

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Поляритоны полупроводниковой микрополости

Е.А. Виноградов

Экспериментально методами инфракрасной спектроскопии, комбинационного рассеяния света и фемтосекундной спектроскопии и теоретически в рамках линейной кристаллооптики исследованы оптические свойства пленок широкозонных полупроводников на металлических подложках. Показано, что в планарных структурах (микрорезонаторах) оптические спектры содержат информацию об электромагнитных возбуждениях как объема, так и поверхности структуры. Оптические спектры определяются взаимодействием всех дипольно-активных возбуждений материалов структуры с электромагнитными модами микрорезонатора, которые в свою очередь определяются диэлектрической проницаемостью каждого вещества структуры, толщиной микрополости (микрорезонатора) и условиями экспериментального исследования.

PACS numbers: 71.36. + c, 78.20.Bh, 78.40. – q, 78.66. – w

Содержание

1. Введение (1371).
 2. Экспериментальные методы исследования фононных поляритонов (1375).
 3. Излучение света плазмонами структуры "призма НПВО над металлом" (1379).
 4. Излучение света плазмонами структуры "пленка диэлектрика на металле" (1381).
 5. Излучение света поляритонами структуры "пленка полупроводника на металле" (1384).
5.1. Тонкие пленки. 5.2. Толстые пленки. 5.3. Резонанс дипольных колебаний примесных атомов с поляритонами кристаллического слоя.
 6. Радиационное время жизни поляритонов (1399).
 7. Люминесценция и резонансное КРС на интерференционных поляритонах (1401).
 8. Фемтосекундная динамика поляритонов полупроводниковой микрополости (1402).
8.1. Эксперимент. 8.2. Обсуждение результатов.
 9. Заключение (1408).
- Список литературы (1409).

1. Введение

Оптические свойства кристаллов представляют интерес уже несколько столетий. В последние годы к традиционным методам их исследования (спектроскопия поглощения, отражения, люминесценция, комбинационное рас-

сеяние света) добавились относительно новые: спектроскопия отражения-поглощения, нарушенного полного внутреннего отражения, термостимулированного излучения. Все они используются для изучения взаимосвязи структуры кристалла с его физическими свойствами, т.е. для определения уровней энергии электронных и колебательных возбуждений атомов (ионов), характера и констант сил связей между атомами, сил осцилляторов, параметров ангармонизма колебаний и др. При этом одной из основных задач оптической спектроскопии является исследование, какие именно колебания атомов и электронов отвечают за тот или иной пик в спектре (определение нормальных координат и их частот). Для бесконечного кристалла эта задача теоретически решается относительно легко, если известны структура кристалла (координаты атомов, пространственная группа симметрии) и характер сил связи между атомами.

В эксперименте кристаллы имеют конечные размеры и границы кристаллов нарушают трансляционную симметрию. Атомы на поверхности кристалла обладают отличающимися от атомов в объеме кристалла силами связи с соседними атомами, а значит, и отличающимися оптическими свойствами объема и поверхности кристалла. К началу 70-х годов сложились основные представления об объемных свойствах кристаллов (см., например, [1, 2]). Стало ясно, что оптические свойства кристаллов определяются взаимодействием внешнего электромагнитного поля с дипольно-активными (обладающими дипольными моментами) состояниями объема кристалла и с дефектами кристаллической структуры¹. Это взаимодействие приводит к образованию связанного состояния колебательного движения заряженных частиц (диполей) с электромагнитным полем [1, 2]. Дж. Хопфилд назвал такие состояния поляритонами [3].

¹ В этом случае поверхность кристалла рассматривается как планарный дефект.

Е.А. Виноградов. Институт спектроскопии РАН,
142190 Троицк, Московская обл., Российская Федерация
Тел. (095) 334-05-79. Факс (095) 334-08-86
E-mail: evinogr@isan.troitsk.ru

Статья поступила 29 января 2002 г.,
после доработки 4 июня 2002 г.

Хорошо известно, что любые периодические движения заряженных частиц (в том числе и тепловые движения электронов и ионов) сопровождаются рождением электромагнитного поля [4]. Это означает, что поляритоны существуют в кристалле и без внешнего электромагнитного поля. Другими словами, неразрывно связанные кулоновские движения зарядов и рожденные ими поля и есть поляритоны — электромагнитные волны в кристалле [5].

Зависимость частоты ω от волнового вектора $\mathbf{k}$ электромагнитной волны в кристалле определяется законом дисперсии. Для бесконечного изотропного кристалла закон дисперсии длинноволновых ($\mathbf{k} \approx 0$) дипольно-активных колебательных состояний кристалла имеет вид [1]

$$\frac{k^2 c^2}{\omega^2} = \varepsilon(\omega). \quad (1)$$

Здесь c — скорость света в вакууме, $\mathbf{k}$ — волновой вектор электромагнитной волны с частотой ω в кристалле, имеющем диэлектрическую проницаемость $\varepsilon(\omega)$.

Для двухатомного изотропного кристалла с ионно-ковалентным характером сил связи между атомами (типа кубического ZnS) функция $\varepsilon(\omega)$ в гармоническом приближении записывается как [1]

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \frac{\omega_{\text{TO}}^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2}, \quad (2)$$

где ω_{TO} — частота поперечных оптических фононов (оптических колебаний гармонических диполей), ε_∞ и ε_0 — диэлектрические проницаемости на частотах, много большей и много меньшей частоты ω_{TO} . Дисперсия фононных поляритонов $\omega = \omega(k)$ бесконечного кристалла, соответствующая уравнениям (1) и (2), представлена на рис. 1а. Горизонтальная прямая ω_{LO} на рисунке отвечает продольному оптическому фону вблизи центра зоны Бриллюэна, частота которого определяется решением уравнения $\varepsilon(\omega) = 0$.

Дисперсия поляритонов в кристаллах изучалась методами комбинационного рассеяния света. Результаты этих исследований [6, 7] оказались в полном согласии с теоретическими предсказаниями [1–3]. Значительно хуже обстоит дело с объяснением ИК-спектров поглощения и отражения кристаллов, особенно когда они измеряются с высокой фотометрической точностью и высоким спектральным разрешением, что стало доступным в последние десятилетия.

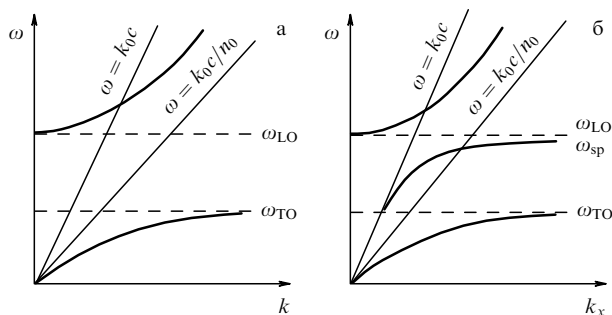


Рис. 1. Дисперсия фононных поляритонов (толстые кривые) бесконечного [1] (а) и полубесконечного [2] (б) кристаллов ($n_0 = \sqrt{\varepsilon_0}$).

В середине 70-х годов началось активное изучение оптических свойств поверхности твердых тел (достижения первого этапа этих исследований собраны в коллективной монографии [5]). Было показано, что колебания поверхностных атомов затухают на глубине в несколько сотен нанометров и сопровождаются возникновением переменного дипольного момента и макроскопическим электрическим полем. Эти колебания довольно хорошо описываются в рамках макроскопической электродинамики — уравнениями Максвелла с известными граничными условиями для тангенциальной и нормальной составляющих электрического и магнитного полей [8, 9].

Оказалось также, что объемные и поверхностные свойства кристалла описываются одной и той же частотно-зависимой диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega)$. Кроме того, электронные и колебательные состояния атомов в приповерхностной области кристаллов сопровождаются поверхностными электромагнитными волнами, которые экспоненциально затухают в обе стороны от границы раздела сред и обычным волнообразным образом распространяются вдоль границы. Эти так называемые поверхностные поляритоны отличаются от хорошо известных поперечных электромагнитных волн, распространяющихся в объеме кристалла и в вакууме [5, 8–11].

Решению уравнений Максвелла для полубесконечного кристалла удовлетворяют электромагнитные поля в виде плоских волн при обычной сшивке волн на границе раздела "кристалл–вакуум". В дополнение к объемным поляритонам появляются поверхностные поляритоны, которые подчиняются закону дисперсии [5–17]

$$\frac{k_x^2 c^2}{\omega^2} = \frac{\varepsilon_1(\omega) \varepsilon_2(\omega)}{\varepsilon_1(\omega) + \varepsilon_2(\omega)}. \quad (3)$$

Здесь $\varepsilon_1(\omega)$ и $\varepsilon_2(\omega)$ — диэлектрические проницаемости первой и второй сред, $\mathbf{k}_x$ — волновой вектор поверхностного поляритона, распространяющегося вдоль границы раздела сред.

Поверхностные поляритоны существуют в области частот, где диэлектрическая проницаемость кристалла отрицательна, точнее, $\varepsilon_1(\omega) < -|\varepsilon_2(\omega)|$ [9–11]. Строго говоря, электромагнитная волна поверхностного поляритона не является поперечной, так как при распространении поверхностной волны вдоль границы раздела сред вектор $\mathbf{E}$ ее электрического поля "вращается" в плоскости, перпендикулярной границе раздела, и имеет компоненту, параллельную волновому вектору $\mathbf{k}_x$ поверхностной волны. Магнитное же поле поверхностной волны остается все время перпендикулярным векторам $\mathbf{E}$ и $\mathbf{k}_x$ [5–11].

Из уравнений (1)–(3) следует, что дисперсионные уравнения для объемных и поверхностных возбуждений можно записать через диэлектрические проницаемости кристалла и контактирующей с ним среды [8–17]. Специфика тех или иных возбуждений (фононы, экситоны, плазмоны и др.) проявляется лишь в конкретном виде диэлектрической проницаемости, так что задача нахождения дисперсионных кривых для конкретных поляритонов (фононных, экситонных, плазменных и др.) сводится к подстановке в уравнения (1)–(3) нужной функции $\varepsilon(\omega)$ и разрешении их относительно ω . Задача экспериментатора — отделить в спектре поверхностные колебательные состояния от объемных (что можно

сделать по форме дисперсионных кривых, полученных из экспериментальных данных) и восстановить из них функцию $\varepsilon(\omega)$.

Как видно из рис. 1б, дисперсионная кривая поверхностного фононного поляритона, локализованного вблизи границы раздела сред, расположена в щели между поперечными и продольными оптическими фононами. Именно в этой области функция $\varepsilon(\omega)$ ионного кристалла отрицательна [1, 2]. Диэлектрическая проницаемость металлов $\varepsilon_m(\omega)$ отрицательна в очень широкой области спектра (от нуля до частоты плазмона ω_p , которая у хорошо проводящих металлов лежит в вакуумном ультрафиолете). Световая прямая, представляющая дисперсию света в вакууме $\omega = k_0 c$ на рис. 1, разделяет $(\omega - k_x)$ -плоскость на радиационную и нерадиационную области [12–17]. В радиационной области (слева от световой прямой) расположены элементарные возбуждения, способные поглощать и излучать электромагнитные волны, т.е. нестационарные (виртуальные [12–17]) возбуждения.

