

УДК 535.312;535.346

©1995

## ВЛИЯНИЕ ЗАТУХАНИЯ И ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ДИСПЕРСИИ НА СМЕЩЕНИЕ ЭКСТРЕМУМОВ РЕЗОНАНСНОГО ОТРАЖЕНИЯ СВЕТА В КРИСТАЛЛАХ

Н.И.Григорчук

Институт химии поверхности, Киев  
(Поступила в Редакцию 4 мая 1994 г.)

Проведено исследование частотного и энергетического смещения экстремумов отражения света в области экситонных резонансов при наличии тонкого переходного слоя. С учетом затухания и пространственной дисперсии в зависимости от сдвига фаз определены величины, направления смещений и значения частот в экстремумах отражения при нормальном падении света. Обнаружены при одних и тех же условиях несимметрия сдвигов и эквивалентность воздействия на них механизмов затухания и пространственной дисперсии. Обсуждается относительная роль последних. Приведены соответствующие оценки для кристаллов CdS, GaAs, LiH.

Влияние волнового вектора света на оптические свойства кристаллов в области резонансных частот изучается давно. Из теории хорошо известно [1], что с учетом движения экситона в кристалле должны возникать две волны, каждая из которых имеет свой показатель преломления. Эти волны могут интерферировать между собой и, таким образом влиять на результаты, известные в классической кристаллооптике [2]. Так, Хопфилдом и Томасом [3] впервые было замечено появление в CdS дополнительного пика небольшой интенсивности (спайка) на продольной частоте экситона. Оказалось, что его высота была существенно большей в поляризации  $k \parallel c$ , чем в поляризации  $k \perp c$ . Вследствие также хорошо известной сильной анизотропии эффективной массы вдоль этих направлений в CdS этот результат истолковывался как почти очевидное доказательство влияния пространственной дисперсии (ПД) (величина которой обратно пропорциональна массе) на спектры отражения. При этом неявно предполагалось, что наличие ПД обуславливает возникновение прозрачного приповерхностного слоя с равной нулю поляризацией, в котором по тем или другим причинам экситоны не могут существовать. Тогда свет, отражаясь как от естественной границы с вакуумом, так и от границы этого слоя с объемом кристалла, интерферирует со сдвигом фазы, пропорциональным толщине слоя, и в области продольно-поперечного расщепления при фиксированной толщине возможна периодическая модуляция переходов как функции энергии [4] или при фиксированной энергии — периодическая модуляция интенсивности как функции толщины [5].

Применялись разные подходы к изучению ПД: исследования фазы отраженного света наряду с амплитудными и температурными исследованиями [5-7]; изучение отражения при наклонном падении света [8-10], в том числе и при угле Брюстера [11]. Эти подходы хорошо представлены в [12].

В данной работе исходя из выражений для коэффициента отражения и фазы волны в трехслойной системе (раздел 1), с учетом одного только затухания (раздел 2) и при наличии ПД (раздел 3) определяются частоты, при которых коэффициент отражения достигает экстремальных значений в области экситонных резонансов. Найдены величина и направление частотного сдвига максимума и минимума отражения при наличии и в отсутствие в кристалле затухания и ПД. Обсуждается относительная роль вкладов затухания и ПД в величину этих сдвигов (раздел 4).

## 1. Постановка задачи. Общие выражения

Опираясь на феноменологическую электродинамику, т.е. на систему уравнений Максвелла и на обычные и дополнительные граничные условия для электромагнитного поля [1,3], будем рассматривать трехслойную систему, состоящую из кристалла, покрытого тонкой пленкой (ТП), и вакуумного слоя. Наличие ТП может, в частности, отражать общее явление для совершенных кристаллов, связанное с увеличением потенциальной энергии механического экситона по мере его приближения к поверхности кристалла на расстояние порядка ( $n = 1$ ) экситонного радиуса [13].

Пусть плоскопараллельный слой пленки 1 находится между вакуумом (среда 0) и произвольной средой 2. Из вакуума на слой под произвольным углом  $\varphi$  падает свет, поляризованный в плоскости падения (или перпендикулярно ей). Тогда коэффициент отражения света от пленки можно выразить через коэффициенты отражения при падении света на полубесконечные среды 1 или 2 и, следуя [14], найти в виде

$$R = \frac{(r_0 - r_{12})^2 + 4r_{01}r_{12} \sin^2(\theta + \varphi_{12}/2)}{(1 - r_{01}r_{12})^2 + 4r_{01}r_{12} \sin^2(\theta + \varphi_{12}/2)}, \quad (1)$$

