УДК 535.343.2; 535.548; 535.51

ВЛИЯНИЕ АТОМАРНОГО ПЕРЕХОДНОГО СЛОЯ НА ПОЛЯРИЗАЦИЮ ОТРАЖЕННОГО СВЕТА

С. Н. Латынин

Использована микроскопическая теория при исследовании поляризации света, отраженного от дипольных решеток с дефектной поверхностной плоскостью (допускается вариация межатомного расстояния в направлении, перпендикулярном к поверхности). Показана его эллиптичность, получены коэффициенты эллиптичности для кубических решеток.

Феноменологическая теория Друде переходного слоя [1] при описании поляризации света, отраженного от поверхностей тщательно очищенных жидкостей, как известно [2, 3], приводит к тому, что наряду с переходными слоями, вызванными загрязнением и т. п., необходимо учитывать слои ($\sim$ межатомных расстояний), обусловленные молекулярной структурой самой отражающей поверхности. В [2] выдвигался ряд причин, объясняющих отступления от формул Френеля, которые анализировались в работах Сивухина [3, 4] на молекулярном уровне модели дипольной решетки, где параметры переходного слоя связывались с поляризуемостью приповерхностных атомов. Однако в работах [5, 6] было показано, что дополнительная поверхностная поляризация кристалла, обусловленная исключительно отличием от среднего электрического поля, действующего на поверхностные атомы, не объясняет экспериментально наблюдаемых значений коэффициентов эллиптичности. В [7], несмотря на предполагаемую малость эффекта, указывалось на теоретическую возможность изменения межатомных расстояний в поверхностном слое, а в [3] это уже допускалось как одна из возможных причин эллиптичности наряду с учетом анизотропии и преимущественной ориентации молекул у поверхности среды. Однако искажения структуры решетки у поверхности в [3] не являются основной причиной, учет их проведен нестрого, а получаемые там коэффициенты завышены [8]. Так как смещение поверхностных атомов является общим свойством для всех кристаллов, то представляется возможным исследовать поверхность монокристалла через поляризацию отраженного от него света, что и сделано в настоящей работе на примере полубесконечной дипольной решетки.

1. Поле в кристалле рассматриваем как суперпозицию падающей на ее поверхность волны $\mathbf{E}^{(e)}(\mathbf{r}, t)=\mathbf{E}_0^{(e)}\exp(i\mathbf{k}_0\mathbf{r}-i\omega t)$, где $k_0=\omega a/c$, ω — частота, a — постоянная решетки в глубине, и совокупности рассеянных волн, излучаемых поляризованными атомами, дипольные моменты которых в l-м узле определяются произведением

$$\mathscr{P}^l = A(\omega)\{\mathbf{E}^{(l)}(\mathbf{l}) + \mathbf{E}^*(\mathbf{l})\}, \tag{1}$$

где $A(\omega)=\alpha(\omega)/a^3$; $\alpha(\omega)$ — атомная поляризуемость; $\mathbf{E}^*(\mathbf{l})$ — поле, создаваемое дипольными моментами всех атомов, кроме l-го, в его центре. Оно определяется через вектор Герца по методу Эвальда, обобщенному для ограниченных сред [5, 6]. Рассмотрим вначале простую кубическую решетку ($z>0$) с поверхностной атомной плоскостью типа (1 0 m), где

m — целое число и векторами решеток $\mathbf{a}_1$,$\mathbf{a}_2$, $\mathbf{a}_3$, направленными вдоль соответствующих координатных осей x, y, z. Тогда радиус-вектор l-го узла

$$\mathbf{l} = (l_1 h - 2(l_3-1)d,\ l_2,\ 1 + \nu\delta_{l_3,1} + 2(l_3-1)b),$$

где ν — смещение поверхностной атомной плоскости; $h = \sqrt{1+m^2}$,

$$d = m/2\sqrt{1+m^2}, \quad b = 1/2\sqrt{1+m^2},$$

$$\delta_{l_3,1} = \begin{cases} 0, & l_3 \neq 1, \\ 1, & l_3 = 1, \end{cases}$$

l_1, l_2, l_3 — целые числа ($l_3 > 0$) в единицах постоянной решетки. Плоскость падения xz. $\tilde{\mathscr{P}}^l(t)$ для атомов поверхности и атомов с $l_3 \neq 1$ определим соответственно в виде

$$\tilde{\mathscr{P}}^1(t) = \mathscr{P}(\nu)\exp(i\mathbf{k}_\perp \mathbf{l}_\perp - i\omega t), \tag{2}$$

$$\tilde{\mathscr{P}}^l(t) = \tilde{\mathscr{P}}_0 \exp(i\mathbf{kl} - i\omega t), \tag{3}$$

где $\mathscr{P}(\nu)$ нужно еще доопределить; $\mathbf{k} = (\mathbf{k}_\perp, k_3)$ — волновой вектор, умноженный на a; $\perp$ — проекция на плоскость xy.