В нерадиационной области (справа от световой прямой) расположены возбуждения кристалла, являющиеся в гармоническом приближении стационарными, поскольку их волновой вектор k_x больше волнового вектора света в вакууме $k_0 = \omega/c$ [5–17]. Такие возбуждения не поглощают и не излучают электромагнитных волн (в обычных условиях), так как это нарушало бы закон сохранения импульса. Именно поэтому ионные кристаллы в области частот $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$ и металлы в области частот $\omega < \omega_p$ не поглощают и не излучают электромагнитных волн, а хорошо их отражают, являясь хорошими зеркалами, если, конечно, их поверхность плоская и гладкая и не покрыта окислами или какими-либо адсорбированными молекулами, т.е. не имеет шероховатостей и грязи.

В начале 80-х годов стало также ясно, что границы кристалла конечных размеров образуют полости (резонаторы) для электромагнитных полей и что в формировании оптических свойств кристаллов принципиальную роль могут играть моды полости (моды резонатора). Особенно сильно моды полости проявляются в кристаллической микрополости с оптической толщиной $nd \approx \lambda/2$, где $n(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}$ — показатель преломления кристаллического слоя толщиной d , а λ — длина волны электромагнитного поля в вакууме на частоте рассматриваемых колебаний [18–23]. Взаимодействие электромагнитных мод полости с дипольно-активными состояниями вещества полости является предметом активного изучения в течение многих лет в физике лазеров и квантовой оптике [20]. Простейшими и наиболее интересными объектами таких исследований являются планарные тонкопленочные структуры типа резонаторов Фабри–Перо.

Особый интерес вызывают микрополости со структурой "пленка полупроводника (или диэлектрика) на металле". С одной стороны, имеется чисто практический интерес в изучении подобных структур, связанный с необходимостью эффективного управления лазерным излучением, созданием быстродействующих фотоприемников на барьере Шоттки, т.е. принципиально новой элементной базы оптоэлектроники [19–21]. С другой стороны, указанные системы дают весьма содержательную модель нелинейной оптики: планарные микрополости представляют собой пример простейшей физической

модели, допускающей возможность последовательного учета границ при использовании резонансной среды конечной толщины.

Кроме того, использование фемтосекундных лазерных импульсов позволяет манипулировать граничными условиями в микрополости и модифицировать временные, спектральные и пространственные характеристики наноструктур [22]. Это открывает новые перспективы в развитии микрорезонаторных устройств, в технологии оптической обработки информации и изображения [19–21]. Наконец, системы такого типа весьма перспективны для изучения явлений квантовой электродинамики в макрорезонаторе (см. [23] и цитируемую там литературу).

Оптическим свойствам пленок полярных диэлектриков и полупроводников посвящено огромное число публикаций (см., например, [5–40]), поскольку оптические методы исследования дают богатую информацию об электронных (экситонных, плазмонных) и колебательных (фононных) возбуждениях в объеме и на поверхности кристаллического слоя. За последние тридцать лет появился ряд новых результатов, обогативших наши представления о взаимодействии электромагнитного излучения с конденсированным состоянием вещества. Среди них можно выделить следующие:

- создание методов исследования поверхностных электромагнитных волн оптического и ИК-диапазона, способных распространяться вдоль поверхности на макроскопические расстояния (вплоть до нескольких сантиметров), и использование этих волн для исследования свойств поверхности [5, 29–31];
- наблюдение спектров поглощения [5, 27, 28, 32–35], термостимулированного излучения [32–34, 38], люминесценции [33–35] и комбинационного рассеяния света [35–37] на частотах интерференционных мод пленок;
- обнаружение сильного резонансного взаимодействия между локальными колебаниями примесных атомов и интерференционными модами пленки [38] и взаимодействия дипольно-активных возбуждений граничащих сред (пленки и подложки) [5, 33, 39–47];
- обнаружение резкого снижения порога лазерной генерации при уменьшении длины резонатора до половины длины волны генерации [48–50].

Крайне важными для понимания оптических свойств металлов, диэлектрических и полупроводниковых кристаллов и пленок являются экспериментальные результаты по прямому измерению дисперсии плазмонных и фононных поляритонов методами ИК-спектроскопии [29–34] и комбинационного рассеяния света [35–37, 46, 47], а также представления о модах электромагнитного поля в микрополости [20, 48–53] и модах резонатора в физике лазеров [53–55]. При обсуждении экспериментальных результатов по исследованию поляритонов необходимо учитывать, что колебания атомов (ионов) кристаллической решетки сопровождаются рождением электромагнитного поля внутри кристалла и что часть энергии этого поля может покинуть кристалл через границу раздела сред [33, 56–60].

Поляритоны на рис. 1а и поверхностные поляритоны на рис. 1б — это стационарные состояния электромагнитного поля кристалла. Объемные поляритоны на рис. 1б (такие же, как и на рис. 1а), в принципе, являются нестационарными состояниями из-за возможности их радиационного распада, но уравнение (1) при действи-

тельном значении ω этого распада не учитывает. Тепловые движения электронов и ионов в объеме и на поверхности кристалла также генерируют электромагнитное поле. Поле с волновым вектором $k_x < k_0$ радиационное, т.е. излучается в вакуум, а поле с волновым вектором $k_x > k_0$ нерадиационное. Для объемных колебаний внутри кристалла нерадиационное поле испытывает полное внутреннее отражение от поверхности, а для поверхностных колебаний оно остается привязанным к поверхности раздела сред [8–17, 29, 33].

Нерадиационные поверхностные поляритоны с двумерным волновым вектором $q > k_0$, рожденные тепловым движением ионов и электронов в приповерхностной области кристалла, могут стать радиационными, если над кристаллом установить призму нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО) [5, 29]. В этом случае изначально нерадиационные поверхностные поляритоны плоской границы кристалла оказываются способными поглощать и излучать свет. Призма НПВО, размещенная вблизи поверхности кристалла, а также периодические штрихи на поверхности кристалла преобразуют нерадиационные колебательные состояния границы раздела "кристалл–вакуум" с $q > k_0$ в состояния, поглощающие и излучающие свет [8, 9].

Наличие призмы НПВО над поверхностью кристалла приводит к возмущению поверхностного поляритона и, как результат, к изменению его характеристик, в первую очередь дисперсии и времени жизни [5, 31, 67]. Радиационный распад поверхностных поляритонов, т.е. их преобразование в свет, можно зарегистрировать экспериментально как излучение образца с призмой над ним. Таким образом, в дополнение к обычно рассматриваемому ангармоническому распаду возбуждений кристалла существует еще один канал распада — радиационный, причем в ряде случаев этот канал может быть доминирующим.

Именно благодаря радиационной нестабильности поляритонов возможно их взаимодействие с внешним электромагнитным полем. Поглощение, отражение и излучение света возбуждениями кристаллов и пленок хорошо описываются решениями макроскопических уравнений Максвелла с обычными граничными условиями и материальными уравнениями для контактирующих сред, т.е. с помощью макроскопической диэлектрической проницаемости сред. Экспериментальные результаты, как правило, хорошо согласуются с расчетами спектров поглощения, отражения и излучения света [5, 27–34].

Из рисунка 1б видно, что полубесконечные кристаллы могут поглощать и излучать свет в вакуум только на частотах вблизи частоты продольного оптического фонона. При продольных колебаниях ионов электрическое поле и поляризация среды (кристалла) параллельны волновому вектору $\mathbf{k}$, а магнитное поле тождественно равно нулю [1, 60]. Это означает, что продольные фононы представляют собой чисто электрические колебания ионов, т.е. не являются электромагнитными [1]. Поэтому продольные оптические фононы кристалла не могут поглощать и излучать свет в одноактных процессах типа "фотон рождает фонон" ни при каких геометриях эксперимента [33, 34, 60]. Д. Берриман обнаружил [24], что при наклонном падении p -поляризованного света на пленку появляется пик поглощения на частоте продольного оптического фонона материала пленки.

Это противоречит правилам отбора, но используется, тем не менее, в ряде работ [24–29, 61–66] для получения характеристик оптических фононов кристаллов.

Оптические свойства кристаллической пленки впервые изучались теоретически Р. Фухсом и К. Кливером [12–16]. Оказалось, что дисперсии объемных и поверхностных поляритонов трехслойной структуры "вакуум–пленка диэлектрика–подложка", бесконечной в направлениях x и y , имеют вид [5, 17]

$$\coth(\beta_2 d) = i \frac{\beta_2^2 \varepsilon_1 \varepsilon_2 + \beta_1 \beta_3 \varepsilon_2^2}{\beta_2 \varepsilon_2 (\beta_1 \varepsilon_3 + \beta_3 \varepsilon_1)} \quad (4)$$

для p -поляризации (ТМ-поляритонов) и

$$\coth(\beta_2 d) = i \frac{\beta_2^2 + \beta_1 \beta_3}{\beta_2 (\beta_1 + \beta_3)} \quad (5)$$

для s -поляризации (ТЕ-поляритонов). Здесь

$$\beta_j = \left(\varepsilon_j \frac{\omega^2}{c^2} - \varepsilon_1 q^2 \right)^{1/2}, \quad j = 1, 2, 3, \quad i = \sqrt{-1},$$

$\mathbf{q}$ — двумерный волновой вектор в плоскости пленки, ε_2 , ε_3 и ε_1 — диэлектрические проницаемости материала пленки толщиной d , подложки и вакуума соответственно.

Уравнения (4) и (5) описывают по три семейства ветвей поляритонов — зависимостей $\omega(q)$: одно при действительном и два других при мнимом значении β_1 . Первое семейство расположено в радиационной области ($\omega - q$ -диаграммы и соответствует интерференционным модам плоскопараллельного слоя. Второе и третье семейства расположены в нерадиационной области ($\omega - q$ -диаграммы и соответствуют волноводным и поверхностным (интерфейсным) модам структуры.