где  $r_{01}$  и  $r_{12}$  — модули коэффициента отражения для амплитуд на границах вакуум-пленка 0-1 и пленка-объем кристалла 1-2,  $\varphi_{12}$  — скачок фазы при отражении на границе 1-2,  $\theta$  — набег или сдвиг фазы при прохождении ТП толщиной  $l$ , который при диэлектрической проницаемости пленки  $\epsilon_1$  есть [11,14]

$$\theta = \frac{\omega}{c} l \sqrt{\epsilon_1 - \sin^2 \varphi}. \quad (2)$$

В выражении (1) учитывается тот факт, что при углах падения меньше брюстеровского скачок фазы отраженной от пленки волны  $s$ - и  $p$ -поляризацій  $\varphi_{01} = \pi$ , т.е. теряется полволны, как при отражении от оптически более плотной среды. При углах больше брюстеровского этот скачок фазы характерен только для  $p$ -поляризации. В случае

угла Брюстера  $\varphi_{Br} = \text{arctg} \sqrt{\varepsilon_1}$  и отсутствия затухания в пленке

$$\theta_{Br} = \frac{\omega}{c} l \frac{\varepsilon_1}{\sqrt{1 + \varepsilon_1}}. \quad (3)$$

В общем виде, учитывая, что в пленке, как и в объеме кристалла, возможно и поглощение, получаем следующие выражения для амплитудных модулей коэффициентов отражения при нормальном падении света

$$r_{01} = \left[ \frac{(n_0 - n_1)^2 + k_1^2}{(n_0 + n_1)^2 + k_1^2} \right]^{1/2}, \quad r_{12} = \left[ \frac{(n_1 - n_2)^2 + (k_1 - k_2)^2}{(n_1 + n_2)^2 + (k_1 + k_2)^2} \right]^{1/2}, \quad (4)$$

где  $n_i$  показатель преломления  $i$ -й среды ( $i = 0, 1, 2$ ),  $k_i$  — соответствующий коэффициент поглощения. Для вакуума  $n_0 = 1$ .

При этом тангенс скачка фазы на границе пленки с объемом равен

$$\text{tg } \varphi_{12} = - \frac{2(n_1 k_2 - n_2 k_1)}{n_1^2 - n_2^2 - k_2^2 + k_1^2}. \quad (5)$$

Если в качестве пленки рассматривать прозрачный для света «мертвый слой» [3], тогда в выражениях (4), (5) необходимо положить  $k_1 = 0$ . При наклонном падении  $n_i$  заменяется во всех формулах на  $n_i \cos \varphi_i$  ( $\varphi_i$  — угол отражения от  $i$ -й среды).

Из (1) очевидно, что в зависимости от значения суммы  $\theta + \varphi_{12}/2 = \pm \delta$  величина коэффициента отражения изменяется в пределах

$$\left( \frac{r_{01} + r_{12}}{r_{01} r_{12} + 1} \right)^2 \leq R \leq \left( \frac{r_{01} - r_{12}}{r_{01} r_{12} - 1} \right)^2, \quad (6)$$

достигая минимального значения при  $\delta_{\min} = n\pi$  и максимального — при  $\delta_{\max} = (n + 1/2)\pi$  ( $n = 0, 1, 2, \dots$ ) в условиях компенсации фаз:

$$\begin{aligned} \varphi_{12} &= n\pi - \theta, & \min, \\ \varphi_{12} &= \left( n + \frac{1}{2} \right) \pi - \theta, & \max. \end{aligned} \quad (7)$$

При этом как в минимуме, так и в максимуме отражения

$$\text{tg } \varphi_{12} = - \text{tg } 2\theta. \quad (8)$$

Формула (1) остается неизменной при замене  $\varphi_{12}$  на  $\varphi_{12} + 2\pi$  или  $\theta \rightarrow \theta + \pi$ . Последнее вместе с тем означает, что коэффициент отражения от пленок толщиной  $l$  и  $l + \Delta l$  одинаков. Согласно (2), имеем

$$\Delta l = \frac{\pi c}{\omega} (\varepsilon_1 - \sin^2 \varphi)^{-1/2}. \quad (9)$$

Экстремальные значения в (1) могут достигаться также и при промежуточных значениях  $\delta$ . При этом амплитудные модули (4) должны удовлетворять равенству

$$r_{01} + r_{12} - r_0 r_{12} = 1. \quad (10)$$

В отсутствие пленки ( $r_{01} = r_{12} = r$ ) равенству (10) удовлетворяют очевидные значения  $r_{1,2} = r \pm \sqrt{r^2 - 1}$ .

Для определения частот, при которых отражение достигает экстремальных значений, зададим поведение диэлектрической проницаемости в резонансной области.

## 2. Случай классического осциллятора. Влияние затухания на положение экстремумов при резонансном отражении света

Пусть

$$\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon + \frac{4\pi\alpha\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma}, \quad (11)$$

где  $4\pi\alpha$  и  $\varepsilon$  — поляризуемость и диэлектрическая постоянная на низких частотах в объеме кристалла,  $\omega_0$  — резонансная частота осциллятора,  $\gamma$  — феноменологический параметр уширения, учитывающий затухание осциллятора.

