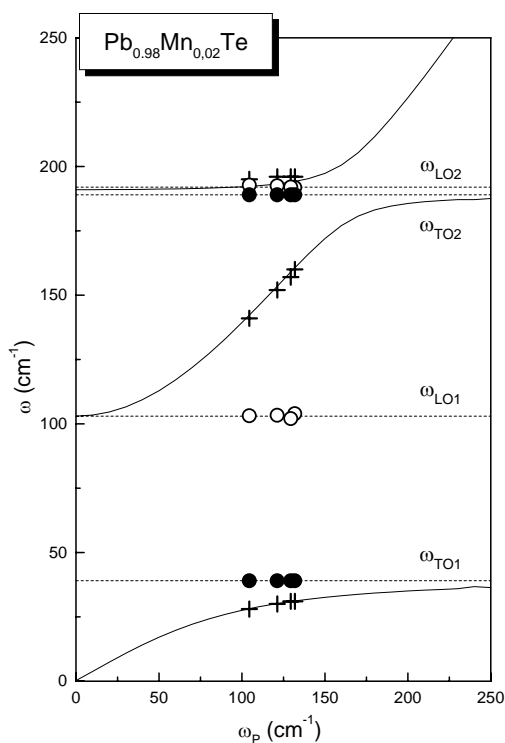
Sl. 1. Spektri refleksije čvrstog rastvora $\text{PbTe}_{0,95}\text{S}_{0,05}$. Eksperimentalne vrednosti su predstavljene kružićima, puna linija je teorijska kriva dobijena primenom jednačine (3).



Sl. 2. Spektri refleksije monokristala $\text{Pb}_{0,98}\text{Mn}_{0,02}\text{Te}$. Eksperimentalne vrednosti su predstavljene kružićima, puna linija je teorijska kriva dobijena primenom jednačine (3).



Sl. 3. Sopstvene učestanosti spregnutih plazmon – dvo LO fonon modova monokristala $PbTe_{0.95}S_{0.05}$. Puna linija je dobijena primenom jednačine (2); + – plazmon – LO fonon spregnute učestanosti (ω_{ij}) dobijene primenom jednačine (3), o – izračunate vrednosti ω_{LO1} i ω_{LO2} , • – eksperimentalno dobijene vrednosti ω_{TO1} i ω_{TO2} .



Sl. 4. Sopstvene učestanosti spregnutih plazmon – dvo LO fonon modova monokristala $Pb_{0.98}Mn_{0.02}Te$. Puna linija je dobijena primenom jednačine (2); + – plazmon – LO fonon spregnute učestanosti (ω_{ij}) dobijene primenom jednačine (3), o – izračunate vrednosti ω_{LO1} i ω_{LO2} , • – eksperimentalno dobijene vrednosti ω_{TO1} i ω_{TO2} .

5. ZAKLJUČAK

U ovom radu smo koristili daleku infracrvenu spektroskopiju u cilju proučavanja fononskih osobina monokristala $PbTe_{0.95}S_{0.05}$ i $Pb_{0.98}Mn_{0.02}Te$. Prilikom analize eksperimentalnih spektara koristili smo dielektričnu funkciju koja unapred uračunava postojanje plazmon – dvo fonon spreznja. Učestanosti spregnutih plazmon – dvo LO fonon modova i učestanosti TO fonon modova smo dobili analizom eksperimentalnih rezultata dok se vrednosti plazma učestanosti i učestanosti LO fonona izračunavaju primenom teorijskog modela. Izuzetnim slaganjem ovako dobijenih rezultata sa teorijski predviđenim vrednostima utvrđeno je da u ovim sistemima postoji jako plazmon – dvo fonon spreznja.

Zahvalnost: Ovaj rad je nastao zahvaljujući podršci Ministarstva za nauku i zaštitu životne sredine Republike Srbije, u okviru angažovanja na Projektu br.1481: "Optičke i transportne osobine halogenida olova i žive".

