УДК 533.9

О ВЛИЯНИИ РЕАЛЬНОЙ ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛА НА СПЕКТР ПОЛЯРИТОНОВ

В. А. Кособукин

Обычно спектр частот поверхностных поляритонов (ПП) изучают для модели кристалла с геометрической границей [1, 2]. Однако на поверхности реальных кристаллов имеется переходной приповерхностный слой (ПС), ширина которого для систем с дальнодействующими силами может достигать макроскопических размеров [3]; изучаются также искусственные системы со слоем поверхностного заряда и градиентом состава вблизи поверхности [4–6]. Из-за различия в таких системах свойств ПС и объема можно ожидать, что их реакция на внешнее воздействие (например, механическое) будет разной, и это может проявиться в дополнительном сдвиге частот ПП по сравнению со случаем идеальной поверхности. В первых работах по изучению спектра ПП в деформированных кристаллах [7, 8] наблюдались аномально большие сдвиги частот ПП, которые для кристаллов MgO, $SrTiO_3$, α-SiO_2 (и аморфного SiO_2) в несколько (до пяти) раз превышали смещение частоты соответствующего объемного оптического колебания. Это явление, по-видимому, не может быть объяснено при использовании диэлектрической функции напряженного кристалла с идеальной границей [9] и связывается со свойствами «естественного» ПС в кристаллах [8].

В данной работе для перечисленных систем оценивается зависимость сдвига частот ПП от разности диэлектрических функций объема и ПС, а также от эффективной толщины слоя. Оценки проводятся для двух случаев: I — слой с резкой границей, на которой диэлектрическая функция ПС переходит в объемную скачком, II — этот переход происходит плавно по экспоненциальному закону. Систему предполагаем оптически изотропной. Считаем, что кристалл со слоем занимают полубесконечное пространство, которое имеет координату $z > 0$ и граничит с оптически неактивной средой, имеющей диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_1 = \mathrm{const}\,(\omega)$. Уравнения дисперсии получаются в локальном приближении теории Максвелла. В случае I, когда диэлектрическая функция слоя ($0 < z < L$) и объема ($z > L$) равны соответственно $\varepsilon_2(\omega)$ и $\varepsilon_3(\omega)$, уравнение дисперсии ПП имеет вид

$$\left(\frac{\varepsilon_1}{\varkappa_1}+\frac{\varepsilon_2}{\varkappa_2}\right)\left(\frac{\varepsilon_2}{\varkappa_2}+\frac{\varepsilon_3}{\varkappa_3}\right)+\exp\left(-\frac{2\varkappa_2\omega L}{c}\right)\left(\frac{\varepsilon_1}{\varkappa_1}-\frac{\varepsilon_2}{\varkappa_2}\right)\left(\frac{\varepsilon_2}{\varkappa_2}-\frac{\varepsilon_3}{\varkappa_3}\right)=0. \tag{1}$$

Здесь $\varkappa_n = (n^2 - \varepsilon_n)$, $n = qc/\omega$ — циклическая частота, q — двумерный волновой вектор ПП, c — скорость света; далее полагаем $\varepsilon_3 = \varepsilon$, $\varepsilon_2 = \varepsilon + \delta\varepsilon$. Для случая II диэлектрическая функция принимается в виде: $\varepsilon(\omega, z) = \varepsilon(\omega) + \delta\varepsilon(\omega)\, e^{-z/L}$, $\varepsilon(\omega, \infty) = \varepsilon$, $\varepsilon(\omega, 0) = \varepsilon + \delta\varepsilon$, L — геометрический параметр ПС. В обоих случаях величина $\delta\varepsilon(\omega)$ получается как результат разложения функции $\varepsilon(\omega)$ по малой разности ее параметров $\delta p_i = p_i - \bar{p}_i$ на поверхности p_i в объеме $\bar{p}_i$ [смысл параметров p_i ясен из выражений (6а) и (6б)]; таким образом, ниже принимается модель малого искажения кристалла вблизи поверхности.

Для случая II, следуя работе [5], при условии $|\delta\varepsilon/\varepsilon| \ll 1$ с точностью до членов порядка $|\delta\varepsilon/\varepsilon|^2$ получаем уравнение дисперсии ПП

$$\frac{\varepsilon}{\varkappa}+\frac{\varepsilon_1}{\varkappa_1}+\frac{\delta\varepsilon}{\varepsilon}\left(\frac{\varepsilon}{\varkappa}-\frac{\varepsilon_1}{\varkappa_1}\,\frac{\alpha+2\beta}{\beta+2\beta^2}\right)=0, \tag{2}$$

где $\alpha = \varepsilon\omega L/c$, $\beta = \varkappa\omega L/c$. Нетрудно видеть, что при $\delta\varepsilon \to 0$ уравнения (1) и (2) переходят в уравнение дисперсии ПП на границе полубесконечных сред с диэлектрическими проницаемостями ε и ε_1

$$\frac{\varepsilon}{\varkappa}+\frac{\varepsilon_1}{\varkappa_1}=0. \tag{3}$$

Обозначим решение этого уравнения как $\bar{\omega}_s(q)$ и запишем уравнения (1) и (2) в виде

$$F(\omega,\ q,\ \varepsilon_1,\ \varepsilon+\delta\varepsilon,\ \varepsilon)=0. \tag{4}$$

Разлагая теперь функцию F по величинам $\delta\omega_s = \omega_s - \bar{\omega}_s$ и δp_i вблизи точки $(\bar{\omega}_s, \bar{p})$, $p = \{p_i\}$, находим выражение для сдвига дисперсионной ветви $\bar{\omega}_s(q)$

$$\delta\omega_s(q) = -[(\partial F/\partial\delta\varepsilon)/(\partial F/\partial\omega)]_{\bar{\omega}_s(q),\,\bar{p}}\,\delta\varepsilon(\bar{\omega}_s(q)). \tag{5}$$

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ

Для оценок зададимся выражениями функции $\varepsilon(\omega)$ (без диссипативного члена) для диэлектрического кристалла в области частот фононов

$$\varepsilon_v(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)\,\omega_0^2/(\omega_0^2 - \omega^2) \tag{6а}$$

и для электронного газа

$$\varepsilon_e(\omega) = \varepsilon_\infty(1 - \omega_p^2/\omega^2), \tag{6б}$$

где ω_0 — частота объемного оптического колебания, ε_0, ε_∞ — диэлектрические постоянные при $\omega = 0$ и $\omega = \infty$ соответственно, ω_p — плазменная частота электронного газа. Разлагая эти функции по малым приращениям параметров, получаем

$$\delta\varepsilon_v(\omega) = -\frac{\omega}{\omega_0}\,\varepsilon_v'(\omega)\left[\delta\omega_0 + \frac{\omega_0(\omega^2 - \omega_0^2)}{2\varepsilon_\infty(\omega_l^2 - \omega_0^2)}\left(\frac{\omega_0^2}{\omega^2}\,\delta\varepsilon_0 - \delta\varepsilon_\infty\right)\right], \tag{7а}$$

$$\delta\varepsilon_e(\omega) = -\frac{\omega}{\omega_p}\,\varepsilon_e'(\omega)\left[\delta\omega_p + \frac{\omega_p^2 - \omega^2}{2\varepsilon_\infty\omega_p}\,\delta\varepsilon_\infty\right]. \tag{7б}$$

В (7а) $\omega_l^2 = (\varepsilon_0/\varepsilon_\infty)\,\omega_0^2$, штрих обозначает производную по ω; разложение (7а) справедливо при $\omega - \omega_0 \gg \delta\omega_0$, (7б) — при $\omega_p - \omega \gg \delta\omega_p$. Изменение параметров δp_i в модели малого искажения кристалла можно выразить через один параметр, например постоянную решетки, которая, естественно, зависит от координаты z. Формулы для величин $\delta\omega_0$, $\delta\varepsilon_0$, $\delta\varepsilon_\infty$ приведены в работе [9], подобным же образом находятся $\delta\omega_p$ и $\delta\varepsilon_\infty$, соответствующие (6б). Таким образом, величины $\delta\omega_0$, $\delta\varepsilon_0$, $\delta\varepsilon_\infty$ в (7а) выражаются в конечном виде через ω_0, ε_0, ε_∞ и соответственно через постоянную Грюнайзена для осциллятора с частотой ω_0 и фотоупругие постоянные; аналогично и для величин $\delta\omega_p$ и $\delta\varepsilon_\infty$ в случае (7б).

Подставив теперь функцию F из формул (1) и (2) в (5) и учитывая выражение $n^2 = \varepsilon\varepsilon_1/(\varepsilon + \varepsilon_1)$, эквивалентное (3), находим для сдвига ветви частот фонон-поляритонов

$$\frac{\delta\omega_{sv}}{\delta\omega_0} = M\,\frac{\omega}{\omega_0}(1 + \varphi_v)\left[1 + \frac{(\varepsilon_1 + \varepsilon_\infty)(\omega_{sv}^2(\infty) - \omega^2)(\omega_l^2 - \omega^2)}{\varepsilon_\infty\omega^2(\omega_l^2 - \omega_0^2)}\right]^{-1}. \tag{8а}$$

Формулы для случаев I и II отличаются только масштабным множителем M, который имеет вид: $M_{\mathrm{I}} = 1 - \exp(-2\varkappa L\omega/c)$, $M_{\mathrm{II}} = 2\beta(1 + 2\beta)$. Здесь $\omega_{sv}^2(\infty) = \omega_0^2(\varepsilon_0 + \varepsilon_1)/(\varepsilon_\infty + \varepsilon_1)$. Для плазмон-поляритонов

$$\frac{\delta\omega_{se}}{\delta\omega_p} = M\,\frac{\omega}{\omega_p}(1 + \varphi_e)\left[1 + \frac{(\varepsilon_1 + \varepsilon_\infty)(\omega_p^2 - \omega^2)(\omega_{se}^2(\infty) - \omega^2)}{\varepsilon_\infty\omega^2\omega_p^2}\right]^{-1}, \tag{8б}$$

где $\omega_{se}^2 = \omega_p^2\varepsilon_1/(\varepsilon_1 + \varepsilon_\infty)$. Величины $(1 + \varphi)$ в формулах (8а) и (8б) равны выражениям, стоящим в квадратных скобках (7а) и (7б), деленным соответственно на $\delta\omega_0$ и $\delta\omega_p$. Используя выражения для величин $\delta\omega_0$, $\delta\varepsilon_0$, $\delta\varepsilon_\infty$ [9], нетрудно видеть, что для таких, например, ионных кристаллов как LiF, KCl, KBr выполнено условие $0 < 1 - \varphi \sim 1$.

Зависящий от частоты член в знаменателях формул (8а) и (8б) положителен и равен по порядку величины единице в области дисперсии ПП — для (8а) — $\omega_0 < \omega < \omega_{sv}(\infty)$, а при $\omega \to \omega_{sv}(\infty)$ обращается в нуль (заменой $\omega_0 \to 0$, $\omega_l \to \omega_p$, $\omega_{sv} \to \omega_{se}$ в последующих формулах получаются выражения для поверхностных плазмонов). Это означает, что порядок величин $(\delta\omega_{sv}/\delta\omega_0)$ и $(\delta\omega_{se}/\delta\omega_0)$ полностью определяется масштабным множителем M, который при $[\omega\varkappa(\omega)\,L/c] \ll 1$ равен $M_{\mathrm{I}} = M_{\mathrm{II}} = 2\omega\varkappa(\omega)\,L/c$ и достигает единицы при $[\omega\varkappa(\omega)\,L/c] \gtrsim 1$ в случае I и при $[\omega\varkappa(\omega)\,L/c] \gg 1$ в случае II. Этим условиям эквивалентны следующие: $L \gtrsim \bar{L}(\omega^2)$ и $L \gg \bar{L}(\omega^2)$, где функция $\bar{L}$ определяется с учетом выражений $\varkappa(\omega)$ и (3) как

$$\bar{L}(\omega^2) = \frac{1}{q}\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_\infty}\,\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{\omega_l^2 - \omega^2}}, \tag{9}$$

при этом волновой вектор связан с частотой ПП ω формулой

$$q = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_1\varepsilon_\infty}{\varepsilon_1 + \varepsilon_\infty}\,\frac{\omega_l^2 - \omega^2}{\omega_{sv}^2(\infty) - \omega^2}}. \tag{10}$$

В области дисперсии ПП $\omega_0^2 < \omega^2 < \omega_{sv}^2(\infty)$ в пределах применимости формул (8) функция $\bar{L}(\omega^2)$ имеет максимум приблизительно в середине области и убывает к ее краям. При $\omega = \omega_0 + \Delta$, $\Delta \gg \delta\omega_0$ из (9) и (10) находим

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ

$$\bar{L}\,[(\omega_0+\Delta)^2] \simeq \frac{1}{q}\left(\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0-\varepsilon_\infty}\,\frac{2\Delta}{\omega_0}\right)^{1/2} \sim \frac{1}{q_0}\left(\frac{\Delta}{\omega_0}\right)^{1/2}, \tag{11а}$$

а при $\omega=\omega_{sv}(\infty)-\Delta',\ \Delta'>0$.

$$\bar{L}\,[(\omega_{sv}(\infty)-\Delta')^2] = \frac{1}{q} \sim \frac{1}{q_0}\left(\frac{\Delta'}{\omega_{sv}(\infty)}\right)^{1/2}, \tag{11б}$$

где $q_0=\omega_0/\bar{c}$. Из этих выражений видно, что спектр ПП более чувствителен к тонким слоям при $q \simeq q_0$ (11а) и при $q \gg q_0$ (11б), чем в промежуточной области значений q.

Предполагая применимость данной модели, оценим толщину ПС, соответствующую условиям $1 < (q/q_0) \leqslant 3$ эксперимента [8] для диэлектрических параметров кристалла MgO [10]: $\omega_0 = 7.5 \cdot 10^{13}\ c^{-1}$, $\varepsilon_0=9.8$, $\varepsilon_\infty=2.95$ и $\varepsilon_1=1$. Можно предположить, что сдвиг дисперсионных частот в результате деформации рассмотренной системы $\delta\omega'_{sv}$ составляет несколько обратных сантиметров, равняясь по порядку величины наблюдавшемуся в [8] сдвигу частот ПП. Связь величины $\delta\omega'_{sv}$ с $\delta\omega'_0$ — разностью значений $\delta\omega_0$ для деформированного и недеформированного кристалла — дается формулой (8а); теперь при $q/q_0=3$ и при условии $(\delta\omega'_{sv}/\delta\omega'_0)=1$ из (11б) находим $\bar{L} \simeq 10^4$ Å, а в предположении $(\delta\omega'_{sv}/\delta\omega'_0)=10^{-1}$ $\bar{L} \simeq 10^3$ Å. В другой области частот (где $q \simeq q_0$) при $(\delta\omega'_{sv}/\delta\omega'_0)=1$ из (11а) получаем $\bar{L} \simeq 10^3$ Å. Это на один—два порядка больше, чем, например, толщина сильно деформированных слоев на поверхности скола ионных кристаллов, наблюдавшихся методом электронографии в [3]. В связи с этим требуется дальнейшее тщательное изучение физической природы приповерхностных областей, проявляющихся в спектре поверхностных поляритонов.

Литература

[1] В. В. Брыксин, Д. Н. Мирлин, Ю. А. Фирсов. Усп. физ. наук, *113*, 29, 1974.
[2] В. М. Агранович. Усп. физ. наук, *115*, 199, 1975.
[3] В. А. Клюев, Ю. А. Хрусталев, А. Е. Городецкий, Н. А. Кротова, Ю. П. Топоров. ФТТ, *18*, 2739, 1976.
[4] S. L. Cunningham, A. A. Maradudin, R. F. Wallis. Phys. Rev., *B10*, 3342, 1974.
[5] E. Conwell. Phys. Rev., *B11*, 1508, 1974; *B14*, 5515, 1976.
[6] S. A. Rice, D. Guidotti, H. L. Lemberg. Adv. in Chem. Phys., *27*, 543, 1974.
[7] И. И. Новак, В. Е. Корсуков, А. Г. Банщиков. ДАН СССР, *224*, 1297, 1975.
[8] А. Г. Банщиков, В. Е. Корсуков, И. Н. Новак. В сб.: Теоретическая спектроскопия», матер. XVIII Всесоюзн. съезда спектр., 235. М., 1977.
[9] В. А. Кособукин. ФТТ, *18*, 535, 1976.
[10] E. Burstein. In: Phonons and Phonon Interactions, ed. T. Bak, Benjamin, 1964.

Поступило в Редакцию 23 ноября 1978 г.

УДК 533.9

ОЦЕНКА СЕЧЕНИЙ ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ ЭЛЕКТРОННЫМ УДАРОМ В ПЛАЗМЕ ГАЗОВОГО РАЗРЯДА

С. А. Казанцев и *А. Г. Рысь*

Настоящая работа является продолжением исследований [1-3], в которых эффект выстраивания атомов в плазме газового разряда [4] был применен для определения времен жизни и сечений деполяризующих соударений с нормальными атомами газа большой группы возбужденных состояний атомов инертных газов. В данном случае сделана попытка оценки сечений деполяризации электронным ударом. В [3, 5-7] наблюдалось выстраивание ряда высоковозбужденных атомных состояний инертных газов

Посвящается 80-летию С. Э. Фриша

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. СКОРИНЫ