Для атомов в глубине преобразования в (1) приведут к системе уравнений, аналогичной полученной в [5]. Однако здесь теорема Эвальда—Озеена учитывает то, что погашается не только падающая волна, но и поле, создаваемое дефектной поверхностной атомной плоскостью. Это приведет к перенормировке дипольных моментов (в первом приближении) с точностью до членов порядка a/λ ($a/\lambda \ll 1$, λ — длина волны); получим

$$\tilde{\mathscr{P}}_0 = \mathscr{P}_0 - [1 - \exp(ik_{03} - ik_3)][\mathscr{P}_0 \exp(ik_3 - ik_{03}) - \mathscr{P}(\nu)\exp(-ik_{03}(1+\nu))], \tag{4}$$

где $\mathscr{P}_0$ — дипольный момент атомов полубесконечного кристалла без переходного слоя. Для атомов же поверхности получим систему уравнений вида

$$\begin{aligned}\left(\frac{1}{A(\omega)} - \frac{4\pi}{3}\right)\mathscr{P}_\alpha(\nu) = \sum_{\beta,\, \mathbf{Q}_\perp} \rho^+_{\alpha\beta}(\mathbf{k},\ \mathbf{Q}_\perp)\exp(ik_3 + \gamma_Q \nu)\tilde{\mathscr{P}}_{0\beta} + \\ + \sum_{\beta,\, \mathbf{Q}_\perp} \rho^-_{\alpha\beta}(\mathbf{k},\ \mathbf{Q}_\perp)\exp(ik_3 - \gamma_Q \nu)\mathscr{P}_{0\beta},\end{aligned} \tag{5}$$

$$E^{(e)}_{0\alpha} = \sum_\beta \rho^-_{\alpha\beta}(\mathbf{k},\ 0)\exp(ik_3 - ik_{03})\mathscr{P}_{0\beta}, \tag{6}$$

где

$$\begin{aligned}\rho^L_{\alpha\beta}(\mathbf{k},\ \mathbf{Q}_\perp) = -2\pi\left[(iQ_{\perp\alpha} + ik_{\perp\alpha} - L\gamma_Q\delta_{\alpha 3})(iQ_{\perp\beta} + ik_{\perp\beta} - L\gamma_Q\delta_{\beta 3}) + \right. \\ \left. + k_0^2\delta_{\alpha\beta}\right]/\gamma_Q\left[1 - \exp(Lik_3 + \gamma_Q)\right],\end{aligned} \tag{7}$$

$$L = +,\ -,\quad \gamma_Q = \sqrt{(\mathbf{Q}_\perp + \mathbf{k}_\perp)^2 - k_0^2}, \quad \mathbf{Q}_\perp = (q_{\perp 1}/h,\ q_{\perp 2}),$$

$\mathbf{q}_\perp$ — вектор обратной решетки, умноженный на a. (6) — теорема погашения, как и в полубесконечном кристалле без переходного слоя [5]. Тогда доопределим дипольный момент (2), чтобы он удовлетворил (5), (6), и получим

$$\mathscr{P}(\nu) = \mathscr{P}_0 \exp ik_3(1+\nu) + \mathbf{P}(\nu), \tag{8}$$

где

$$P_\alpha(\nu) = \sum_{\beta,\gamma}\sum_{\mathbf{Q}_\perp} \theta^{-1}_{\alpha\beta}\rho^L_{\beta\gamma}(\mathbf{k}, \mathbf{Q}_\perp)\left[\exp(ik_3 + L\gamma_Q\nu) - \exp ik_3(1+\nu)\right]\mathscr{P}_{0\gamma} + 0\left(\frac{a}{\lambda}\right), \tag{9}$$

$\theta^{-1}_{\alpha\beta}$ — тензор, обратный к $1/A(\omega) - 4\pi/3\delta_{\alpha\beta} + 4\pi\delta_{\alpha 3}\delta_{\beta 3}$.