Для определения искоемых частот удобно воспользоваться выражением для тангенса скачка фазы (5) для случая непоглощающей прозрачной пленки. Для этого по стандартной схеме  $\varepsilon'_2 + i\varepsilon''_2 = (n_2 + ik_2)^2$  выразим показатель преломления  $n_2$  и коэффициент поглощения  $k_2$  объема-подложки через действительную и мнимую части диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'_2(\omega)$  и  $\varepsilon''_2(\omega)$ . Тогда получим

$$\varepsilon^2 + \varepsilon_2'^2(\omega) + \varepsilon_2''^2(\omega) + \frac{2\varepsilon}{\text{tg}^2 \varphi_{12}} \varepsilon'_2(\omega) = \frac{2\varepsilon}{\sin^2 \varphi_{12}} \sqrt{\varepsilon_2'^2(\omega) + \varepsilon_2''^2(\omega)}. \quad (12)$$

Выделив в (11) действительную и мнимую части  $\varepsilon(\omega)$  и подставив в (12), находим уравнение для частот

$$\begin{aligned} & \left(2\pi \frac{\alpha}{\varepsilon} \omega_0^2\right)^2 \sin^4 \varphi_{12} + 4\pi \frac{\alpha}{\varepsilon} \omega_0^2 (\omega_0^2 - \omega^2) \sin^2 \varphi_{12} + \\ & + (\omega_0^2 - \omega^2)^2 \sin^2 \varphi_{12} = \omega^2 \gamma^2 \cos^2 \varphi_{12}, \end{aligned} \quad (13)$$

которое с точностью до членов более высокого порядка малости по  $\gamma/\omega$  имеет решение

$$\omega_{(2)}^2 \approx \omega_0^2 \left\{ 1 + \frac{4\pi\alpha}{\varepsilon} \left( \frac{\sin^2 \varphi_{12}/2}{\cos^2 \varphi_{12}/2} \right) \mp \frac{\varepsilon}{4\pi\alpha} \left( \frac{\gamma}{\omega_0} \right)^2 \frac{\cos \varphi_{12}}{\sin^2 \varphi_{12}} \right\}. \quad (14)$$

Выражение (14) задает значения частот для произвольных скачков фазы, в том числе и соответствующих экстремумам в отражении. Воспользуемся для удобства поляритонной терминологией

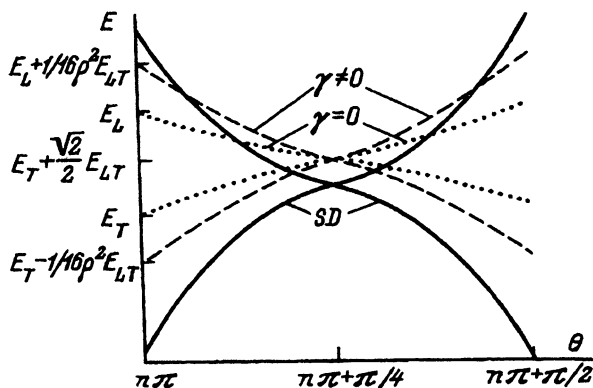
$$E_{LT} = E_L - E_T = \frac{2\pi\alpha}{\varepsilon} E_T \quad (15)$$

и условием компенсации фаз в экстремумах отражения (7). Тогда (14) можно представить в виде

$$E_{\min}^{\max} \approx E_T + E_{LT} \left( \frac{\sin^2 \theta}{\cos^2 \theta} \right) \mp \frac{\gamma^2}{16E_{LT}} \left( \frac{1}{\sin^2 \vartheta} - \frac{1}{\cos^2 \vartheta} \right), \quad (16)$$

где  $E_T = \hbar\omega_0$  — энергия поперечных колебаний.

Из предыдущего анализа нам известно, что максимум и минимум в отражении разделены скачком  $\delta_{\max} - \delta_{\min} = \pm\pi$ . Учитывая также экспериментальные данные, например [3], однозначно можно сказать,



Зависимость энергетического смещения экстремумов отражения света от сдвига фазы  $\theta$  при  $\gamma = 0$  (пунктирная линия),  $\gamma \neq 0$  (штриховая линия) и с учетом ПД (сплошная линия).

что максимуму коэффициента отражения  $R_{\max}$  соответствуют частота и энергия, описываемая в формулах (14), (16) верхней строкой, в то время как минимум отражения  $R_{\min}$  описывается в этих формулах нижней строкой, что при  $\gamma = 0$  также соответствует [15].