LITERATURA

- [1] E. Burstein, A. Pinczuk, and R.F. Wallis, *The Physics of Semimetals and Narrow-Gap Semiconductors*, ed. By D.L. Carter and R.T. Bate (Pergamon, New York, 1971), pp. 251.
- [2] S Takaoka, and K. Murase, "Observation of Local Modes in $Pb_{1-x}Sn_xTe$ Doped with Group III Elements (In and Ga)" *J. Phys. Soc. Jpn.* 52, 25 (1983).
- [3] M. Cardona, and G. Günterodth (eds.), *Light Scattering in Solids IV*, vol. 54, (Springer-Verlag, Berlin, 1984) pp. 183.
- [4] M.E. Lines and A.M. Glass, "Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials", *The int. Series of Monographs on Physics, Cladenon*, Oxford, 1977.
- [5] H. Kawamura, "Narrow-Gap Semiconductors", *Physics and Applications, Lecture Notes in Physics*, Vol.33, ed. by Zawadski, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1980.
- [6] B.A. Volkov, L.I. Ryabova and D.R. Khokhlov, "Mixed-valence impurities in lead-telluride based solid solutions", *Uspehi Fiziceskih Nauk*, Russian Academy of Science vol 172 (8) pp. 875-905, 2002.
- [7] Yu. Ravich, B.A. Efimova and J.A. Smirnov, *Semiconducting Lead Tellurides*, ed by L.S. Stil'bens, Plenum, New York, 1976.
- [8] M. Lach-hab, D.A. Papaconstantinopulos and M.J. Mehl, "Electronic structure calculations of lead chalcogenides PbS, PbSe, PbTe", *Journal of Phys. and Chem. of Solids*, vol 63, pp. 833-841, 2002.
- [9] B.A. Akimov, A.V. Nikorich, L.I. Rjabova, N.A. Shirokova, "Perehod metal-dielektrik v tverdih rastvorah $Pb_{1-x}Mn_xTe(In)$ ", *Fiz. Tehn. Poluprovodn.* 23, pp. 1019-1025, 1989.
- [10] T.S. Moss, in: *Optical Properties of Semiconductors; A semiconductor Monograph*, (Butterworth. London 1959).
- [11] V. Gopal, *Infrared Phys.* 18, 121 (1978).
- [12] A.A. Kukharskii, "Plasmon-Phonon coupling in GaAs", *Solid State Commun.* 8, pp. 1275-1279 (1970).

- [13] N. Romčević, J. Trajić, M. Romčević, V.N. Nikiforov, "Plasmon – two phonon interaction in $\text{PbTe}_{0.95}\text{S}_{0.05}$ alloy", *Phys. Stat. Sol. (c)* 1 (11), pp. 2832 (2004).
- [14] J. Trajić, M. Romčević, N. Romčević, S. Nikolić, A. Golubović, S. Durić and V.N. Nikiforov, "Optical properties of PbTe:Mn ", *Journal of Alloys and Compounds* 365, pp. 89-93 (2004).

Abstract – In this paper, results of the investigation plasmon – two fonon interaction in $\text{PbTe}_{0.95}\text{S}_{0.05}$ and $\text{Pb}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{Te}$ single crystals are presented. Far – infrared reflectivity spectra in wide temperature range are measured. In the

analysis of experimental results we are going to use dielectric function that in advance takes into account the existence of plasmon-two phonon interaction. As a result of the best fit we obtained three frequencies of three coupled modes, and then calculated the values for two LO modes and ω_p . We obtained a very good agreement between the result obtained as a best fit from experimental spectra and theoretical prediction.

**PLASMON – TWO FONON INTERACTION IN
 $\text{PbTe}_{0.95}\text{S}_{0.05}$ AND $\text{Pb}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{Te}$ ALLOYS**

J. Trajić, N. Romčević, M. Romčević, V.N. Nikiforov