Спектры поглощения света $A(\omega)$ и теплового излучения $E(\omega)$ всеми этими модами (включая измерения в режиме НПВО изначально нерадиационных мод) хорошо описываются формулой [5, 31–34]

$$A = E = 1 - \left| \frac{(\delta_1 - \delta_2)P + (\delta_1 + \delta_2)Q}{(\delta_1 + \delta_2)P + (\delta_1 - \delta_2)Q} \right|^2, \quad (6)$$

$$P = (\delta_2 + \delta_3)(\delta_3 + \delta_4) + (\delta_2 - \delta_3)(\delta_3 - \delta_4) \exp\left(-2\kappa_3 \frac{l\omega}{c}\right),$$

$$Q = \left[(\delta_2 - \delta_3)(\delta_3 + \delta_4) + (\delta_2 + \delta_3)(\delta_3 - \delta_4) \exp\left(-2\kappa_3 \frac{l\omega}{c}\right) \right] \times \exp\left(-2\kappa_2 \frac{d\omega}{c}\right),$$

$$\kappa_j = [\varepsilon_1(\omega) \sin^2 \varphi - \varepsilon_j(\omega)]^{1/2}, \quad j = 1, 2, 3, 4.$$

Здесь $\delta_j = \varepsilon_j / \kappa_j$ для p -поляризованного и $\delta_j = \kappa_j$ для s -поляризованного света, $\varepsilon_1(\omega)$, $\varepsilon_2(\omega)$, $\varepsilon_3(\omega)$ и $\varepsilon_4(\omega)$ — диэлектрические проницаемости материалов призмы НПВО, зазора, пленки и подложки соответственно, l и d — толщина зазора и пленки диэлектрика (полупровод-

ника), φ — угол излучения внутри среды с диэлектрической проницаемостью ε_1 . В квазигармоническом приближении диэлектрическая проницаемость материала пленки обычно записывается в виде

$$\varepsilon_3(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \frac{\omega_{\text{TO}}^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \quad (7)$$

(γ — коэффициент затухания фонона с частотой ω_{TO}). Диэлектрическая проницаемость металлической подложки определяется формулой Друде:

$$\varepsilon_4(\omega) = \varepsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma_p\omega}, \quad (8)$$

где ω_p — частота плазменных колебаний в металлической подложке, γ_p — частота столкновений электронов в плазме.

В настоящем обзоре сделана попытка дать непротиворечивое объяснение всей совокупности известных автору экспериментальных данных по колебательным спектрам объемных и поверхностных возбуждений пленок полярных полупроводников (ZnS, ZnSe, CdS, ZnTe и др.) различной толщины (от супертонких до массивных монокристаллов), полученных методами спектроскопии отражения-поглощения, термостимулированного излучения, нарушенного полного внутреннего отражения и комбинационного рассеяния света. Обсуждаются лишь те экспериментальные данные, которые получены на монокристаллах и пленках, контактирующих с массивной металлической подложкой.

Прежде чем приступить к описанию поляритонов структуры "вакуум — пленка — металлическая подложка", мы рассмотрим сначала кратко метод термостимулированного излучения поляритонов, затем поляритоны наиболее простой структуры — "призма НПВО над поверхностью массивного металла". В конце обзора мы обсудим результаты исследования динамики возбуждения и релаксации радиационных (интерференционных) поляритонов пленки полупроводника на металле методом фемтосекундной лазерной спектроскопии "накачка — широкополосное зондирование".

2. Экспериментальные методы исследования фононных поляритонов

Частоты объемных и поверхностных фононов кристаллов расположены в ИК-области спектра, поэтому основными методами их исследования являются ИК-спектроскопия и спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС). Оптическая плотность на частотах оптических фононов в кристаллах с ионно-ковалентными силами связи между атомами очень большая (3–5), что вынуждает измерять спектры отражения методами ИК-спектроскопии в возможно более широкой области спектра или измерять спектры пропускания тонких пленок [68–70].

Исследование оптических свойств твердых тел базируется на измерении спектральных интенсивностей вышедшего из образца света. Это может быть как свет, прошедший, отраженный или рассеянный от внешнего источника, так и свет, рожденный каким-либо возбуждением (в частности, тепловым движением электронов и ионов) внутри объекта исследований. В оптическом

эксперименте, таким образом, исследуется результат радиационного распада поляритона. Именно с поляритоном мы имеем дело в любых оптических экспериментах, хотя в ряде случаев электромагнитная составляющая поляритона может быть достаточно малой.

Как уже отмечалось, в кристалле конечных размеров поляритоны разделяются на объемные и поверхностные. Нужны специальные ухищрения для того, чтобы экспериментально разделить их в спектре вышедшего из образца света, особенно при исследовании микрокристаллов². Р. Энглманом и Р. Рапиным [17] впервые показано, что оптические свойства микрокристаллов сильно зависят от формы и размеров кристаллитов и матрицы, в которой они содержатся.

Значительно проще обстоит дело с измерениями и интерпретацией спектров пленок, особенно пленок на металлической подложке — структур типа "сэндвич". В этом случае коэффициент пропускания света $T(\omega)$ сэндвича равен нулю, и из закона сохранения энергии для света

$$T(\omega) + R(\omega) + A(\omega) = 1, \quad (9)$$

где $R(\omega)$ и $A(\omega)$ — коэффициенты отражения и поглощения (рассеянием пренебрегаем), следует, что

$$R(\omega) = 1 - A(\omega). \quad (10)$$

Это означает, что спектр отражения образца типа "сэндвич" однозначно определяется его спектром поглощения. Спектры сэндвича, в которых $T(\omega) = 0$, называют спектрами отражения-поглощения (ОП). Для нахождения спектра $A(\omega)$ в таком случае нужно измерение только одного спектра — $R(\omega)$, а не двух ($R(\omega)$ и $T(\omega)$), если $T(\omega) \neq 0$.

То же самое относится к массивному монокристаллу в областях спектра, где он не прозрачен. При нормальном падении света на массивный кристалл с комплексным показателем преломления $N = n + ik$ коэффициент отражения света R обычно записывается в виде [1]

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}. \quad (11)$$

Соотношение (11) справедливо для полубесконечного кристалла, имеющего плоскую границу с вакуумом. Экспериментально этому соотношению отвечает ситуация, при которой отражение света от задней грани кристалла отсутствует. Реализовать такую ситуацию с

² До недавнего времени одним из основных методов определения оптических констант фононных спектров кристаллов было измерение спектров пропускания специально приготовленных образцов, состоящих из запрессованных в прозрачную матрицу (полиэтилен или KBr) кристаллов, растолченных в ступке до состояния пудры. Это был своеобразный метод разбавления оптической плотности. В микрокристаллах отношение поверхности к объему S/V достаточно большое, и вклад поверхностных возбуждений может преобладать над вкладом объемных возбуждений. В итоге в эксперименте наблюдаются сильно неоднородные уширенные полосы поглощения из-за разброса в форме и размерах кристаллитов пудры, получить из которых сколько-нибудь аналитическую информацию оказалось практически невозможно. Тысячи статей, опубликованных ранее с использованием этого метода, в 90-е годы были выкинуты фактически на "свалку".

высокой точностью очень трудно, особенно когда задняя грань кристалла представляет собой металлическое зеркало.

С помощью интегральных соотношений Крамерса – Кронига из спектра отражения $R(\omega)$ восстанавливается комплексная диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega)$, из которой находятся частоты оптических фононов $\omega_{\text{ТО}}$ центра зоны Бриллюэна ($\mathbf{k} \approx 0$), их время жизни, силы осцилляторов и т.д. Поляритон характеризуется зависимостью $\omega(\mathbf{k})$ даже без учета эффектов пространственной дисперсии. Для восстановления зависимости $\omega(\mathbf{k})$ необходимо измерение спектров отражения-поглощения при различных углах падения света на кристалл.

Отражательная способность $R(\omega, \varphi)$ кристаллической пластины произвольной толщины d в трехслойной структуре "вакуум – пленка диэлектрика – металлическая подложка" имеет вид [26, 31]

$$R = \left| \frac{(\delta_1 - \delta_2)(\delta_2 + \delta_3) + (\delta_1 + \delta_2)(\delta_2 - \delta_3) \exp(-2\kappa_2 d \omega / c)}{(\delta_1 + \delta_2)(\delta_2 + \delta_3) + (\delta_1 - \delta_2)(\delta_2 - \delta_3) \exp(-2\kappa_2 d \omega / c)} \right|^2. \quad (12)$$

Здесь $\delta_j = \varepsilon_j / \kappa_j$ для p -поляризованного и $\delta_j = \kappa_j$ для s -поляризованного излучения,

$$\kappa_j = [\varepsilon_1 \sin^2 \varphi - \varepsilon_j(\omega)]^{1/2}, \quad j = 1, 2, 3,$$

где ε_1 — диэлектрическая проницаемость вакуума, $\varepsilon_2 = \varepsilon_2(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость (7) пленки толщиной d , $\varepsilon_3(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость (8) металлической подложки.

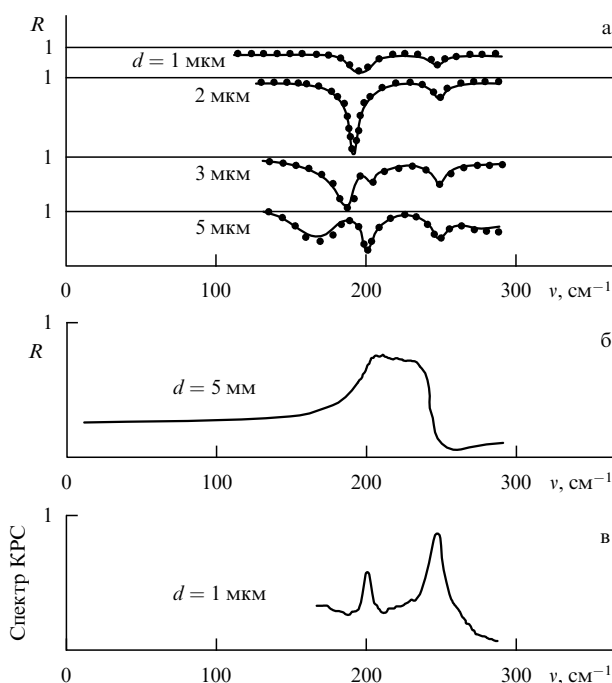


Рис. 2. (а) Спектры p -поляризованного отражения-поглощения пленок ZnSe различной толщины d на Al-зеркале: точки — расчет без подгоночных параметров, сплошные кривые — эксперимент [33, 34, 59]. (б) Спектр p -поляризованного отражения монокристалла ZnSe ($d = 5$ мм) на Al-зеркале [34, 73]. (в) Спектр КРС пленки ZnSe ($d = 1$ мкм) на Al-зеркале [34, 110]. $\nu_{\text{ТО}} = 200 \text{ см}^{-1}$, $\nu_{\text{ЛО}} = 250 \text{ см}^{-1}$.

На рисунке 2 показаны экспериментальные спектры отражения-поглощения массивного монокристалла ZnSe и пленок ZnSe различной толщины на алюминиевом зеркале при фиксированном угле излучения $\varphi = 16 \pm 12^\circ$. Там же представлены рассчитанные спектры пленок ZnSe, для получения которых не использовался ни один подгоночный параметр. Расчет спектров производился по формуле ³ (12) с использованием численных параметров $\omega_{\text{ТО}}$, γ , ε_0 , ε_∞ (входящих в $\varepsilon_2(\omega)$) и параметров ω_p , γ_p (входящих в $\varepsilon_3(\omega)$), которые известны из литературы для массивных монокристаллов ZnSe и свеженапыленного алюминиевого зеркала. Хорошее согласие расчета с экспериментом свидетельствует не только о правильности теоретического описания спектров отражения-поглощения с помощью уравнения (12), но и о высоком фотометрическом качестве спектрального прибора и метода измерений ⁴ [70].

Радиационные поляритоны кристаллов и пленок изучаются в основном путем измерения их спектров поглощения-отражения или спектров теплового излучения. В последнем случае поляритоны рождаются внутри вещества тепловым движением заряженных частиц. Радиационный распад поляритонов (т.е. их превращение в свет) регистрируется в эксперименте.

При измерении спектров излучения образец в термостате устанавливается на место штатного источника ИК-излучения, угол излучения легко варьируется поворотом термостата без переюстировки спектрометра. Для измерения угловой зависимости излучения не нужно никаких вращающихся и движущихся зеркал, т.е. исследовать поляритоны методом регистрации теплового излучения значительно проще, чем по спектрам отражения. Спектроскопия теплового излучения колебательными состояниями кристаллов неоднократно использовалась для определения оптических свойств различных материалов [56–58, 74], в том числе и тонких пленок LiF на металле [57, 58].

Согласно соотношению Кирхгофа поток излучения пленки на металлической подложке (коэффициент пропускания структуры равен нулю, рассеянием света пренебрегаем) определяется соотношением [57, 76]

$$W_s(\omega, \varphi, T) = [1 - R_s(\omega, \varphi)] W_{\text{b.b.}}(\omega, T) = E_s(\omega, \varphi) W_{\text{b.b.}}(\omega, T), \quad (13)$$

где $W_s(\omega, \varphi, T)$ — поток излучения от образца при температуре T на частоте ω под углом φ от нормали к поверхности образца, $W_{\text{b.b.}}(\omega, T)$ — поток излучения черного тела. Зависимость коэффициента E_s от температуры для нас сейчас не существенна и ею можно пренебречь.

В грубом приближении работу спектрального прибора в режиме измерения теплового излучения образца (спектрорадиометра) можно представить следующим образом. При равенстве температуры образца и всех элементов спектрорадиометра прибор заполнен (как полость черного тела) равновесным тепловым излучением, которое определяется температурой прибора. При нагреве образца до температуры T_s поток его теплового излучения $W_s(\omega, \varphi, T_s)$ возрастает и, пройдя через моно-

³ При $l = 0$ уравнение (6) переходит в (12).

⁴ В ИК-спектроскопии частоты принято измерять в см^{-1} , их обозначают ν в отличие от частот ω , измеряемых в с^{-1} ($\nu = \omega/2\pi\text{с}$).

хроматор, поглощается приемником теплового излучения (болометром, оптико-акустической ячейкой Голея и др.), чувствительный элемент которого вырабатывает электрический сигнал, пропорциональный изменению его температуры. Приемник излучения также создает поток теплового излучения $W_D(\omega, T_D)$, который, пройдя через оптическую схему спектрометра, но от приемника к образцу, частично поглощается образцом ($E_s = A_s < 1$).

В рассматриваемом приближении сигнал I_s , снимаемый с приемника излучения, пропорционален разности потоков теплового излучения от образца и приемника:

$$I_s \propto kT_\lambda [W_s(\lambda, T_s) - W_D(\lambda, T_D)], \quad (14a)$$

где k — коэффициент преобразования светового потока в электрический сигнал, T_λ — спектральный коэффициент пропускания прибора на длине волны λ . В длинноволновой ИК-области спектра ($\lambda > 20$ мкм) поток излучения образца пропорционален его температуре, поэтому сигнал I_s , снимаемый с приемника, пропорционален разности температур образца и чувствительного элемента приемника. С повышением температуры образца сигнал I_s увеличивается, но при этом сильно возрастает ангармонизм и появляются другие побочные (нежелательные в данном случае) эффекты.

Количественное исследование спектров излучения образца представляет собой достаточно сложную задачу, когда его температура мало отличается от температуры спектрального прибора. Это связано с тем, что в ИК-области спектра излучение стенок обычного спектрометра, приемника излучения, модулятора светового потока и других элементов прибора сравнимо по интенсивности с излучением нагретых до 100–200 °С образцов, обладающих относительно малой оптической плотностью.

Кроме того, спектральные интенсивности излучения отдельных элементов спектрометра неизвестны, они входят аддитивно с излучением образца в сигнал, снимаемый с приемника ИК-излучения [71]:

$$I_s \approx kT_\lambda [W_s(\lambda, T_s) - W_{ch}(\lambda, T_{ch}) + \beta W_w(\lambda, T_w) - (1 - \beta) W_D(\lambda, T_D) + W_{th}(\lambda, T_{th})] + I_{noise}. \quad (14b)$$

Здесь k — коэффициент преобразования светового потока в электрический сигнал, T_λ — спектральный коэффициент пропускания прибора на длине волны λ , W_s , W_{ch} , W_w , W_D и W_{th} — потоки теплового излучения от образца, модулятора, стенок прибора, приемника ИК-излучения и стенок термостата образца соответственно, $\beta < 1$ — безразмерный коэффициент, определяемый ходом оптических лучей спектрального прибора и отражательной способностью образца, T_j — температура (в кельвинах), I_{noise} — флуктуации электрического сигнала. При малой излучательной способности образца ни одним из членов, входящих в квадратные скобки уравнения (14b), пренебречь нельзя, как это обычно делается и представлено в уравнении (14a). Неизвестны также коэффициенты k и T_λ .

Устанавливая на место образца черное тело, получаем аналогичное уравнение для интенсивности излучения черного тела $I_{b,b}$, которое в первом приближении отличается от (14b) только членом в скобках: $W_{b,b}$ вместо W_s . Отношение $I_s/I_{b,b}$ не зависит от k и T_λ , если

шум I_{noise} усреднен до нуля. Для получения отношения $W_s/W_{b,b}$ необходимо в (14b) исключить из рассмотрения остальные компоненты W_j . Получить искомое отношение можно несколькими способами [34, 56–58, 71], но проще всего это можно сделать с помощью измерения спектра I_m , поместив на место образца металлическое зеркало. Идеальное зеркало не излучает, и в этом случае первый член в квадратных скобках (14b) $W_s = W_m \approx 0$.

При равенстве температур образца, черного тела и зеркала, неизменности юстировки прибора, в котором образец последовательно заменяется на черное тело и зеркало, и при условии термостатирования прибора отношение

$$\frac{I_s - I_m}{I_{b,b} - I_m} = \frac{W_s}{W_{b,b}} = E_s \quad (15)$$

позволяет получить спектр излучения образца, нормированный на спектр излучения черного тела (флуктуации сигнала I_{noise} усреднены до уровня, когда ими можно пренебречь). В качестве черного тела использовалась шероховатая коническая алюминиевая полость, покрытая гальванической чернью.

Справедливость описанной выше процедуры измерения термостимулированного излучения образцов подтверждается хорошим совпадением экспериментальных и рассчитанных спектров излучения пленок ZnSe на алюминиевом зеркале. Измерения излучательной способности образцов проводились при температуре термостата T_s , равной 450 или 80 К и температуре детектора ИК-излучения $T_D = 300$ К. При $T_s = 80$ К измерения проводились, таким образом, в отрицательном световом потоке⁵ [56, 73, 74].

На рисунке 3 показаны спектры термостимулированного излучения E тех же образцов, что и на рис. 2 [33, 34], и схематически изображена плотность однофононных состояний (для оптических фононов) монокристалла ZnSe [72]. Кроме экспериментальных спектров, представлены рассчитанные спектры, при получении которых не использовался ни один подгоночный параметр. Спектры излучения E рассчитывались по формулам (12) и (13). Экспериментальные спектры $E(\omega, \varphi)$ совпадали со спектрами $1 - R(\omega, \varphi)$ при равенстве углов φ и температуры образцов и измерениях спектров излучения и отражения с точностью до небольшой (несколько процентов) фоновой подставки, практически не зависящей от частоты.

Представленные на рис. 3 экспериментальные результаты позволяют сделать несколько неожиданных выводов (они обсуждаются в разделе 5).

1. В тонких пленках p -поляризованное излучение света существует не только на частоте поперечного оптического фонона, но и на частоте продольного оптического фонона, что запрещено правилами отбора в массивном кристалле [31–33, 57–59].

2. В массивном монокристалле поглощение и излучение света происходит не в области частот однофононных состояний кристалла $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$, а в областях частот $\omega_{ex} > \omega > \omega_{LO}$ и $\omega < \omega_{TO}$, где однофононные состояния отсутствуют [33, 89].

⁵ При $W_s > W_D$ чувствительный элемент приемника излучения нагревается, а при $W_s < W_D$ ($T_s < T_D$) приемник излучает больше, чем поглощает, и его чувствительный элемент охлаждается. Такой режим измерения спектров излучения называют спектроскопией отрицательных световых потоков [56, 74].

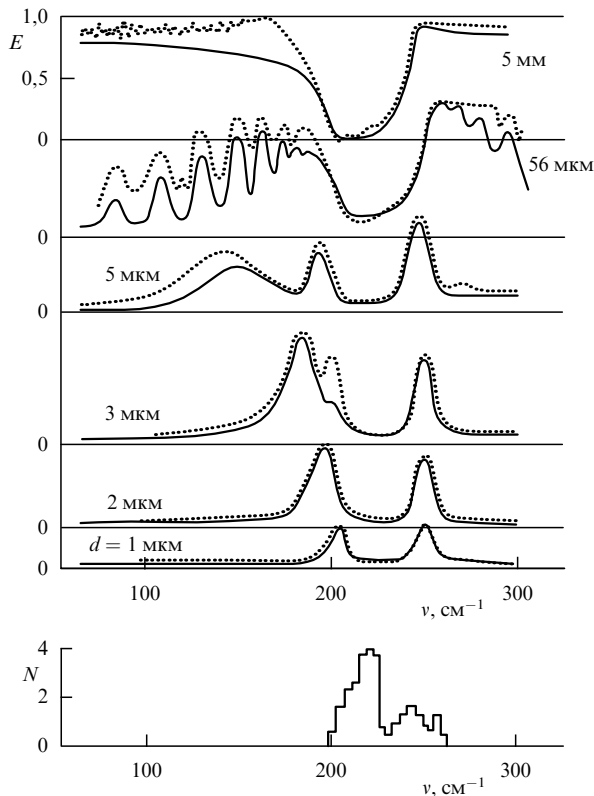


Рис. 3. Спектры *p*-поляризованного термостимулированного излучения пленок ZnSe различной толщины *d* на Al-зеркале: точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет без подгоночных параметров [33, 89]. Внизу — плотность оптических фононов ZnSe [72].

3. Излучательная способность E массивного кристалла в областях частот $\omega_{\text{ex}} > \omega > \omega_{\text{LO}}$ и $\omega < \omega_{\text{TO}}$ оказывается близкой к единице, т.е. к излучательной способности абсолютно черного тела, а не равна $E = 1 - R$, как это следует из закона Кирхгофа (13).

Исследование нерадиационных поверхностных поляритонов методами оптической спектроскопии возможно, в частности, при использовании призмы НПВО, согласующей двумерный волновой вектор поверхностного поляритона с волновым вектором объемной электромагнитной (световой) волны в призме [5, 29, 31]. Согласовать волновые векторы внешней электромагнитной волны и поверхностного поляритона можно также нанесением на поверхность кристалла периодических штрихов [5, 8, 51]. Таким образом, призма НПВО, расположенная вблизи поверхности кристалла, и периодические штрихи на поверхности кристалла превращают нерадиационные поверхностные колебательные состояния вблизи границы раздела "кристалл–вакуум" (с $q > k_0$) в состояния, поглощающие свет.

Следует отметить, что для возбуждения поверхностных поляритонов недостаточно только уравнивать волновые векторы световой волны в призме НПВО и поверхностного поляритона, поскольку, как указывалось выше, его электромагнитное поле E не является, строго говоря, поперечным. Это поле достаточно быстро затухает в глубь кристалла и несколько медленнее в вакуум, т.е. является неоднородным (затухающим в направлении оси z), поэтому $k_z^2 < 0$ [46, 75]. Аналогичная неоднородная (эванесцентная) электромагнитная волна с $k_z^2 < 0$, рас-

пространяющаяся вдоль границы раздела в плоскости падения и экспоненциально затухающая в сторону оптически менее плотной среды, возникает при полном внутреннем отражении в призме. Эта волна также не является чисто поперечной, поскольку компонента E в направлении ее распространения отлична от нуля [67, 75].

Таким образом, световая волна, падающая на плоскую границу призмы, расположенной на некотором расстоянии от поверхности кристалла, может возбуждать в кристалле поверхностный поляритон с частотой ω и волновым вектором $q = k_0 n \sin \varphi > k_0$, т.е. при углах φ , больших критического, когда в призме возникает полное внутреннее отражение (n — показатель преломления материала призмы). Наличие призмы вблизи поверхности кристалла приводит к возмущению поверхностного поляритона, что проявляется в значительном изменении его закона дисперсии [8, 31, 67]. Дисперсия поверхностного поляритона монокристалла ZnSe при достаточно большом (слабовозмущающем) и нулевом вакуумных зазорах между призмой из кремния и кристаллом ZnSe представлена на рис. 4в.

Возбуждение поверхностных поляритонов светом методом А. Отто через призму НПВО над кристаллом [5, 29] приводит к поглощению света "нерадиационными поверхностными поляритонами"⁶. В соответствии с

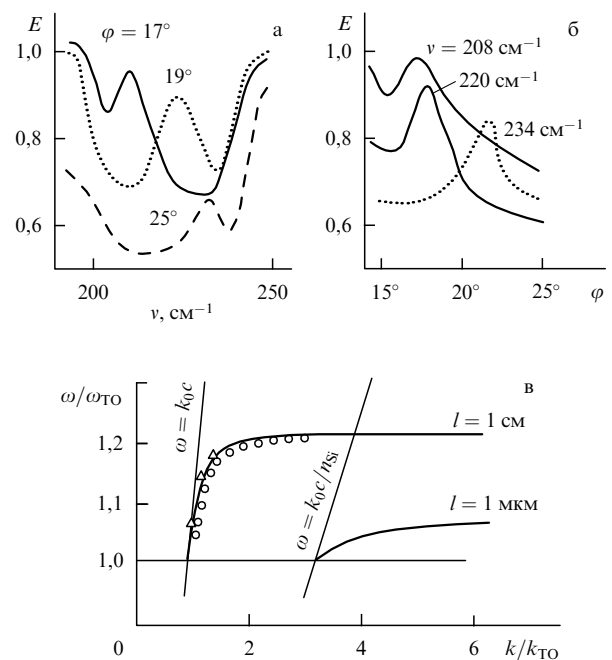


Рис. 4. Спектр *p*-поляризованного излучения системы "Si-призма – зазор – монокристалл ZnSe – Al-зеркало": (а) при фиксированных углах излучения и сканировании частоты; (б) при фиксированных частотах и сканировании угла излучения [30, 39]. (в) Дисперсия поверхностного фонон-поляритона монокристалла ZnSe: точки — экспериментальные значения частот максимумов пиков излучения для двух различных по структуре монокристаллов [33, 34], сплошные кривые — расчет при зазорах между призмой и кристаллом $l = 1$ см и $l = 1$ мкм.

⁶ Поскольку призма НПВО превращает нерадиационные поляритоны в радиационные, термин "нерадиационные поляритоны" становится некорректным. Его можно использовать, когда речь идет о дисперсии поляритонов, но мы будем использовать кавычки, когда речь идет об интенсивности излучения.

законом Кирхгофа система, поглотившая свет, может излучить его. Когда призма НПВО расположена далеко от поверхности кристалла, излучение света в области частот существования поверхностных поляритонов экспериментально не наблюдается, даже если образец сильно нагрет. По мере приближения призмы к нагретому по отношению к спектральному прибору образцу возникает свечение. Это свечение усиливается с уменьшением расстояния между призмой и образцом и достигает светимости, близкой к светимости абсолютно черного тела.

Термостимулированное излучение "нерадиационных поверхностных поляритонов" возникало при поднесении к нагретому кристаллу ZnSe [30–34] призмы (получил цилиндра) из монокристаллического кремния или КРС-6. Излучение, рожденное "нерадиационными поверхностными поляритами", наблюдалось при углах излучения $\varphi > \arctan n$, где n — показатель преломления материала призмы. Измеряя спектры излучения при различных углах излучения, можно восстановить из эксперимента дисперсию поверхностного поляритона массивного монокристалла, определяемую соотношением (3). В наших экспериментах образец монокристалла ZnSe и кремниевая призма закреплялись в держателе термостата, зазор между кристаллом и призмой задавался прокладкой из майларовой пленки. В термостате последовательно измерялись спектры излучения структур "образец–зазор–призма" (I_1), "зеркало–зазор–призма" (I_2), "черное тело" (I_3), "зеркало" (I_4). Искомый спектр излучения поверхностных поляритонов вычислялся на каждой частоте излучения с помощью соотношения [30, 71]

$$\frac{I_1 - I_2}{I_3 - I_4} = \frac{E_p}{E_{b.b.}} \quad (16)$$

В процессе измерений спектров излучения I_j ($j = 1, 2, 3, 4$) температура термостата поддерживалась равной $150 \pm 0,5^\circ\text{C}$, однолучевой дифракционный ИК-спектрометр FIS-21 (Hitachi) или фурье-спектрометр FS-720 (Beckman, РИП) находились при комнатной температуре. При этом термостат устанавливался на место одного из штатных источников излучения. Спектры излучения поверхностных поляритонов монокристалла ZnSe при фиксированных углах излучения и сканировании частоты представлены на рис. 4а, а при фиксированных частотах и сканировании угла излучения — на рис. 4б. Поверхностные поляритоны излучали p -поляризованный свет. Положение максимумов полос излучения соответствовало точкам в $(\omega - q)$ -пространстве на дисперсионной кривой поверхностного поляритона. Сплошные кривые на рис. 4в были получены численным расчетом по формуле (3) с параметрами $\omega_{\text{ТО}}$, γ , ϵ_0 , ϵ_∞ диэлектрической проницаемости ZnSe, восстановленными из измерений спектра отражения того же кристалла при $T = 150^\circ\text{C}$ [34].

Следует отметить, что интенсивность излучения структуры "образец–зазор–призма" сильно зависит от толщины зазора между образцом и призмой. Оптимальная толщина зазора, как показано в [31, 79, 83], порядка длины волны света. В процессе каждого измерения экспериментально подбирался максимально возможный зазор, при котором еще наблюдалось селективное свечение структуры. При таких условиях частотное или

угловое положение максимума полосы в спектрах излучения практически соответствовало невозмущенному поверхностному поляритону.

3. Излучение света плазмонами структуры "призма НПВО над металлом"

В эксперименте диэлектрическая призма, контактирующая с металлом, хорошо моделирует полубесконечную диэлектрическую среду [75, 77]. При этом предполагается, что призма изготовлена из идеального диэлектрика ($\text{Re } \epsilon_{\text{diel}}(\omega) = \text{const}$, $\text{Im } \epsilon_{\text{diel}}(\omega) = 0$), т.е. в интересующем нас диапазоне частот материал призмы не поглощает электромагнитных волн. Дисперсия плазмон-поляритона $\omega(q)$ границы раздела двух полубесконечных сред, соответствующая уравнению (4), представлена на рис. 5а для двух предельных случаев: для границы раздела "вакуум–металл" и интерфейса "металл–диэлектрик" (диэлектрическая проницаемость монокристаллического ZnSe в ближней ИК-области спектра $\epsilon_{\text{diel}} = 5,8$). Каждый из поверхностных (интерфейсных) плазмон-поляритонов нерадиационный, так как их дисперсионные ветви на $(\omega - q)$ -диаграмме расположены справа от световой прямой в вакууме и "световой прямой" в диэлектрической среде. В первом случае их двумерный волновой вектор $q > k_0$, и во втором — $q > k_0 \sqrt{\epsilon_{\text{diel}}}$. Таким образом, рис. 5а показывает, что дисперсия поверхностных плазмон-поляритонов сильно

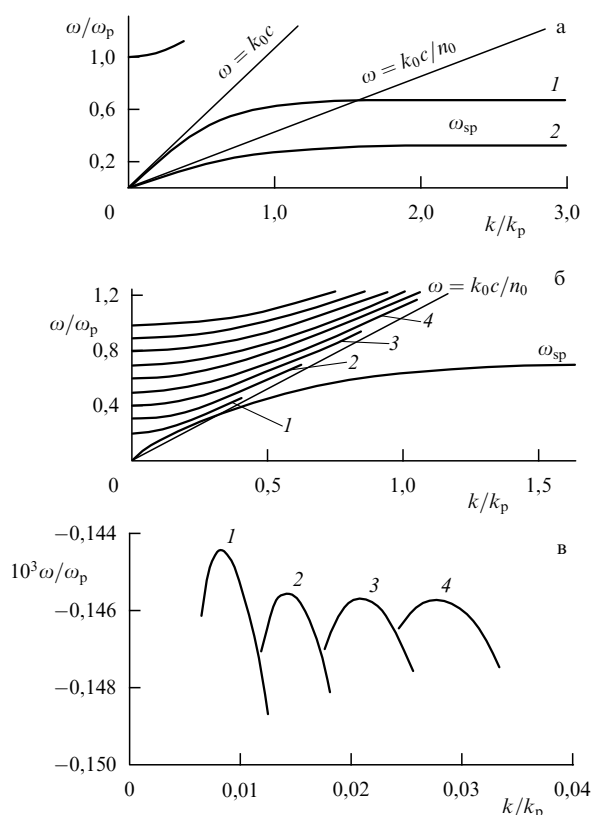


Рис. 5. (а) Дисперсия плазмон-поляритона металла для границы раздела "вакуум–металл" (1) и интерфейса "металл–диэлектрик" (2), $\epsilon_{\text{diel}} = 5,8$. (б) Дисперсия ТМ-поляритонов структуры "призма–зазор–металл", $l = 1$ мкм, $\epsilon_{\text{diel}} = 5,8$, $\nu_p = 2 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_p = 10^3 \text{ см}^{-1}$. (в) Радиационная полуширина ТМ-поляритонов структуры, $k_p = \nu_p$ [32, 89].

изменяется при удалении призмы от поверхности металла в бесконечность. Электромагнитные поля этих плазмон-поляритонов экспоненциально затухают в обе стороны от границы раздела [9].

Как изменяется дисперсия плазмон-поляритона структуры "призма–зазор–металл" в зависимости от толщины зазора l между призмой и металлом?

Очевидно, что, как и в обычном интерферометре Фабри–Перо, в зазоре между призмой и металлом существуют интерференционные моды, частоты которых должны зависеть от волнового вектора q . Следует подчеркнуть, что при действительных значениях q решение дисперсионного уравнения (4) является комплексным ($\omega_N(q) = \omega_N^I(q) + i\omega_N^{II}(q)$, где N — номер интерференционной моды), что и означает наличие радиационного распада состояний. Дисперсия и радиационная полуширина ТМ-поляритонов структуры "призма–зазор–металл", полученные численным расчетом по формуле (4), представлены на рис. 5б и 5в. Как видно из рис. 5б, при фиксированной толщине l вакуумного зазора появляется набор ветвей радиационных поляритонов, расположенных слева от световой прямой в вакууме, число этих ветвей определяется только толщиной зазора [32, 33, 79]. Отметим, что радиационная полуширина интерференционных поляритонов зависит как от тол-

щины зазора, так и от частоты поляритона. Поэтому говорить об интерференционных модах можно, пока спектральная ширина полос этих мод меньше расстояния между соседними модами, т.е. когда $\omega_N^{II} \ll |\omega_N^I - \omega_{N-1}^I|$.

При малых значениях q вдали от частоты плазмон-поляритона металла закон дисперсии радиационных поляритонов имеет вид [32]

$$\omega_N^I = \frac{\pi N \omega_p}{\omega_p l/c + 1 - \varepsilon_1^{-1}} + q^2 c^2 \frac{\omega_p l/c + 1 - \varepsilon_1^{-1}}{2\pi N \omega_p}, \quad (17a)$$

$$\omega_N^{II} = \frac{c}{l} \operatorname{arctanh} \varepsilon_1^{-1/2}. \quad (17b)$$

Очевидно также, что в приближении плоских волн радиационная область $(\omega - q)$ -диаграммы при $l \rightarrow \infty$ полностью заполнена собственными состояниями электромагнитного поля рассматриваемой структуры.

Поглощение света радиационными поляритонами в структуре "призма–зазор–металл" регулярно наблюдается в экспериментах по исследованию поверхностных плазмонов металлов методами спектроскопии НПВО [5, 31, 78, 79, 83], когда толщина зазора между призмой и образцом превышает длину волны света в вакууме. На рисунке 6 представлены спектры p -поляризованного

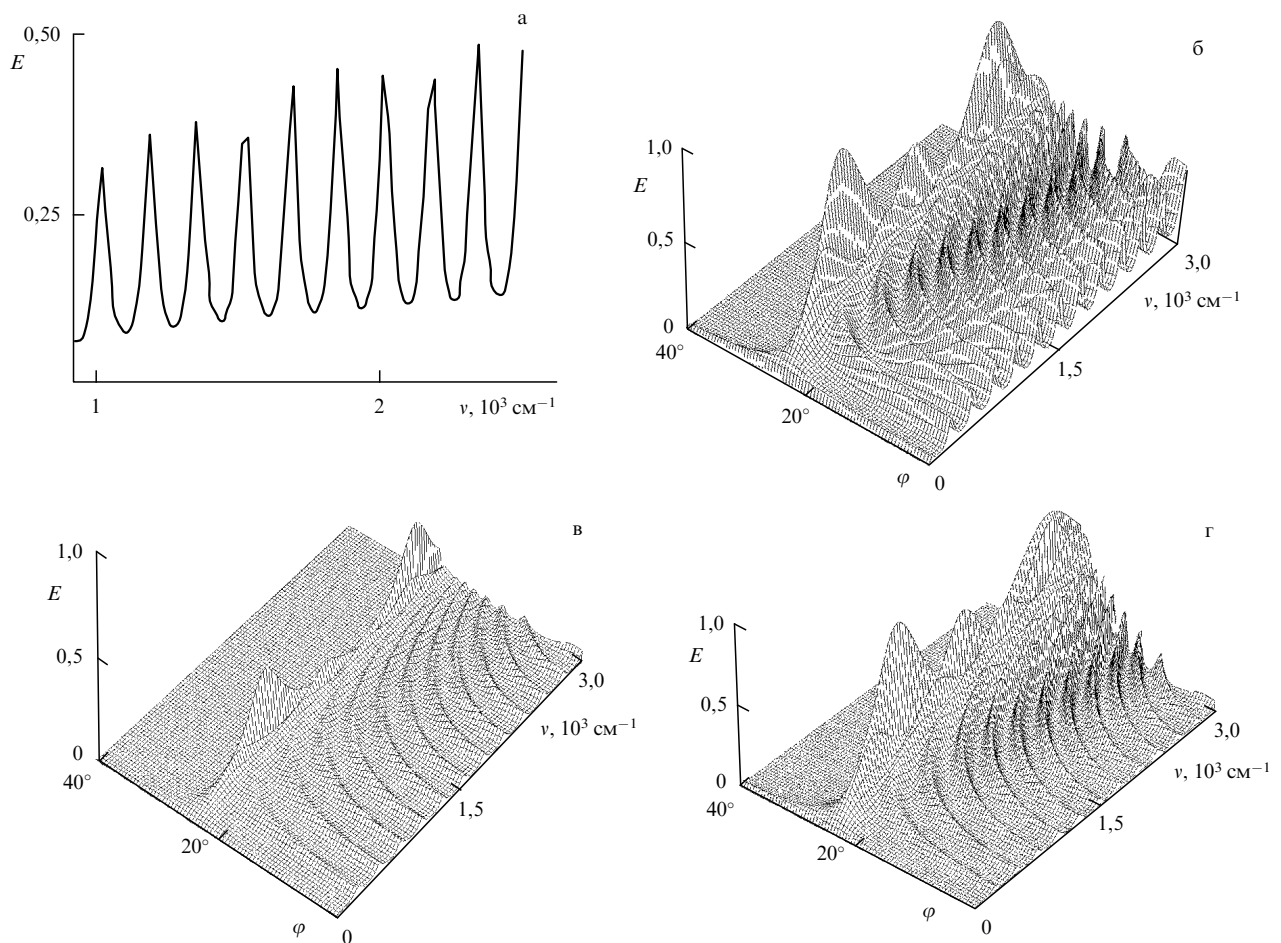


Рис. 6. Экспериментальный спектр p -поляризованного термостимулированного излучения структуры "призма ZnSe–зазор (20 мкм)–хром" при угле излучения внутри призмы $12 \pm 3^\circ$ (а) и теоретические спектры излучения структуры "призма ZnS–зазор–металл", рассчитанные для различных углов излучения света в призме: (б) металл — хром, $\nu_p = 5 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_p = 8 \times 10^3 \text{ см}^{-1}$ [33]; (в) металл — алюминий, $\nu_p = 1,2 \times 10^5 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_p = 10^3 \text{ см}^{-1}$; (г) то же, что и (в), но $\varepsilon_{\text{ZnSe}} = 5,8 - 0,03i$ [89].

термостимулированного излучения структуры "призма ZnSe–зазор–металл". Величина зазора в эксперименте задавалась майларовой прокладкой толщиной 20 мкм, а в качестве полубесконечного металла использовались непрозрачные в видимой области спектра металлические зеркала с напыленными на кварцевую пластину слоями хрома и алюминия (толщиной больше 500 нм).

Термостимулированное излучение структуры "призма ZnSe–зазор–алюминий" использовалось в качестве реперного спектра I_2 (см. формулу (16)), полученного в тех же условиях (температура термостата $T = 150^\circ\text{C}$, тот же угол излучения, та же прокладка между призмой и металлом). Свеженапыленный алюминий — одно из лучших зеркал в ИК-области спектра (коэффициент отражения не менее 96 %). Интенсивность излучения I_2 составляла около 40 % от интенсивности излучения "черного тела" при той же температуре (150°C), а "модуляция" спектра I_2 интерференционными модами зазора "призма–алюминий" была не более 5 % и легко сглаживалась (усреднялась).

На рисунках 6б–6г представлены теоретические спектры излучения структуры "призма–зазор–металл", рассчитанные с использованием формулы (6) для различных углов излучения света в призме φ . При $q > k_0$ (т.е. $\varphi > \varphi_c = 24,54^\circ$ в случае призмы из ZnSe) видно, что нет состояний, взаимодействующих со светом. При $\varphi < \varphi_c$ (т.е. $q < k_0$) видны полосы поглощения света радиационными поляритаонами. Их частоты находятся в полном соответствии с дисперсионными кривыми на рис. 5б, а полуширины — с данными на рис. 5в. Как следует из сопоставления рис. 6б и 6в, интенсивность спектров излучения (поглощения) радиационными поляритаонами структуры с хромом значительно больше, чем у структуры с алюминием. Интенсивность спектров определяется в первую очередь величиной $\text{Im } \varepsilon_m(\omega)$, т.е. проводимостью металла (частотой столкновения электронов в плазме металла). Видно хорошее качественное согласие теоретического спектра (рис. 6б) с экспериментальным (рис. 6а).

В приведенных на рис. 6 результатах количественное сравнение экспериментальных спектров с теоретическими затруднено погрешностью не только в определении толщины зазора. Если использовать толщину зазора в качестве подгоночного параметра, то частоты полос интерференционных мод и их полуширины хорошо совпадают с теоретическими, а погрешность в определении интенсивности полос излучения достигает 50 %. Эксперимент дает большую интенсивность, чем расчет. Возможно, это связано с поглощением света в призме НПВО, т.е. с наличием мнимой части диэлектрической проницаемости материала призмы. В обычных экспериментах в дальнем поле поглощение в призме (линзе) приводит к уменьшению интенсивности. В нашем же случае мы имеем дело с ближним полем: эванесцентное поле поверхностного плазмона металла проникает в призму и преобразуется зазором в дальнее поле, регистрируемое в эксперименте.

Как показано в работе [80], учет мнимой части диэлектрической проницаемости материала призмы НПВО в структуре "призма–зазор–металл" дает значительное увеличение интенсивности излучения интерференционными поляритаонами структуры, однако экспериментально это явление пока не исследовано. Теоретические спектры излучения структуры "призма

ZnSe–зазор–алюминий" с использованием комплексной диэлектрической проницаемости материала призмы $\varepsilon_{\text{ZnSe}} = 5,8 - 0,03i$ представлены на рис. 6г [89]. Видно, что при учете малой (не зависящей от частоты) мнимой части диэлектрической проницаемости материала призмы спектры излучения меняются значительно (рис. 6в и 6г). При этом экспериментальный спектр (рис. 6а) с погрешностью до 10 % совпадает с расчетным (рис. 6б) и по интенсивности излучения.

Таким образом, при нулевом или бесконечно большом зазоре между призмой и металлом поверхностные поляритоны являются нерadiационными, т.е. не могут поглощать и излучать свет [32, 33, 40]. Радиационная область, расположенная слева от световой прямой в среде (рис. 5а), значительно больше, чем для границы раздела "металл–вакуум", но обе они "пусты", т.е. не содержат каких-либо состояний, кроме вакуумных. Это означает, что свет с частотой $\omega < \omega_p$, падающий на металл в обеих средах, не может поглотиться, а должен полностью отразиться. Если же зазор имеет конечную толщину, сравнимую с длиной проникновения поля поверхностного поляритона в вакуум, возникает возмущение поля призмой, приводящее к появлению в зазоре радиационных мод (типа мод Фабри–Перо) [31–33]. Интенсивность полос поглощения (излучения) этими модами зависит от мнимой части диэлектрической проницаемости металла и материала призмы.

Следует отметить, что исходными возбуждениями структуры "призма НПВО–вакуумный зазор–металл" при конечной температуре являются поверхностные плазмоны металла. Появление радиационных поляритонов при возникновении зазора между призмой и металлом и зависимость интенсивности поглощения света этими поляритаонами от диэлектрической проницаемости металла означает, что электромагнитные состояния плазмон–поляритона металла расщепляются за счет их взаимодействия с диэлектрической призмой. Часть электромагнитной энергии поверхностного плазмона излучается через призму в вакуум на частотах радиационных состояний. Рожденные таким образом "фотоны" не являются свободными фотонами, распространяющимися в вакууме, так как их дисперсия при малых q (рис. 5б) сильно отличается от дисперсии света в вакууме (от световой прямой). Эти "фотоны" (точнее, радиационные поляритоны структуры) "привязаны" к вакуумному зазору между металлом и призмой, и их следует рассматривать как собственные состояния электромагнитного поля трехслойной структуры в целом. При $\text{Im } \varepsilon_m(\omega) = 0$, $R \equiv 1$ ($E = A = 0$) радиационные поляритоны в эксперименте не наблюдаются, хотя они и существуют в соответствии с уравнением (4).

Аналогичная ситуация возникает, когда диэлектрическая среда над поверхностью металла ограничена (имеет конечную толщину).

4. Излучение света плазмонами структуры "пленка диэлектрика на металле"

Рассмотрим пленку идеального диэлектрика на металлической подложке. Как и в предыдущем случае, исходными возбуждениями такой структуры являются поверхностные плазмоны металла и фотоны вакуума. Их взаимодействие в структуре "вакуум–пленка диэлектрика–металл" приводит к образованию поляритонов,

дисперсионные ветви которых описываются формулами (4) и (5).

Дисперсия ТМ-поляритонов структуры "вакуум – пленка диэлектрика (1 мкм) – металл" представлена на рис. 7 [32, 89]. Как видно из рисунка, наряду с нерадиационным поверхностным плазмон-поляритоном ω_{sp} границы раздела "металл – полупроводник" в такой структуре присутствуют нерадиационные (волноводные) поляритоны, расположенные в области между световой прямой $v = k_0/2\pi$ и прямой $k_0/2\pi n_0$ (где $n_0 = \epsilon_{diel}^{1/2}$ — показатель преломления материала пленки), и радиационные (интерференционные) поляритоны слева от световой прямой [32]. Следует отметить, что при увеличении толщины пленки d возрастает число интерференционных и волноводных ветвей. При $d \rightarrow \infty$ в приближении плоских волн число мод стремится к бесконечности, при этом моды полностью заполняют зоны волноводных и интерференционных поляритонов.

Спектры отражения-поглощения пленки ZnSe толщиной 1,25 мкм на алюминиевой подложке при различных углах падения p -поляризованного света показаны на рис. 8а, а спектры отражения-поглощения при углах $\varphi > \varphi_{Br}$ (где φ_{Br} — угол Брюстера) для p - и s -поляризованного света — на рис. 8б [33, 35]. Плато в коротковолновой области спектра ($\lambda < 460$ нм) обусловлено фундаментальным зона-зонным поглощением ZnSe (ширина запрещенной зоны $E_g = 2,7$ эВ при $T = 300$ К).

На рисунке 9 представлены рассчитанные спектры поглощения реальной пленки ZnSe на реальном металле (алюминий) [33, 89]. Расчет производился по формуле (12) с той же диэлектрической проницаемостью $\epsilon_2(\omega)$

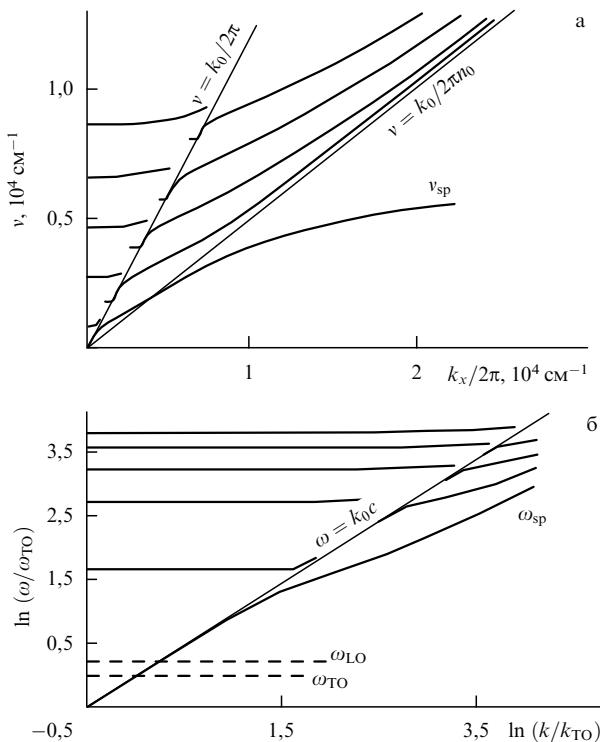


Рис. 7. Дисперсия ТМ-поляритонов структуры "вакуум – пленка диэлектрика (1 мкм) – металл" в случае пленки идеального диэлектрика (а) и пленки ZnSe (б) [32, 89]. Область пересечения LO- и TO-фононов с прямой $v = k_0/2\pi$ более детально рассмотрена на рис. 10; v_{sp} — поверхностный плазмон-поляритон границы раздела "металл – диэлектрик".

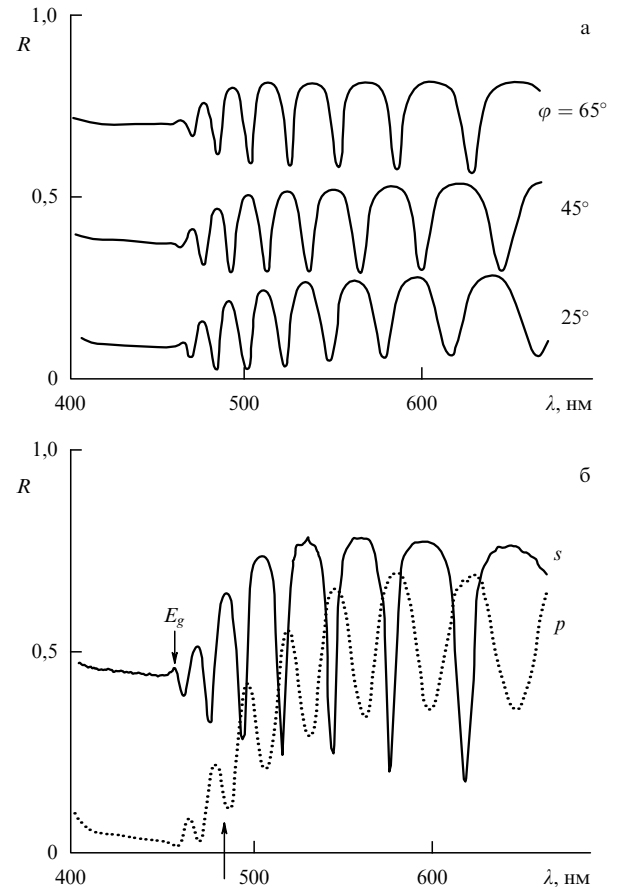


Рис. 8. Спектры отражения-поглощения пленки ZnSe толщиной 1,25 мкм на Al-подложке: (а) при различных углах отражения p -поляризованного света; (б) при $\varphi = 75^\circ > \varphi_{Br}$ для p - и s -поляризованного света [33, 35].

пленки, что и для массивного кристалла. При этом в области частот $\omega < \omega_{ex}$ для $\epsilon_2(\omega)$ пленки использовалось выражение

$$\epsilon_2(\omega) = \epsilon_\infty - \Delta_\epsilon + \Delta_\epsilon \frac{\omega_{ex}^2}{\omega_{ex}^2 - \omega^2 - i\gamma_{ex}\omega} + (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \frac{\omega_{TO}^2}{\omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}, \quad (18)$$

где $\omega_{ex} \approx E_g/\hbar$ и γ_{ex} — частота и постоянная затухания экситона (E_g — ширина запрещенной зоны), Δ_ϵ — сила осциллятора экситона, ω_{TO} , γ и $(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)$ — частота, постоянная затухания и сила осциллятора поперечного оптического фонона соответственно.

Выражение (18) достаточно хорошо описывает частотную зависимость диэлектрической проницаемости пленки ZnSe на частотах $\omega \ll \omega_{ex}$, т.е. вдали от частот переходов электронов из валентной зоны в зону проводимости [32, 33, 86]. Диэлектрическая проницаемость металла $\epsilon_3(\omega)$ бралась в форме (8). Видно хорошее качественное согласие экспериментальных и рассчитанных спектров [32, 33, 86, 89]. Низкочастотная ("фононная") область спектра поглощения на рис. 9в очень хорошо согласуется с экспериментальными данными на рис. 2 и 3 (см. также [59, 88]).

Частота и форма контура полосы поглощения радиационными поляритонами рассматриваемой структуры

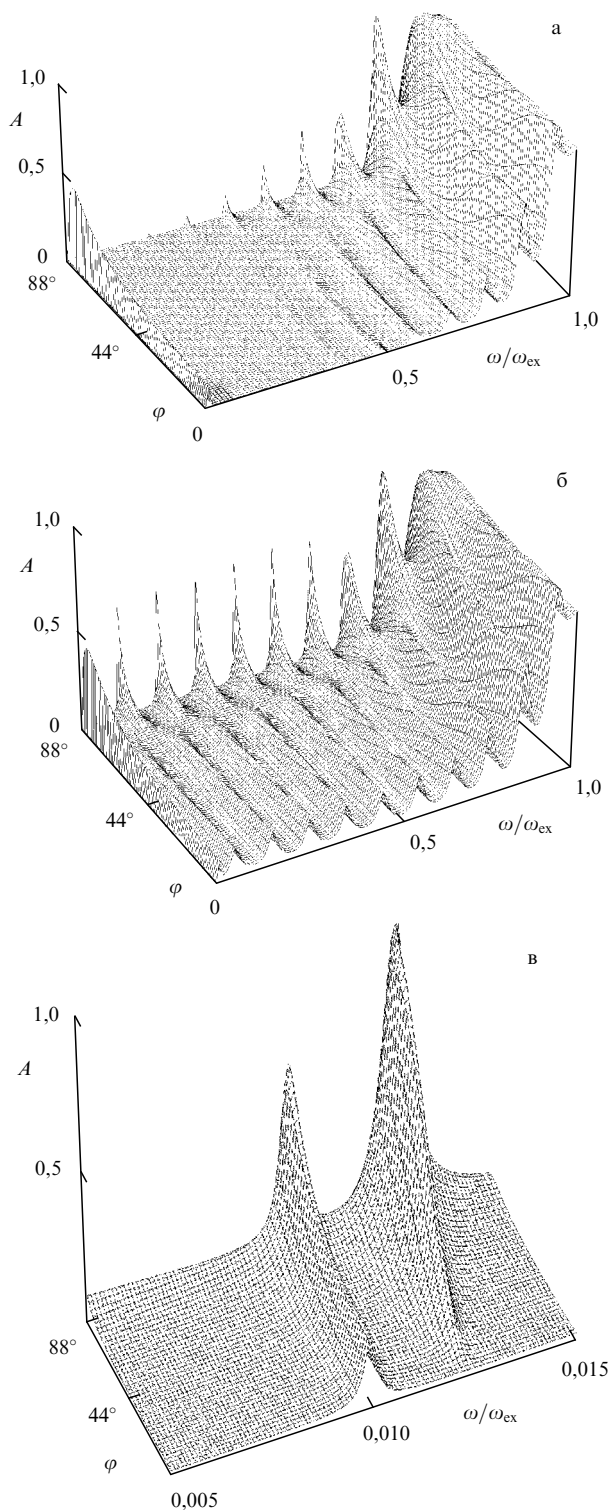


Рис. 9. Рассчитанные спектры p -поляризованного поглощения реальной пленки ZnSe толщиной 1 мкм ($\Delta\epsilon_{\text{ex}} = 0,05$, $\nu_{\text{ex}} = 2 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_{\text{ex}} = 1,5 \times 10^3 \text{ см}^{-1}$): (а) на идеальной металлической подложке, $\nu_p = 1,2 \times 10^5 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_p = 0$; (б) на реальной Al-подложке, $\nu_p = 1,2 \times 10^5 \text{ см}^{-1}$, $\gamma_p = 10^3 \text{ см}^{-1}$ [33, 89]; (в) "фонная" область поглощения хорошо согласуется с данными на рис. 2 и 3 [33].

определяются толщиной и диэлектрической проницаемостью пленки диэлектрика, а интенсивность полос поглощения — величиной $\text{Im } \epsilon_m(\omega)$, т.е. проводимостью металла. Чем меньше проводимость металлической подложки, тем интенсивнее полосы излучения (погло-

щения) на частотах интерференционных мод плоскопараллельного слоя диэлектрика на металле.

Следует подчеркнуть, что интерференционные моды зависят от двумерного волнового вектора $\mathbf{q}$. При действительных и малых q на частотах, много меньших частоты плазмон-поляритона металла и частоты экситона диэлектрика, закон дисперсии интерференционных поляритонов имеет вид [32]

$$\omega_N^I = \frac{\pi(2N+1)\omega_p\epsilon_2^{1/2}}{2(\omega_p d/c + \epsilon_2 - 1)} + \frac{2q^2 c^2 (\omega_p d/c + \epsilon_2 - 1)}{\pi(2N+1)\omega_p\epsilon_2^{1/2}}, \quad (19a)$$

$$\omega_N^{\text{II}} = \frac{c}{d\epsilon_2^{1/2}} \text{arctanh } \epsilon_2^{-1/2}. \quad (19б)$$

Формулы (19) довольно хорошо описывают положение максимумов полос поглощения по частоте ω_N^I и их полуширину ω_N^{II} в спектрах на рис. 8 и 9 [32, 89].

В работах [32, 33, 86] показано, что если частоты интерференционных мод пленки на металлической подложке попадают в область частот, разрешенных правилами отбора межзонных переходов электронов в металле, то возникает гибридное состояние электромагнитного поля структуры (интерференционных мод полости) с электронными состояниями подложки (стенок полости) и свет поглощается гибридным (смешанным) поляритоном. В этих экспериментах измерялись спектры отражения-поглощения пленок ZnSe толщиной 0,27 мкм, напыленных одновременно (в одном технологическом цикле) на подложки с толстыми (глухими) зеркалами из алюминия, хрома и меди в видимой области спектра (400–700 нм). Положение единственной в этой области спектра полосы поглощения интерференционной моды с $N = 2$ оказалось сильно зависящим от металлической подложки (рис. 23б). В отличие от алюминия и хрома разрешенные правилами отбора межзонные электронные переходы существенно модифицируют дисперсию поверхностного плазмон-поляритона меди [81]. При совпадении частоты интерференционной моды пленки ZnSe на меди с частотой плазмон-поляритона в области межзонных электронных переходов между ними возникает резонанс, приводящий к сдвигу и уширению интерференционной полосы в спектре отражения-поглощения. Наиболее ярко это проявляется в тонкой пленке ($nd \propto \lambda$): для пленки ZnSe толщиной 0,27 мкм на меди сдвиг полосы в низкочастотную область спектра составлял почти 0,4 эВ. Гигантский сдвиг "интерференционной" полосы в пленке на меди и ее большое уширение по сравнению с такой же полосой в пленках на алюминии и хrome свидетельствуют о возникновении гибридного (смешанного) поляритона [86]. Следует отметить, что гибридный поляритон обладает аномально большой интегральной поглощательной способностью света.

Из проведенного выше качественного анализа видно, что пленка из идеального диэлектрика на металле преобразует нерadiационный (при нулевой и бесконечной толщине пленки) поверхностный плазмон металла в совокупность новых состояний плазмона — в интерференционные и волноводные поляритоны структуры. Можно сказать иначе: проникая в пленку диэлектрика, электромагнитное поле поверхностного плазмон-поляритона металла возмущается ("квантуется") границами

пленки, и в результате этого "размерного квантования" возникают интерференционные и волноводные поляритоны структуры. Пленку в такой структуре можно также рассматривать как полость (резонатор) для электромагнитного поля (в том числе вакуума), а интерференционные и волноводные моды — как "моды" полости⁷, взаимодействующие с плазмоном металлической стенки полости [23, 32, 84].

Для непоглощающей пленки на идеальном металле ($A = 0$) из (10) следует, что $R = 1$ при любой толщине пленки и углах падения света. В этих условиях в сэндвиче существуют интерференционные моды (моды полости), которые подчиняются законам дисперсии (4) и (5), но не могут наблюдаться в экспериментальных спектрах поглощения, термостимулированного излучения или отражения. И только при $A > 0$ в спектре отражения-поглощения сэндвича реально проявляются "интерференционные" моды. Это может быть связано как с хвостами плотности фоновых или электронных (экситонных) состояний объемных и поверхностных возбуждений пленки, плотностью многофононных состояний, дефектами кристаллической структуры, так и с затуханием плазменных колебаний в металлической подложке. Все эти состояния перенормируются за счет возмущения электромагнитного поля поляритона сэндвича пленкой диэлектрика.

Таким образом, изначально нерадиационный поверхностный плазмон металла на границе раздела полубесконечных сред частично превращается пленкой на металле в радиационный. И если даже материал пленки диэлектрика не поглощает света ($\gamma_{\text{ex}} = \gamma = 0$ в формуле (18)), сэндвич поглощает и излучает электромагнитные волны.

5. Излучение света поляритами структуры "пленка полупроводника на металле"

Рассмотрим теперь пленку реального диэлектрика (полупроводника) на металлической подложке. Учет собственных колебательных состояний пленки на металлической подложке приводит к значительным изменениям в дисперсии поляритонов структуры и к специфическому изменению оптических свойств как пленки, так и металлической подложки. Оптические свойства тонких пленок диэлектриков и полупроводников на поверхности металлов обсуждались в большом числе работ (см., например, [22–26, 31–35, 38–44, 57–59, 61–66, 79–92]). При этом одни авторы рассматривали изменения в оптических свойствах свободных пленок (без подложки) за счет их контакта с металлом, другие — изменения в характеристиках поверхностных плазмонов металла за счет нанесения пленки на металл.

Строго говоря, взаимодействие дипольно-активных возбуждений в пленке на металле с электронными состояниями металла приводит к модификации возбуждений и пленки, и подложки. Эксперимент же всегда дает

информацию о структуре в целом (в нашем случае о структуре "вакуум–пленка–металл"). Поляритоны в сэндвичеподобной структуре являются смешанными поляритами с единым электромагнитным полем для структуры в целом. Электромагнитное поле смешанного поляритона определяется всеми элементарными возбуждениями каждой среды в структуре [31–34].

5.1. Тонкие пленки

Дипольно-активные кулоновские колебательные состояния пленки (или адсорбированных на поверхности металла молекул) с частотой ω_0 в первом приближении не зависят от волнового вектора в области $q \approx 0$. При $\omega_0 \ll \omega_p$ прямая, параллельная k_x , пересекает ветви поляритонов (интерференционных, волноводных и плазмонных мод) структуры "вакуум–пленка–металл". Взаимодействие между ними должно приводить к расщеплению ветвей в окрестности точек их пересечения и к образованию щелей в спектре смешанных поляритонов (аналогично обсуждаемому в работах [40–44, 62, 87]).

Начнем анализ реальных пленок на поверхности металла с супертонких пленок, так как для них легче установить, какие именно дипольно-активные состояния пленки на металле взаимодействуют со светом, и выявить законы этого взаимодействия. Следует отметить, что колебательные поляритоны кристаллов расположены в длинноволновой ИК-области спектра и пленку можно считать супертонкой, если ее оптическая толщина много меньше длины волны возбуждения. С этой точки зрения пленку толщиной около 1 мкм можно считать супертонкой (рассматриваемые нами длины волн больше 30 мкм). Поскольку такая пленка содержит несколько тысяч атомных слоев, для нее справедлива концепция макроскопической диэлектрической проницаемости. Об этом свидетельствует хорошее согласие экспериментальных результатов с теоретическими расчетами в рамках линейной макроскопической кристаллооптики.

Поглощение, отражение и излучение света колебательными состояниями кристаллов и пленок (оптически фононами и плазмонами) хорошо описывается уравнениями Максвелла с соответствующими граничными условиями и материальными уравнениями среды (пространственно-локальными соотношениями между векторами индукции и напряженности электрического поля внутри среды, поскольку в ИК-области спектра эффектами пространственной дисперсии можно пренебречь).

Действительно, если известны диэлектрические проницаемости кристалла (пленки) и окружающих сред, решение макроскопических уравнений Максвелла с обычными граничными условиями для тангенциальной и нормальной составляющих электрического и магнитного полей дает правильный ответ. Такой подход, однако, не позволяет детально выяснить, во что переходит поглощенная световая энергия и какое именно колебательное состояние образца ответственно за тот или иной пик в спектре.

5.1.1. Кулоновские состояния пленки диэлектрика на металлической подложке. Рассмотрим сначала кулоновские нормальные моды структуры "вакуум–пленка–металлическая подложка", т.е. состояния, полученные в пренебрежении взаимодействием с поперечным электромагнитным полем, а затем это взаимодействие учтем [59,

⁷ Обычно рассматриваемые в квантовой оптике моды полости (электромагнитные волны) "заперты" внутри полости. