Физика твердого тела, 1998, том 40, № 4

Расчет тензора диэлектрической проницаемости в поверхностном слое кубического кристалла

 С.Н. Латынин

Донбасская государственная академия строительства и архитектуры,
339023 Макеевка, Донецкая обл., Украина

(Поступила в Редакцию 30 сентября 1997 г.)

В методике действующего поля учтена пространственная неоднородность в поверхностном слое кристалла при расчете тензора диэлектрической проницаемости. Показана естественная оптическая активность кубических кристаллов в слое порядка нескольких постоянных решетки.

В [1] отмечалась необходимость определения тензора диэлектрической проницаемости во всем объеме ограниченного кристалла, включая и поверхностную область. При этом отпала бы необходимость в выводе дополнительных граничных условий при изучении добавочных световых волн [2]. Так, в [3,4], использовав "диэлектрическое приближение", дополнительные граничные условия получают из материальной связи, рассчитав нелокальную поляризуемость у поверхности, которую даже приближенно нельзя считать однородной функцией по z. В [5,6] указывалось на возможность получения дополнительной поверхностной поляризации кристалла в рамках микроскопического подхода с использованием метода действующего поля [7]. В настоящей работе использована микроскопическая теория [5,6] при расчете поляризации кристалла и тензора диэлектрической проницаемости простой кубической решетки с поверхностной плоскостью типа (100).

В работе рассмотрена поляризация полубесконечной решетки монохроматической волной вида $E^{(e)}(r,t) = E_0^{(e)}\exp(ik_0r - i\omega t)$, где $|k_0| = \frac{\omega a}{c}$ (a — постоянная решетки, ω — частота). Дипольный момент атома l кристалла P^l, как и в [5,6], определяется самосогласованным образом из системы уравнений

$$P^l(t) = \alpha(\omega)\left\{E^{(d)l}(t) + E^{(e)}(t)\right\}, \qquad (1)$$

где $\alpha(\omega)$ — атомная поляризуемость, $E^{(d)l}$ — действующее на атом l поле, создаваемое всеми атомами, кроме l-го в его центре, его Фурье-амплитуды получены для дипольных моментов в виде плоских волн в [5]. Для простой кубической решетки радиус-вектор l-го атома $l = (l_\perp, l_3) = (l_1, l_2, l_3)$, l_1, l_2, l_3 — целые числа в единицах постоянной решетки, $l_3 > 0$, символ $\perp$ обозначает проекцию на плоскость XY, совпадающую с поверхностной плоскостью.

Дипольный момент общего вида, удовлетворяющий системе (1) во всем кристалле, с нулевым остатком в провой части (см. [5]) получен в виде

$$P^l = P_0\exp(ikl - i\omega t) + \sum_{q_\perp, q_\perp\neq 0} B(q_\perp) \times\left[1 + \sum_{n=1}^{l_3-1}\frac{1}{n!}\prod_{m=1}^{n}(l_3 - m)\right] \times\exp\left(-\gamma_q l_3 + i(q_\perp + k_\perp)l_\perp - i\omega t\right), \qquad (2)$$

где $\gamma_q = \sqrt{(q_\perp + k_\perp)^2 - k_0^2}$, $q_\perp$ — вектор обратной решетки (в единицах $1/a$), k — волновой вектор, умноженный на a. Второе слагаемое в (2) определяет дополнительную поверхностную поляризацию кристалла, которая сложным образом зависит от l_3 (от расстояния до поверхности). Дополнительная поверхностная поляризация существенна только на расстоянии порядка нескольких постоянных решетки. Условие $q_\perp \neq 0$ в $\sum_{q_\perp}$ введено ввиду отсутствия в глубине кристалла волн с $k = k_0$.

Используя обобщение метода Эвальда на двумернопериодические структуры (см. [5,6]), после подстановки в вектор Герца дипольного момента в виде (2) правую часть уравнения (1) преобразуем к сумме двух выражений

$$E^*_\alpha(l,t) = \varphi_{\alpha\beta}(\omega,k)P_{0\beta}\exp(ikl - i\omega t) + \sum_{q_\perp, q_\perp\neq 0} W_{\alpha\beta}(\omega,k,q_\perp)B_\beta(q_\perp) \times\left[1 + \sum_{n=1}^{l_3-1}\frac{1}{n!}\prod_{m=1}^{n}(l_3 - m)\right] \times\exp\left(-\gamma_q l_3 + i(q_\perp + k_\perp)l_\perp - i\omega t\right) \qquad (3)$$