Из (16) видно, что положение экстремумов отражения существенно зависит от сдвига фазы  $\theta$  (а следовательно, и от толщины пленки  $l$ ), описываемого (2). При нормальном падении света  $\theta = 2\pi l\sqrt{\epsilon_1}/\lambda_T$ , где  $\lambda_T$  — длина резонансной волны в кристалле. Например, для  $n = 1$  экситона в CdS с  $\lambda_T = 4856.52 \text{ \AA}$ ,  $\sqrt{\epsilon_1} = 2.846$  [3] фазе  $\theta = 45^\circ$  (при которой  $R_{\max}$  и  $R_{\min}$  совпадают) соответствует  $l = 213.3 \text{ \AA}$ .

а) Рассмотрим сначала идеальный случай — отсутствия в кристалле затухания. Пусть толщина пленки  $l \rightarrow 0$  ( $\theta \rightarrow 0$ ), тогда коэффициент отражения, как следует из (16), имеет минимум на частоте продольного экситона  $\omega_L$  и максимум на резонансной частоте поперечного экситона  $\omega_T$ . Такая же ситуация повторяется и при  $l \neq 0$ , когда  $\theta = m\pi$  ( $m = n + 1, n = 0, 1, \dots$ ).

При  $\theta = \pi n + \pi/4$  положения  $R_{\max}$  и  $R_{\min}$  в спектре совпадают. Однако при  $\theta > \pi n + \pi/4$  возникает интересная ситуация («переворачивание» спектра отражения), при которой  $R_{\min}$  обнаруживается уже на резонансной частоте  $\omega_T$ , тогда как  $R_{\max}$  оказывается на частоте продольного экситона (см. рисунок). Она хорошо известна в литературе [13, 16].

б) Проанализируем теперь (16) при наличии реального затухания в кристалле. Будем предполагать, что при приближении к экстремальным точкам (7) сдвиг, или, другими словами, набег фазы пропорционален затуханию в объеме

$$\begin{aligned} \pi n - \theta &= \rho\gamma \leftrightarrow \min, \\ \pi n + \pi/2 - \theta &= \rho\gamma \leftrightarrow \max, \end{aligned} \quad (17)$$

где  $\rho$  — критический параметр, имеющий размерность обратной энергии. Это предположение основано на том, что набег фазы обусловлен затуханием и в отсутствие такового, согласно (5), (13), должен исчезать. Поэтому при предельных переходах  $\theta \rightarrow \pi n$ ,  $\theta \rightarrow (n + 1/2)\pi$ , учитывая (17) в (16), имеем

$$E_{\max} = E(\bar{L}) \mp \frac{1}{16\rho^2 E_{LT}}, \quad E_{\min} = E(\bar{T}) \pm \frac{1}{16\rho^2 E_{LT}}, \quad (18)$$

т.е.  $E_{\max, \min}$  не зависят от затухания. Здесь верхним символам отвечает  $\theta \rightarrow n\pi$ , и нижним —  $\theta \rightarrow (n + 1/2)\pi$ . При переходе через фазу  $\theta = n\pi + \pi/4$  положения экстремумов в (18) меняются местами.

В области текущих фаз  $n\pi < \theta < n\pi + \pi/4$ , как и следовало ожидать, рост затухания ведет к энергетическому смещению экстремумов в противоположные стороны, а именно максимум отражения смещается в длинноволновую часть спектра, в то время как его минимум смещается в коротковолновую часть.

На смещении максимума в длинноволновую сторону с увеличением  $\gamma$ , в частности, указывалось также в [9].

Важной особенностью формулы (16) является также то обстоятельство, что влияние затухания на частотное положение экстремумов сводится на нет, когда величина фазы становится кратной  $n\pi + \pi/4$ . Экспериментально таких условий можно достичь при соответствующем подборе угла падения  $\varphi$  при любых температурах. При этом, как уже отмечалось,  $R_{\min}$  и  $R_{\max}$  совпадают.

Наконец, в области сдвигов фазы  $n\pi + \pi/4 < \theta \leq n\pi + \pi/2$ , как и в случае без учета затухания, получаем «переворот» формы линии отражения. Это позволяет сохранить тенденцию смещения экстремумов отражения света с ростом  $\theta$  и  $\gamma$ .

На рисунке схематически отображены положения экстремумов в зависимости от величины сдвига фазы с учетом (штриховые линии) и без учета (пунктирные линии) затухания. Видно, что наибольшее энергетическое расстояние между экстремумами достигается при экстремальных фазах  $\theta = n\pi, = n\pi + \pi/2$ . Согласно (18), оно равно

$$\Delta E = E_{\min} - E_{\max} = E_{LT} + 1/8\rho^2 E_{LT}. \quad (19)$$

Таким образом, рост затухания приводит к увеличению отталкивания между экстремумами, т.е. увеличению энергетического расстояния между ними. Оно максимально при набегах фазы, равных  $\theta = n\pi, = (n + 1/2)\pi$  и отсутствует при  $\theta = n\pi + \pi/4, n = 0, 1, \dots$