2. Отраженная волна — это поле, создаваемое всеми атомными плоскостями вне кристалла [6], и она в произвольной точке $\mathbf{r}=(\mathbf{r}_\perp, \mathbf{r}_3)$ имеет вид

$$E_\alpha^{(r)}(\mathbf{r}, t)=\sum_{\beta, \mathbf{Q}_\perp} \rho_{\alpha\beta}^{+}(\mathbf{k}, Q_\perp)\left[\exp\left(ik_3-\gamma_Q\right)\mathscr{P}_{0\beta}+\exp\left(-\gamma_Q(1+\nu)\right)\times\right.$$
$$\left.\times\left[\exp\left(\gamma_Q-ik_3\right)-1\right]\mathscr{P}_\beta(\nu)\right]\exp\left(-\gamma_Q|r_3|+i(\mathbf{k}_\perp+\mathbf{Q}_\perp)\mathbf{r}_\perp-i\omega t\right), \quad (10)$$

(10) представляет собой суперпозицию полей: члены, содержащие экспоненты $\exp(-\gamma_Q|r_3|)$, с показателями приблизительно линейно растущими с $|\mathbf{q}_\perp|$, которые в дальнейшем не рассматриваются, и незатухающие члены при $\mathbf{q}_\perp=0$ — плоские волны с волновыми вектором $\tilde{\mathbf{k}}_0=(\mathbf{k}_{0\perp}, -k_3)$. Из (10) следует, что в общем случае $\nu\neq 0$, даже если падающий свет линейно поляризован, то отраженный всегда эллиптически поляризован. Наиболее ярко это выражено при падении под углом Брюстера, когда отношение $E_0^{(r)p}/E_0^{(r)s}$ чисто мнимое, где $\mathbf{E}_0^{(2)s}||0y$, $\mathbf{E}_0^{(2)p}||xz$. В линейном приближении по a/λ коэффициент эллиптичности имеет вид

$$\frac{E_0^{(r)p}}{E_0^{(r)s}}=i\rho=i\frac{k_0}{\sqrt{1+n^2}}\left[\Theta_{11}^{-1}D_1+\Theta_{33}^{-1}D_3\right]\frac{E_0^{(e)p}}{E_0^{(e)s}}, \quad (11)$$

где n — показатель преломления,

$$D_1=\frac{4\pi b}{n}\sum_{\mathbf{q}_\perp\neq 0}{}' \frac{\exp(-|\mathbf{q}_\perp|(2b-\nu))\left[1-\exp(-|\mathbf{q}_\perp|\nu)\right]^2}{\left(\cos\left(\mathbf{q}_\perp\frac{2d}{h}\right)-\exp(-2|\mathbf{q}_\perp|b)\right)^2+\sin^2\left(q_{\perp 1}\frac{2d}{h}\right)}\times$$
$$\times\left[\frac{nq_{\perp 1}^2}{|\mathbf{q}_\perp|h^2}\left\{\cos\left(q_{\perp 1}\frac{2d}{h}\right)\exp(-2|\mathbf{q}_\perp|b)\right\}-\frac{q_{\perp 1}}{h}\sin\left(q_{\perp 1}\frac{2d}{h}\right)\right], \quad (12)$$

$|\mathbf{q}_\perp|=\sqrt{(q_{\perp 1}/h)^2+q_{\perp 2}^2}$. Если в (12) сделать замену $Q_{\perp 1}^2$ на $|\mathbf{q}_\perp|^2$, то получим формулу, определяющую D_3.

Таким образом, ρ зависит от m, ν и ω. При изменении m от 0 до 1 ρ изменяется как по абсолютной величине, так и по знаку. В окрестности дисперсионной частоты $A(\omega)\to 3/4\,\pi$ и коэффициент эллиптичности стремится к бесконечности. Таким образом, ρ может быть довольно большим и наблюдаемым даже при учете поглощения в кристалле.

Приведенное выше рассмотрение легко обобщается на случай гранецентрированной и объемноцентрированной кубических решеток [8]. Так, для гранецентрированной решетки коэффициент эллиптичности определяется той же формулой (11), причем если m четное и $\mathbf{l}=(l_1h+(l_3-1)\,d+ +h\Omega/2,\ l_2+(l_3-1)/2+\Omega/2,\ 1+(l_3-1)\,b)$, где $\Omega=0.1$, то

$$D_1=\frac{2\pi b}{n}\sum_{\mathbf{q}_\perp\neq 0}{}' \frac{\exp(-|\mathbf{q}_\perp|(b-\nu))\left[1-\exp(-|\mathbf{q}_\perp|\nu)\right]^2}{\left(\cos\left(\frac{q_{\perp 1}d}{h}+\frac{q_{\perp 2}}{2}\right)-\exp(-|\mathbf{q}_\perp|b)\right)^2+\sin^2\left(\frac{q_{\perp 1}d}{h}+\frac{q_{\perp 2}}{2}\right)}\times$$
$$\times\left[\frac{nq_{\perp 1}^2}{|\mathbf{q}_\perp|h^2}\left\{\cos\left(\frac{q_{\perp 1}d}{h}+\frac{q_{\perp 2}}{2}\right)-\exp(-|\mathbf{q}_\perp|b)\right\}-\right.$$
$$\left.-\frac{q_{\perp 1}}{h}\sin\left(q_{\perp 1}\frac{d}{h}+\frac{q_{\perp 2}}{2}\right)\right]\left(1+\cos\frac{q_{\perp 1}+q_{\perp 2}}{2}\right), \quad (13)$$

$\Theta_{33}^{-1}=1/A(\omega)-4\pi(b-6)/3\,b$; если m нечетное, то D_1 определяется, как и для четных m, но без умножения на $1+\cos(q_{\perp 1}+q_{\perp 2})/2$ и с заменой h на $h/2$, $\Theta_{33}=1/A(\omega)-4\pi(b-3)/3b$. D_3 в обоих случаях получают из соответствующих формул для D_1, если сделать соответствующие замены $Q_{\perp 1}^2$ на $|q_\perp|^2$, а $\Theta_{11}=1/A(\omega)-4\pi/3$.

Если смещение поверхностной плоскости составляет 10—1 % от постоянной решетки в глубине, то при $\lambda=5500$ Å получим: для Ne, если $m=0$, то $\rho\sim -4.9\cdot 10^{-5}\div -5\cdot 10^{-6}$, и если $m=1$, то $\rho\sim 7\cdot 10^{-6}\div 1\cdot 10^{-8}$; для Ar: соответственно $\rho\sim -1.71\cdot 10^{4-}\div -1.9\cdot 10^{-5}$ и $\rho\sim 3\cdot 10^{-5}-$ $-1.2\cdot 10^{-7}$.

Таким образом, показана зависимость ρ от типа кристаллической атомной плоскости на поверхности монокристалла, что может представлять определенный интерес при оптических исследованиях структуры отражающей поверхности.

В заключение отметим, что развиваемая в работе микроскопическая теория атомарного переходного слоя пригодна как для молекулярных кристаллов, так и для валентных кристаллов в области частот, соответствующих образованию глубоких экситонов Френкеля, в рамках квазимолекулярной модели валентного кристалла [9].

Автор выражает благодарность К. Б. Толпыго за руководство в работе.

Список литературы

[1] Друде П. Оптика. Л., 1935. 462 с.
[2] Мандельштам Л. И. Полное собрание трудов. Т. 5. М., 1959. 348 с.
[3] Сивухин Д. В. // ЖЭТФ. 1948. Т. 18. № 11. С. 976—987.
[4] Сивухина Д. В. // ЖЭТФ. 1951. Т. 21. № 2. С. 367—374.
[5] Латынин С. Н., Толпыго К. Б. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 4. С. 191—193.
[6] Латынин С. Н., Толпыго К. Б. // Деп. в ВИНИТИ. 1987. № 8869-В87.
[7] Борн М., Гепперт-Мейер М. Теория твердого тела. Л., 1938. 364 с.
[8] Латынин С. Н. // Деп. в ВИНИТИ. 1990. № 4399-В90.
[9] Толпыго К. Б. // ФТТ. 1975. Т. 17. № 6. С. 1769—1773.

Донецкий физико-технический институт
АН УССР

Поступило в Редакцию
19 апреля 1990 г.
В окончательной редакции
10 февраля 1991 г.