

А.І. Кашуба, О.В. Бовгира, А.В. Франів, С.В. Апуневич

Діаграми Арганда та сили осциляторів кристала $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$

Львівський національний університет імені Івана Франка, вул. Кирила і Мефодія 8, 79005 Львів, Україна,
e-mail: AndriyKashuba07@gmail.com

У рамках методу псевдопотенціалу проведено теоретичне вивчення динаміки зміни параметрів електронної підсистеми у твердому розчині заміщення (ТРЗ) $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$. За допомогою співвідношення Крамерса-Кроніга визначено дійсну (ϵ_1) та уявну (ϵ_2) діелектричних константи шаруватого ТРЗ $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ для різної поляризації світла в широкому енергетичному діапазоні (0-15 еВ). Енергії осциляторів були встановлені за допомогою діаграм Арганда. Визначено основні параметри осциляторів переходів.

Ключові слова: твердий розчин заміщення, діелектричні функції, осцилятор, діаграми Арганда, поляризація.

Стаття постуила до редакції 25.04.2016; прийнята до друку 30.08.2016.

Вступ

Оптичні властивості крайніх бінарних сполук InX ($X = \text{I}, \text{Cl}, \text{Br}$) є загально відомими та приведені в роботах [1-5]. Проте відомостей про оптичні властивості шаруватого ТРЗ $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ досі не має. Відомо тільки декілька робіт в яких приводиться спектри краю фундаментального поглинання [6, 7].

Для аналізу структури фундаментальних спектрів кристалів і знаходження параметрів їх енергетичних схем необхідна попередня обробка безпосередньо вимірних даних коефіцієнта відбивання $R(E)$, яке дає змогу розрахувати оптичні функції: коефіцієнт поглинання, показник заломлення, дійсна частина комплексної діелектричної проникності, уявна частина комплексної діелектричної проникності та ін. Це необхідно для розуміння процесів, якими супроводжується взаємодія електромагнітного випромінювання з конденсованими середовищами.

Розрахунок оптичних функцій здійснюється на основі дисперсійних співвідношень Крамерса-Кроніга. Серед оптичних констант дійсна (ϵ_1) і уявна (ϵ_2) частини діелектричної проникності мають особливе значення. Зумовлено це тим, що їхні спектри, як і спектри відбивання, можна отримати в ширшій області енергій, порівняно з іншими оптичними функціями (такими як показник заломлення або коефіцієнт поглинання) [7].

В роботах [8-11] приведено розрахунок зонно-енергетичної структури ТРЗ $\text{In}_x\text{Tl}_{1-x}\text{I}$ (рис. 1). З допомогою яких можна привести спектри уявної частини ϵ_2 діелектричної функції.

I. Методика досліджень

ТРЗ $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ вирощували за методом Бріджмена–Стокбаргера з ампули у вертикальній печі з градієнтом температури $1^\circ\text{C}/\text{мм}$. У процесі росту ампулу опускали крізь зону кристалізації зі швидкістю 3 мм/год., в кварцових ампулах, при температурі росту 445°C . Ріст відбувався протягом 48 годин. Після чого, ще протягом доби в тій же печі при температурі від $T = 180^\circ\text{C}$ здійснювався відпал вирощених кристалів. ТРЗ $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ кристалізується у шаруватій орторомбічній структурі з просторовою групою симетрії S_{6h} (63) [7].

Дисперсійне співвідношень Крамерса-Кроніга можуть бути сформульовані для великої кількості фізичних систем, для яких комплексна функція описує лінійний відгук системи на зовнішню взаємодію. Прикладом таких функцій є комплексна діелектрична проникність:

$$\hat{\epsilon}(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$$

Оптичні функції поглинання і відбивання дозволяють вивчати дійсну ϵ_1 та уявну ϵ_2 частину діелектричної функції. В уявну частину $\epsilon_2(\omega)$ дають внески два види електронних збуджень: внутрішньозонні ($\epsilon_2^f(\omega)$) і міжзонні ($\epsilon_2^b(\omega)$). Внутрішньозонні збудження проявляються при малих енергіях фотонів; їх частоти в найпростіших випадках описуються теорією Друде-Лоренца.

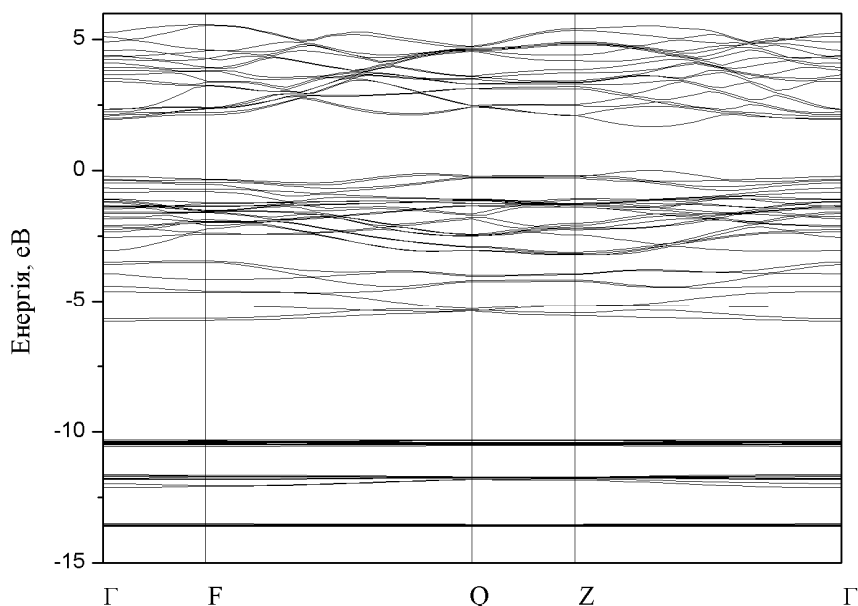


Fig.1. Energy band diagrams of $\text{In}_{0.5}\text{Tl}_{0.5}\text{I}$ crystal.

Міжзонний внесок в $\epsilon_2(\omega)$, який при обробці експериментальних даних слід отримувати шляхом віднімання від ϵ_2 внутрішнього внеску, пов'язаний із структурою основного і збудженого електронних станів і при умові спрощення задачі шляхом введення ряду наближень $\epsilon_2^b(\omega)$ може бути розрахований, виходячи із результатів зонного

розрахунку. Таким спрощенням є одноелектронне наближення для розрахунку енергії збуджень, дипольне наближення в обчисленні інтенсивності переходів, а також врахування лише прямих, тобто з збереженням \mathbf{k} - вектора, переходів із зайнятих на віртуальні стани. В цих умовах вираз для $\epsilon_2^b(\omega)$ має вигляд:

$$\epsilon_2^b(\omega) = \frac{4\pi^2 e^2 \mathbf{h}^2}{3m\omega^2} \sum_i \sum_j \int_{\text{ЗБ}} \frac{2}{(2\pi)^3} |P_{ij}(k)|^2 \delta[E_j(k) - E_i(k) - \mathbf{h}\omega] dk$$

де $E_j(k)$ і $E_i(k)$ - відповідно енергії віртуальних і зайнятих станів, $\mathbf{h}\omega$ - енергія фотона, а $P_{ij}(k)$ - матричний елемент переходу:

$$P_{ij}(k) = \frac{1}{i\Omega_{cell}} \int_{\Omega_{cell}} \Psi_i^*(k, r) \nabla \Psi_j(k, r) dr,$$

де Ω_{cell} - об'єм елементарної комірки, $\Psi_i(k, r)$ і $\Psi_j(k, r)$ - одно електронні хвильові функції. В більшості випадків матричний елемент переходу вважають постійним, тоді коли:

$$\epsilon_2^b(\omega) = \frac{1}{\omega^2} \sum_i \sum_j \int_{\text{ЗБ}} dk \delta[E_j(k) - E_i(k) - \mathbf{h}\omega],$$

де $\sum_i \sum_j \int_{\text{ЗБ}} dk \delta[E_j(k) - E_i(k) - \mathbf{h}\omega]$ називають міжзонною (приведеною) густиною станів.