с) По сдвигу экстремумов отражения можно решить обратную задачу — определить толщину покрытия прозрачной пленкой при следующих условиях. С одной стороны, выражение (16) должно быть не отрицательно при малых  $\theta$ . Отсюда возникает условие, оговаривающее минимальную толщину пленки:

$$l_{\min} \geq \frac{\lambda_T}{4\pi n_1} \arcsin \frac{\gamma}{2} (E_T E_{LT})^{-1/2}. \quad (20)$$

С другой — очевидно, что при  $\theta > n\pi + \pi/2$  и заданном  $n$  картина с расположением экстремумов периодически повторяется. Поэтому

$$l_{\max} \leq \frac{\lambda_T}{4n_1}. \quad (21)$$

Если же толщина пленки находится в пределах  $l_{\min} \leq l \leq l_{\max}$ , то, исходя из (2), (16), ее можно определить без учета затухания по формуле

$$l = \frac{\lambda_T}{4\pi n_1} \arccos \Delta E / E_{LT} \quad (22)$$

и с учетом затухания при малых сдвигах фазы по формуле

$$l \approx \frac{\lambda_T}{4\pi n_1} \left( \arccos \Delta E / E_{LT} + \frac{\gamma}{\sqrt{2E_{LT}\Delta E}} \right), \quad (23)$$

где  $\Delta E$  определено в (19).

### 3. Влияние пространственной дисперсии на положение экстремумов при резонансном отражении света

Эффект нелокальности взаимодействия (т.е. влияния волнового вектора света на оптические свойства кристаллов) можно учесть, если диэлектрическую проницаемость представить в виде [1]

$$\varepsilon_2(\omega) = \left( \frac{n_+ n_- + \varepsilon}{n_+ + n_-} \right)^2, \quad (24)$$

где

$$n_{\pm}^2 = \frac{1}{2} \left[ \varepsilon - \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} - i \frac{\omega\gamma}{\omega_0^2} \right) s \right] \pm \sqrt{\frac{1}{4} \left[ \varepsilon + \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} - i \frac{\omega\gamma}{\omega_0^2} \right) s \right]^2 + 4\pi\alpha s}, \quad (25)$$

$$s = \frac{m\omega_0 c^2}{\hbar\omega^2}, \quad (26)$$

$m$  — масса экситона,  $c$  — скорость света. Выражение (24) удобно преобразовать к форме (11)

$$\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon - \frac{4\pi\alpha s}{\varepsilon - (A_1 - iB_1)s + 2\sqrt{s/2}(A_2 + iB_2)}, \quad (27)$$

где

$$A_1 = 1 - \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right)^2, \quad B_1 = \frac{\gamma}{\omega_0} \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right),$$

$$\left( \frac{A_2}{B_2} \right) = \left[ \sqrt{(4\pi\alpha + \varepsilon A_1)^2 + \varepsilon^2 B_1^2} \mp (4\pi\alpha + \varepsilon A_1) \right]^{1/2}. \quad (28)$$

Здесь  $A_2$  соответствует верхний знак, а  $B_2$  — нижний. Поляризация считается параллельной полю и перпендикулярной направлению волнового вектора света  $\mathbf{k}$ . Направление  $\mathbf{k}$  выбирается так, чтобы тензор поляризуемости имел одну главную ось, параллельную  $\mathbf{k}$ , и остальные, перпендикулярные  $\mathbf{k}$ , в направлениях, не зависящих от величины  $\mathbf{k}$ . Зависимостью константы  $\varepsilon(\mathbf{k})$  пренебрегается, как и зависимостью  $\gamma(\mathbf{k})$ .

Выделим в (27) действительную и мнимую части  $\varepsilon$  и подставим их в (12). Тогда получим уравнение

$$\begin{aligned} \left( \frac{\varepsilon}{s} - A_1 + A_2 \sqrt{\frac{2}{s}} - \frac{2\pi\alpha}{\varepsilon} \right)^2 \sin^2 \varphi_{12} - \left( B_1 + B_2 \sqrt{\frac{2}{s}} \right)^2 \cos^2 \varphi_{12} = \\ = \left( \frac{2\pi\alpha}{\varepsilon} \right)^2 \sin^2 \varphi_{12} \cos^2 \varphi_{12}, \end{aligned} \quad (29)$$

которое в нерелятивистском случае  $c \rightarrow \infty$  ( $s \rightarrow \infty$ ) переходит в ранее полученное уравнение (12).