и

$$E^{(e)}_{0\alpha}\exp\left(ik_0 l - i\omega t\right) + \sum_{q_\perp}\rho^-_{\alpha\beta}(\omega,k_\perp,q_\perp) \times\left[\frac{1}{1 - \exp\left(-(ik_3 + \gamma_q)\right)}P_{0\beta} + \sum_{q'_\perp, q'_\perp\neq 0}\frac{1}{2 - \exp(-\gamma_q + \gamma_{q'})}B_\beta(q'_\perp)\right] \times\exp\left(-\gamma_q l_3 + i(q_\perp + k_\perp)l_\perp - i\omega t\right), \qquad (4)$$

где $\alpha, \beta = 1,2,3$. Соответствующие тензоры в этих выражениях имеют вид

$$\varphi_{\alpha,\beta}(\omega,k) = \varphi^\perp_{\alpha\beta}(\omega,k_\perp) + \sum_{q_\perp}\left[\rho^-_{\alpha\beta}(\omega,k_\perp,q_\perp)\frac{1}{1-\exp(\gamma_q + ik_3)} + \rho^+_{\alpha\beta}(\omega,k_\perp,q_\perp)\frac{1}{1 - \exp(\gamma_q - ik_3)}\right], \qquad (5)$$

$$W_{\alpha,\beta}(\omega, k_\perp, q'_\perp) = \varphi^{\perp}_{\alpha\beta}(\omega, k_\perp) + \sum_{q_\perp} \Big[\rho^{-}_{\alpha\beta}(\omega, k_\perp, q_\perp) \frac{1}{1-2\exp(\gamma_q - \gamma_{q'})} + \rho^{+}_{\alpha\beta}(\omega, k_\perp, q_\perp) \frac{1}{2-\exp(\gamma_q + \gamma_{q'})} \Big], \quad (6)$$

$$\varphi^{\perp}_{\alpha\beta}(\omega, k_\perp) = -\frac{2\pi}{a^3} \sum_{q_\perp} \frac{1 - \Phi\left(\frac{\gamma_q}{2\sqrt{\pi}}\right)}{\gamma_q} \times \Big[(q_\perp + k_\perp)_\alpha (q_\perp + k_\perp)_\beta - \gamma_q^2 \delta_{\alpha 3}\delta_{\beta 3} - k_0^2 \delta_{\alpha\beta} \Big] - \frac{4\pi}{a^3} \sum_{q_\perp} \exp\left(-\frac{\gamma_q}{2\sqrt{\pi}}\right) \delta_{\alpha 3}\delta_{\beta 3} + \frac{1}{a^3}\left(\frac{4\pi}{3} - 2k_0^2\right)\delta_{\alpha\beta} + \frac{2}{a^3\sqrt{\pi}} \times \sum_{l'_\perp, l'_\perp \neq 0} \exp\big(-ik_\perp(l_\perp - l'_\perp)\big) \times \Big\{ k_0^2 \delta_{\alpha\beta} f_0 - 2\delta_{\alpha\beta} f_2 + 4(l_\perp - l'_\perp)_\alpha (l_\perp - l'_\perp)_\beta f_4 \Big\},$$

$$\Phi(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-t^2)\, dt,$$

$$f_n = \int_{\sqrt{\pi}}^{\infty} x^n \exp\big(-x^2(|l_\perp - l'_\perp|)^2\big)\, dx,$$

$$\rho^{\pm}_{\alpha\beta} = -\frac{2\pi}{\gamma_q a^3} \Big\{ (ik_{\perp\alpha} + iq_{\perp\alpha} \mp \gamma_q \delta_{a3}) \times (ik_{\perp\beta} + iq_{\perp\beta} \mp \gamma_q \delta_{\beta 3}) + k_0^2 \delta_{\alpha\beta} \Big\}.$$

Выражение (3) представляет волну, распространяющуюся в кристалле после преломления. Первое слагаемое в (3) — "объемная" волна, где (5) можно представить в виде длинноволнового разложения

$$\varphi_{\alpha\beta}(\omega, k) a^3 = -4\pi \frac{k_\alpha k_\beta - k_0^2 \delta_{\alpha\beta}}{k^2 - k_0^2} + \varphi'_{\alpha\beta}(\omega, k). \quad (7)$$

Первое слагаемое в (7), ответственное за макрополе, можно выделить всегда как в полубесконечном кристалле, так и в слое конечной толщины (вплоть до монослоя), что отличается от выводов работы [8]. $\varphi'_{\alpha\beta}(\omega, k)$ содержит такие же структурные коэффициенты длинноволнового разложения в членах порядка k^2, как и в случае бесконечного кристалла (см. [7]).

Второе слагаемое в (3) представляет собой поверхностные волны с амплитудами, убывающими с глубиной, распространяющиеся вдоль поверхности. Длинноволновое разложение тензора (6) в отличие от (7) содержит члены порядка $ik_\perp$. Это приводит к естественной оптической активности кубических кристаллов в тонком поверхностном слое порядка нескольких постоянных решетки.

Второе выражение (4) при $q_\perp = 0$ дает теорему погашения Эвальда–Озеена (см. [5,6]), из которой следует, что падающая волна полностью гасится в поверхностном слое. Если $q_\perp \neq 0$, то, приравнивая в (4) коэффициенты при одинаковых экспонентах, получим выражение, связывающее амплитуды дипольных моментов $B(q_\perp)$ и P_0,

$$B(q_\perp) = V(\omega, k, q_\perp) P_0,$$

$$V(\omega, k, q_\perp) = \sum_{i=0}^{\infty} \frac{1}{2^{i+1}} \frac{1}{\exp\big(-(ik_3 + \gamma_q^i)\big) - 1} \times \prod_{j=1}^{i} \Phi^j(\omega, k_\perp, q^j_\perp), \quad (8)$$

где

$$\Phi^j(\omega, k_\perp, q^j_\perp) = \sum_{q^j_\perp, q^j_\perp \neq 0, q^{j-1}_\perp} \frac{1}{\exp\big(-(\gamma_q^{j-1} - \gamma_q^j)\big) - 1},$$

$q^j_\perp$, $q^{j-1}_\perp$, $q^i_\perp$ — обозначения различных векторов обратной решетки в i-й или j-й сумме, $q^0_\perp = q_\perp$.

Подставив (8) в (3), с учетом (7) на основании определения тензора диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{\alpha\beta}$ (см. [9]) получим

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \varepsilon_{\alpha\beta}(\omega, k, l_3) = \delta_{\alpha\beta} + 4\pi A(\omega) T^{-1}_{\alpha\beta}(\omega, k, l_3), \quad (9)$$

где $A(\omega) = \frac{\alpha(\omega)}{a^3}$, $T^{-1}_{\alpha\beta}$ — тензор, обратный

$$T_{\alpha\beta}(\omega, k, l_3) = \delta_{\alpha\beta} - A(\omega) \Big\{ \varphi'_{\alpha\beta}(\omega, k) + \sum_{q_\perp, q_\perp \neq 0} W_{\alpha\beta}(\omega, k_\perp, q_\perp) \Big[1 + \sum_{n=1}^{l_3 - 1} \frac{1}{n!} \prod_{m=1}^{n} (l_3 - m) \Big] \times V(\omega, k_\perp, q_\perp) \exp\big(-(\gamma_q + ik_3) l_3 + iq_\perp l_\perp\big) \Big\}. \quad (10)$$

Таким образом, получен в общем виде (9) тензор диэлектрической проницаемости с учетом пространственной неоднородности и оптической анизотропии в поверхностном слое полубесконечного кубического кристалла. Из (9) следует, что $\varepsilon_{\alpha\beta}$ определяется неоднородной функцией по z, очень сильно изменяющейся с глубиной (координатная ось OZ направлена в глубь кристалла и совпадет с трансляционным вектором a_3). Длинноволновое разложение (10) по k, а значит, и $\varepsilon_{\alpha\beta}$ для каждого слоя будет своим и содержит наряду с квадратичными членами и члены порядка $ik_\perp$, что предполагает естественную оптическую активность кубических кристаллов в поверхностном слое. На глубине порядка нескольких постоянных решетки для поверхностной плоскости типа (100) длинноволновое разложение $T_{\alpha\beta}$ и $\varepsilon_{\alpha\beta}$ такое же, как и для бесконечного кристалла [10], так как $T_{\alpha\beta} \to \delta_{\alpha\beta} - A(\omega)\varphi'_{\alpha\beta}(\omega, k)$ при $l_3 \to \infty$.

Список литературы

[1] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика, учет пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1986). 432 с.
[2] С.И. Пекар. Кристаллооптика и добавочные световые волны. Наук. думка, Киев (1982). 296 с.
[3] R. Zeyher, J. Birman, W. Breng. Phys. Rev. **B 6**, *12*, 4613 (1972).
[4] A.A. Maradudin, D.A. Mills. Phys. Rev. **B 7**, *6*, 2787 (1973).
[5] С.Н. Латынин, К.Б. Толпыго. ФТТ **30**, *4*, 191 (1988).
[6] С.Н. Латынин. ФТТ **33**, *7*, 2116 (1991).
[7] К.Б. Толпыго. УФЖ **31**, *2*, 178 (1986).
[8] В.В. Румянцев, В.Т. Шуняков. Кристаллография **36**, *3*, 535 (1991).
[9] М. Борн, Э. Вольф. Основы оптики. Наука, М. (1970). 856 с.
[10] В.В. Румянцев. Кристаллография **36**, *6*, 1346 (1991).