Вимірні спектри відбивання та обчисленні діелектричні функції дають все ж таки інтегральні

криві, що узагальнюють висновок усіх переходів. Зрозуміло, що в нашому випадку, коли спостерігається така велика кількість близько розміщених осциляторів, внесок деяких переходів може бути замаскований. Дуже часто інтегральні спектри R і ϵ_2 відтворюють за моделлю N симетричних лоренцівських осциляторів з великим числом підгоночних параметрів. Для кожного осцилятора вводять три параметри: енергія максимуму E_i , півширина H_i та сила осцилятора f_i .

Нами зроблена спроба розділити спостережувану залежність на складові та визначити їх основні параметри за допомогою діаграмної техніки Арганда без підгоночних параметрів [12]. Цей метод ґрунтується на тому, що для симетричного лоренцівського осцилятора залежність

$\epsilon_2 = f(\epsilon_1)$ має вигляд майже ідеального кола, причому координати радіуса і центра кола визначають три шукані параметри осцилятора (E_i , H_i , f_i).

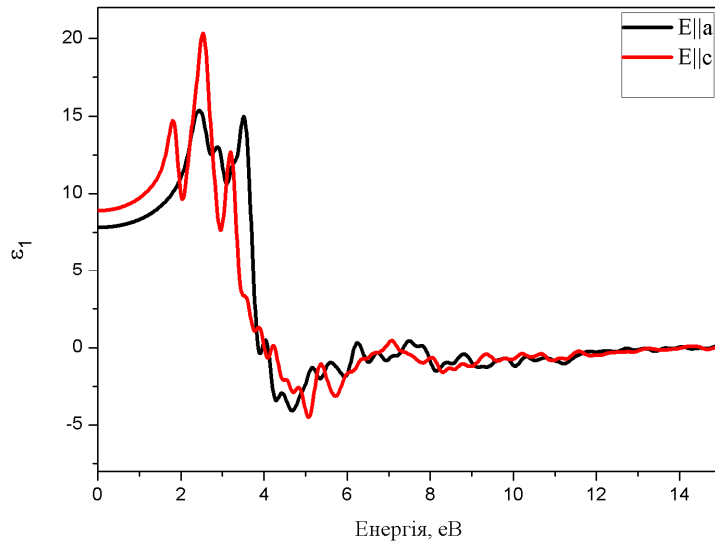


Fig. 2. The real part of dielectric permittivity ϵ_1 for $\text{In}_{0.5}\text{Tl}_{0.5}\text{I}$ crystals.

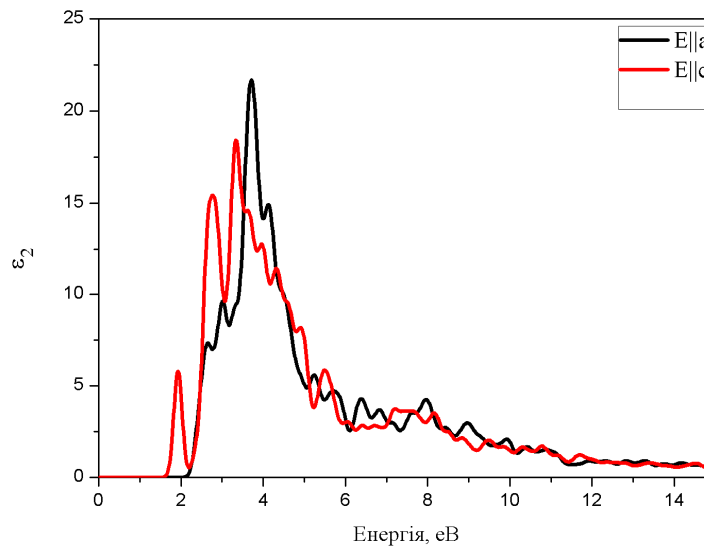


Fig. 3. The imaginary part of dielectric permittivity ϵ_2 for $\text{In}_{0.5}\text{Tl}_{0.5}\text{I}$ crystals.

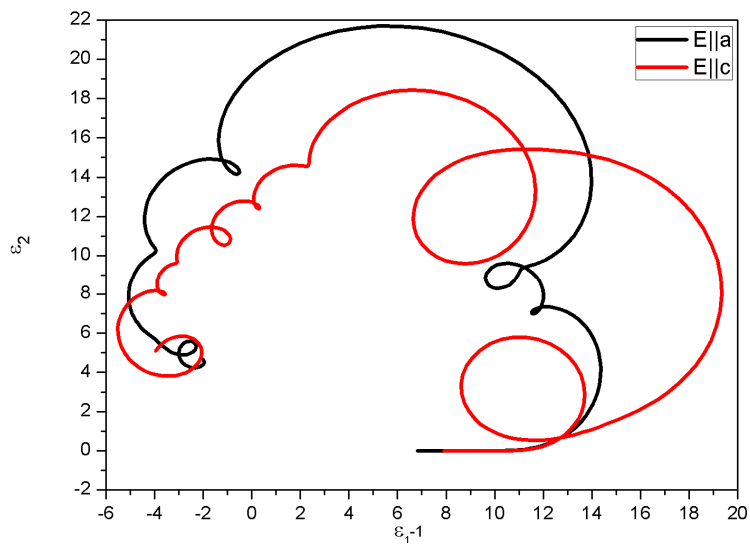


Fig. 4. Argand diagrams for $\text{In}_{0.5}\text{Tl}_{0.5}\text{I}$ crystals.

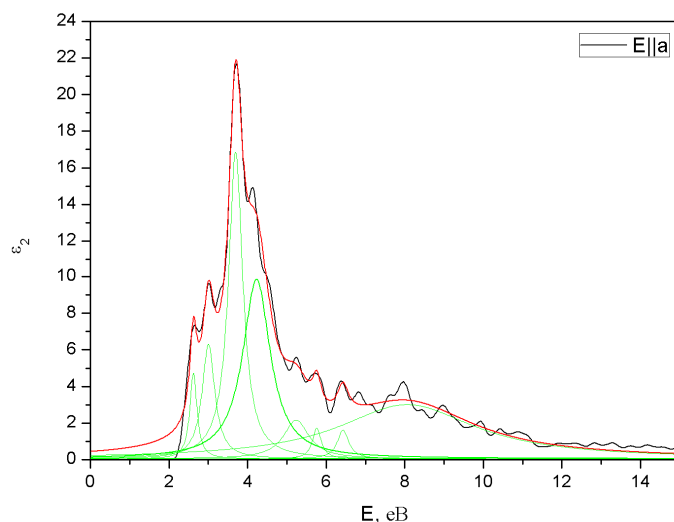


Fig. 5. Integral spectra of ϵ_2 ($\mathbf{E}||\mathbf{a}$) $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ and graphs of its components. The solid curve is the calculated component.

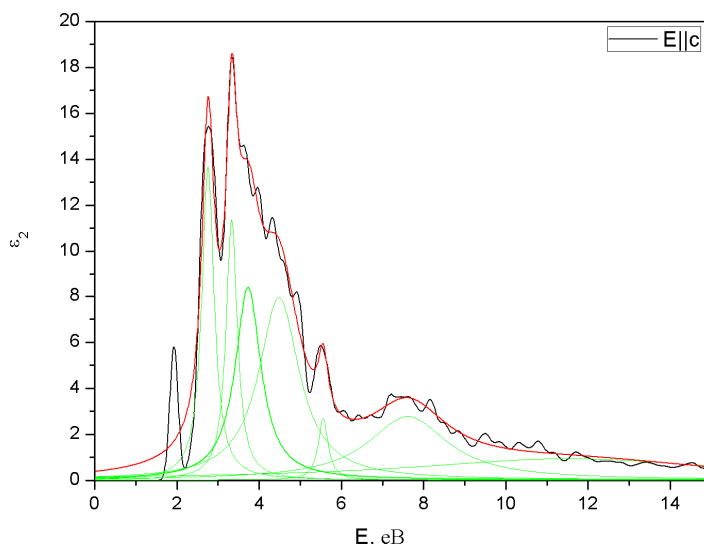


Fig. 6. Integral spectra of ϵ_2 ($\mathbf{E}||\mathbf{c}$) $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ and graphs of its components. The solid curve is the calculated component.

II. Результати досліджень

Дійсна ϵ_1 і уявна ϵ_2 частина діелектричної проникності, які встановлюють безпосередній зв'язок між мікро- та макроскопічними характеристиками кристалу $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ приведені на рис. 2, 3 для поляризації $\mathbf{E}||\mathbf{a}$ та $\mathbf{E}||\mathbf{c}$. Між спектрами функцій, отриманих для різних поляризацій світла, спостерігається виразна анізотропія, особливо в області поблизу краю фундаментального поглинання.

Змінна знаку ϵ_1 поблизу енергій 4 eV вказує на прояв колективних ефектів. Отримані нами залежності оптичних констант для кристалу $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ можна умовно поділити на три головні групи піків. Вони локалізовані в таких спектральних областях: 2,0 - 5,5 eV, 5,5 - 7,5 eV і 7,5 - 10,0 eV.

На основі інтегральних спектрів ϵ_1 , ϵ_2 кристала будується їхня загальна діаграма Арганда (рис. 4). Аналіз цієї діаграми дозволяє однозначно, без підгоночних параметрів, здійснити розклад

інтегрального спектра ϵ_2 на елементарні компоненти і визначити їх характеристики.

На рис. 5, 6 і в таблиці 1 представлено результати розкладу інтегральної кривої ϵ_2 $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ для $\mathbf{E}||\mathbf{a}$ та $\mathbf{E}||\mathbf{c}$ поляризацій на компоненти в області 0 – 15 eV.

Часто силу осцилятора f_i усереднюють по загальній кількості валентних електронів і в цьому випадку f_i пропорційна площі смуги в спектрі $\epsilon_2(E)$. Але коли відомі значення ефективної кількості валентних електронів, які беруть участь в квантових міжзонних переходах N_{ef} правильніше розраховувати f_i з врахуванням N_{ef} .

Слід зазначити, що в загальноприйнятому наближенні представлення інтегральної діелектричної проникності як суми внесків лоренцівських осциляторів застосований метод Арганда дозволяє однозначно розкласти інтегральний спектр ϵ_2 на мінімальний набір смуг без будь-яких підгоночних параметрів. У кожній смугі сумовані переходи з близькими енергіями, але не обов'язково близької природи. Тому на основі теоретичних моделей, які припускають тонку

Table 1

Parameters E_i, H_i, f_i of oscillator (O_i) $In_{0.5}Tl_{0.5}I$

O_i	$E a$			$E c$		
	f_i	H_i	E_i	f_i	H_i	E_i
O_1	1,61962	0,21967	2,62251	-1,12E+10	4,49E+07	7,30E+08
O_2	3,86522	0,39325	3,00524	7,70234	0,35901	2,75678
O_3	11,5823	0,43891	3,69598	5,89697	0,33073	3,33236
O_4	13,10872	0,85134	4,22957	9,9974	0,7606	3,7307
O_5	2,6269	0,78873	5,24043	14,95053	1,20253	4,48377
O_6	0,70267	0,26828	5,76228	1,21915	0,29065	5,55757
O_7	0,87611	0,35648	6,4296	10,23483	2,3639	7,61526
O_8	19,61689	4,21513	8,057	13,76662	9,50737	11,53487

структуру смуг, вони можуть бути додатково розкладенні на декілька компонент кожна.

Висновки

ТРЗ $In_{0.5}Tl_{0.5}I$ кристалізуються в шаруватій орторомбічній структурі з просторовою групою симетрії C_{6v} (63). Найменша заборонена щільна локалізована між Z і Γ точками зони Брилюєна.

В результаті проведеного розрахунку за методикою Крамерса-Кроніга визначено оптичні функції ϵ_1, ϵ_2 кристалу $In_{0.5}Tl_{0.5}I$ для різних поляризацій світла в широкому енергетичному діапазоні.

Загальний спектр діелектричної проникності

розкладено на 8 смуг переходів без застосування підгочних параметрів. Визначенні основні параметри осциляторів переходів.

Отриманні результати дають інформаційну базу для розрахунку та більш глибокого розуміння електронної структури ТРЗ $In_{0.5}Tl_{0.5}I$ ($In_xTl_{1-x}I$).

Кашуба А. І. - аспірант кафедри експериментальної фізики;
Бовгира О.В. - доцент кафедри твердого тіла;
Франів А.В. - професор кафедри експериментальної фізики;
Апуневич С.В. - доцент кафедри експериментальної фізики.

- [1] M.I. Kolinko, R.Y. Bibikov, J. Phys.: Condens. Matter. 6(1), Yu 167 (1994).
- [2] M.I. Kolinko, Phys. Rev. B. 55, 4007 (1997).
- [3] M.I. Kolinko, A. H. Nevidomsky, J. Phys. Stud. 4(4) 437 (2000).
- [4] M.I. Kolinko, O.V. Bovgyra, Ukr. J. Phys. 46(7), 707 (2001).
- [5] Ya. Dovhyu, I. Karbovnyk, S. Ternavs'ka, A. Franiv, Visnyk L'viv. un-tu. Seriya fizychna 36, 255 (2003).
- [6] Zhang Wei, Xu Zhao-Peng, Wang Hai-Yan, Chen Fei-Hong, He Chang. Acta Phys. Sin. 62(24), 243101 (2013).
- [7] A.I. Kashuba, S.V. Apunevych, Zhurnal nano- ta elektronnoyi fizyky 8(1), 01010 (2016).
- [8] Xu Zhao-Peng, Wang Yong-Zhen, Zhang Wei, Wang Qian, Wu Guo-Qing. Acta Phys. Sin. 63(14) 147102 (2014).
- [9] A. Franiv, O. Bovgyra, O. Savchyn, Ukr. J. Phys. 51(3) 269 (2006).
- [10] M.I. Kolinko, O.V. Bovgyra, M. Piasecki, Low temperature physics 27(2), 153 (2001).
- [11] I.V. Semkiv, B.A. Lukyanets', H.A. Il'chuk, R.Yu. Petrus', A.I. Kashuba, M.V. Chekaylo, Zhurnal nano- ta elektronnoyi fizyky 8(1), 01011 (2016).
- [12] V.V. Sobolev, V.V. Nemoshkalenko, Metody vychislitel'noj fiziki tverdogo tela (1998).

A.I. Kashuba, O.V. Bovgyra, A.V. Franiv, S.V. Apunevych

Argand diagram and oscillator strength of $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ crystal

*Ivan Franko National University of Lviv, 8, Kyrylo and Mephody St., 79005 Lviv, Ukraine
e-mail: AndriyKashuba07@gmail.com*

The dynamics of the electron subsystem parameters in $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ substitutional solid solutions has been studied theoretically using of the pseudopotential method. According to Kramers-Kronig method there have been determined the optical functions of the multilayer $\text{In}_{0,5}\text{Tl}_{0,5}\text{I}$ for the different light polarizations in a broad energy range (0 - 15 eV). The energies of oscillators were defined from the Argand diagrams. The main oscillator settings transitions has been determined.

Key words: substitutional solid solutions, dielectric function, oscillator, Argand diagrams, polarization.