Найдем частотное решение (29). По определению (28)  $A_2 B_2 = \varepsilon B_1$  и с учетом (26) имеем

$$B_1 = \frac{\gamma}{\omega_0} \sqrt{1 - A_1}, \quad s = \frac{mc^2}{\hbar\omega_0} \frac{1}{1 - A_1}. \quad (30)$$

Это позволяет выразить в уравнении (29) величины  $B_1, B_2, s$  через  $A_1, A_2$ . Далее будем рассматривать только ситуацию, при которой поляризуемость решетки намного превышает затухание на резонансной частоте

$$\frac{4\pi\alpha}{\varepsilon} \gg \frac{\gamma}{\omega_0}. \quad (31)$$

Тогда вблизи резонансных переходов после некоторых упрощений находим решения уравнений (29) в виде

$$\omega_{1,2}^2 \approx \omega^2 \left[ \frac{1}{b_i} + \frac{4\pi\alpha}{\varepsilon b_i} \left( \frac{\sin^2 \varphi_{12}}{2} \right) \mp \frac{\varepsilon}{4\pi\alpha} \left( \frac{d_i}{b_i} \right)^2 \frac{\cos^2 \varphi_{12}}{\sin^2 \varphi_{12}} \right], \quad (32)$$

где величины  $b_i$  и  $d_i$  зависят от рассматриваемой частотной области. Так, в области поперечных колебаний

$$b_T \approx 1 + \varepsilon \frac{\hbar\omega_0}{mc^2} + \varepsilon \frac{\gamma}{\omega_0} \sqrt{\frac{\hbar\omega_0}{4\pi\alpha mc^2}}, \quad d_T \approx \frac{\gamma}{\omega_0} + 2\sqrt{4\pi\alpha \frac{\hbar\omega_0}{mc^2}}, \quad (33)$$

тогда как в области продольных колебаний

$$b_L \approx 1 + \varepsilon \frac{\hbar\omega_0}{mc^2} + \sqrt{2\varepsilon \frac{\hbar\gamma}{mc^2}}, \quad d_L \approx \frac{\gamma}{\omega_0} + \sqrt{2\varepsilon \frac{\hbar\gamma}{mc^2}}. \quad (34)$$

При скорости света  $c \rightarrow \infty$  имеем  $b = 1, d = \gamma/\omega_0$ , а выражение (32) переходит в найденное в разделе 2 решение (14).

Снова используя поляритонную терминологию (15), после ряда преобразований, в которых учитывались только наибольшие по порядку величины члены, находим энергетическое положение максимума отражения света как

$$E_{\max} = E_T + E_{LT} \sin^2 \theta - \frac{\varepsilon E_T^2}{2mc^2} - \frac{E_T \hbar\gamma}{4E_{LT}} \sqrt{2\varepsilon \frac{E_{LT}}{mc^2}} - \frac{(\hbar\gamma)^2}{16E_{LT}} \left( 1 + \frac{2E_T}{\hbar\gamma} \sqrt{2\varepsilon \frac{E_{LT}}{mc^2}} \right) \left( \frac{1}{\sin^2 \theta} - \frac{1}{\cos^2 \theta} \right) \quad (35)$$

при условии, которое, согласно (31), теперь имеет вид

$$2E_{LT} \gg \hbar\gamma \quad (36)$$

и является довольно обычным для полупроводников [2,12]. Положение минимума в то же время определяется формулой

$$E_{\min} = E_T + E_{LT} \cos^2 \theta - \frac{\varepsilon E_T^2}{2mc^2} - \frac{E_T}{2} \sqrt{2\varepsilon \frac{\hbar\gamma}{mc^2}} + \frac{(\hbar\gamma)^2}{16E_{LT}} \left( 1 + \frac{E_T}{\hbar\gamma} \sqrt{2\varepsilon \frac{\hbar\gamma}{mc^2}} \right)^2 \left( \frac{1}{\sin^2 \theta} - \frac{1}{\cos^2 \theta} \right). \quad (37)$$



При этом появляется ряд интересных особенностей. Прежде всего необходимо отметить, что ПД не одинаково влияет на сдвиг максимума и минимума отражения даже при одних и тех же набегах фазы. Так, в области  $n\pi < \theta < n\pi + \pi/4$  сдвиг минимума в коротковолновую сторону спектра оказывается по абсолютной величине значительно меньше, чем длинноволновый сдвиг максимума. Это связано, с одной стороны, с тем, что в этой области вклад второго слагаемого в первой круглой скобке (35) почти в два раза больше, чем вклад соответствующего в (37), а с другой — с совпадением направлений сдвигов, обусловленных последним слагаемым, с третьим и четвертым в (35) и их взаимной компенсацией в (37). Хотя вклад третьего и четвертого членов в (35) мал и не превышает десятка обратных сантиметров для различных кристаллов (и несколько выше для (37)), он обозначает тенденции, возникающие при учете ПД. При этом главную роль в (35), (37) играет последний член.

В области  $n\pi + \pi/4 < \theta < n\pi + \pi/2$ , наоборот, сдвиг минимума в коротковолновую сторону спектра становится значительно большим по абсолютной величине, чем сдвиг максимума в длинноволновую его часть (см. сплошные линии на рисунке).

Такую асимметрию сдвигов экстремумов как в одной, так и в другой области, видимо, можно связать с конкурирующим влиянием на отражение поляризуемости и затухания в кристалле, которые при фазах  $\theta$  до  $n\pi + \pi/4$  обеспечивают больший сдвиг максимума, а при фазах  $\theta$  после  $n\pi + \pi/4$  — больший сдвиг минимума.

Обсуждаемая неравномерность сдвигов, кажется, впервые экспериментально была отмечена для кристаллов LiH в [10].

Влияние ПД на положение экстремумов отражения по тенденции близко влиянию затухания. Особенно ярко это видно при углах близких к критическим, при которых происходит еще большее, чем с учетом одного только  $\gamma$ , смещение экстремумов отражения в противоположные стороны спектра. Действительно, используя предположение (17) и пренебрегая вкладом третьих и четвертых членов в (35), (37), получим

$$E_{\max} = E_{(T)} \mp \frac{1}{16\rho^2 E_{LT}} \left( 1 + \frac{2E_T}{\hbar\gamma} \sqrt{2\varepsilon \frac{E_{LT}}{mc^2}} \right)^2,$$

$$E_{\min} = E_{(T)} \pm \frac{1}{16\rho^2 E_{LT}} \left( 1 + \frac{E_T}{\hbar\gamma} \sqrt{2\varepsilon \frac{\hbar\gamma}{mc^2}} \right)^2, \quad (38)$$

где верхние знаки следует выбирать при  $\theta = n\pi$ , нижние — при  $\theta = n\pi + \pi/2$ . Тогда, сравнивая (38) с (18), находим вклад эффектов ПД наряду с затуханием. Очевидно, он больше для тех кристаллов, в которых величина параметров  $\varepsilon$ ,  $E_T$ ,  $E_{LT}$  больше, а  $m$  и  $\gamma$  меньше. Оценки для GaAs ( $E_T = 1.515$  eV,  $\hbar\gamma = 0.1$  meV,  $E_{LT} = 0.25$  meV,  $\varepsilon = 12.6$ ,  $m = 0.298m_0$ ) [16] и LiH ( $E_T = 4.95$  eV,  $\hbar\gamma = 3 \cdot 10^{-3}$  eV,  $E_{LT} = 20$  meV,  $\varepsilon = 3.63$ ,  $m = 0.3m_0$ ) [10] показывают, что вклад в сдвиг экстремумов может достигать от 1800 до 5000% от вклада одного только затухания для максимума и от 260 до 870% для минимума отражения. Более высокие проценты в парах чисел относятся к GaAs. Можно сказать, что

влияние ПД на максимум отражения сказывается в большей мере, чем на минимум отражения.

Для определения абсолютного вклада ПД в смещение экстремумов необходимо задать параметр  $\rho$ . Его значение и сущность можно попытаться определить, если воспользоваться известным [13] предположением о том, что глубина «мертвого» слоя для многих полупроводников близка к  $l \approx 1.5r_{\text{ex}}$  для  $n = 1$  экситонного радиуса. Тогда согласно (2), (17), получаем

$$|\rho| \cong \frac{3\pi r_{\text{ex}}}{\hbar\gamma\lambda_T} \sqrt{\varepsilon_1 - \sin^2 \varphi}, \quad (39)$$

и вклад ПД в сдвиг экстремумов в простейшем случае экстремальных фаз может быть оценен по формулам

$$\Delta E_{\text{max } SD} \approx \mp \frac{\varepsilon}{\varepsilon_1 - \sin^2 \varphi} \frac{1}{2m} \left( \frac{2\hbar}{3r_{\text{ex}}} \right)^2, \quad \Delta E_{\text{min } SD} = \pm \frac{\hbar\gamma}{4E_{LT}} \Delta E_{\text{max } SD}, \quad (40)$$

где выбор знака, как и выше, соответствует фазе.

Согласно (40), сдвиги должны достигать наибольших значений в кристаллах с малыми эффективными массами и радиусом экситона. Например, для  $n = 1$  экситона в CdS ( $m = 0.9m_0$ ,  $\hbar\gamma = 0.1 \text{ meV}$ ,  $E_{LT} = 2 \text{ meV}$  [11]) имеем  $r_{\text{ex}} = 15 \text{ \AA}$ , что при  $\varepsilon = \varepsilon_1$  и  $\varphi = 0$  дает  $\Delta E_{\text{max } SD}^{\text{CdS}} \approx 67.5 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Delta E_{\text{min } SD}^{\text{CdS}} \approx 1 \text{ cm}^{-1}$ . С увеличением угла падения  $\varphi$  эти значения увеличиваются, так как смещение экстремумов  $\Delta E$  растет. Направление смещения зависит от области рассматриваемых фаз.

Ранее экспериментально для CdS был обнаружен [8] сдвиг минимума отражения в коротковолновую сторону по мере увеличения угла падения  $\varphi$ . Учитывая (2), (37), можно видеть, что такое направление смещения согласуется с нашими выводами в области малых фаз  $\theta < n\pi + \pi/4$ . Однако количественно (в отсутствие пленки и при равном нулю затухании) выражения (37), (38) для минимума отражения несколько отличаются от полученных в [8]. Результат для  $E_{\text{min}}$  также отличается от того значения  $E_{\text{min}}$ , которое получено в [11] при брюстеровских углах падения, что обусловлено, по-видимому, другими условиями отражения света.

#### 4. Обсуждение результатов

Анализируя результаты для величины и направления сдвигов экстремумов отражения в разных фазовых областях, приходим к заключению, что проявление ПД подобно учету затухания в кристалле и действует в том же направлении, усиливая эффекты релаксации в системе. Поэтому эффекты, обусловленные ПД, желательнее наблюдать при гелиевых температурах в кристаллах (как видно из (38)) с относительно большими значениями диэлектрической проницаемости, энергии поперечно-продольного расщепления, энергии поперечных колебаний и с малыми значениями эффективной массы электрона. Учет ПД ведет к дополнительному (по сравнению с учетом одного только затухания) смещению минимума отражения света в коротковолновую

сторону спектра, которое ускоряется с ростом сдвига фазы, а также к длинноволновому смещению максимума отражения, которое, наоборот, замедляется с ростом сдвига фазы. Такой вывод не подтверждает предположение Хопфилда и Томаса о том, что появление спайка на продольной частоте, обусловленное ПД, смещает минимум отражения в сторону более низких энергий. Вместе с тем он соответствует результатам [9] для сдвига максимума и наблюдениям [10] для смещения минимума.

Проведенные исследования, используя (2), (4), (5), легко можно обобщить для произвольных углов падения и поглощающих пленок. Тогда условия для компенсации фаз усложняются, минимум в отражении может достигаться при углах Брюстера или при любых других фиксированных углах при соответствующем подборе  $\gamma$  [11].

Из проведенных нами исследований также ясно, что возникновение спайка, его уширение и инверсию не следует прямо связывать с наличием ПД, так как все это имеет место и при учете одного только затухания.

В отсутствие ПД и при  $\gamma = 0$  в рамках одноосцилляторной модели в области частот  $\omega_T < \omega < \omega_L$  однородные плоские волны не могут распространяться и свет почти полностью отражается. Появление волн обусловлено наличием  $\gamma$  и происходит только, когда вещественная часть волнового вектора превысит его мнимую часть, распространение света в среде станет существенным и отражение будет меньше единицы. Наличие ПД обуславливает распространение нескольких волн в среде, поэтому коэффициент отражения должен быть еще меньше.

### Список литературы

- [1] Пекар С.И. // ЖЭТФ. 1957. Т. 33. С. 1022–1036; 1959. Т. 36. С. 451–464.
- [2] Агранович В.М., Гинзбург В.Л. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теории экситонов М.: Наука, 1979. 432 с.
- [3] Hopfield J.J., Thomas D.G. // Phys. Rev. 1963. V. 132. N 5. P. 563–572.
- [4] De Grescenzi M., Harbeke G., Tosatti E. // Solid State Commun. 1979. V. 32. N 9. P. 777–781.
- [5] Brodin M.S., Davydova N.A., Strashnikova M.I. // Phys. Stat. Sol. (b). 1975. V. 70. P. 365–371.
- [6] Соловьев Л.Е., Бабинский А.В. // Письма в ЖЭТФ. 1976. Т. 23. № 5. С. 291–295.
- [7] Комаров А.В., Рябченко С.М., Страшникова М.И. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 5. С. 251–260.
- [8] Пермогоров С.А., Селькин А.В., Травников В.В. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 6. С. 1822–1829.
- [9] Машлятина Т.М., Недзвецкий Д.С., Соловьев Л.Е. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 7. С. 2040–2044.
- [10] О'Коннелль-Бронин А.А., Чолах С.О., Полиенко А.Н., Трещалов А.Б. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 7. С. 180–183.
- [11] Певцов А.Б., Селькин А.В. // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. № 2(8). С. 516–531.
- [12] Экситоны / Пер. с англ.; Под ред. Э.И. Рашба и М.Д. Стерджа. М.: Наука, 1985. С. 107–129.
- [13] Evangelisti F., Frova A., Patella F. // Phys. Rev. B. 1974. V. 10. N 10. P. 4253–4261.
- [14] Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1970. 720 с.
- [15] Кособудский П.С. // УФЖ. 1983. Т. 28. № 7. С. 1090–1091.
- [16] Sell D.D., Stokowski S.E., Dingle R., DiLorenzo J.V. // Phys. Rev. B. 1973. V. 7. N 10. P. 4568–4586.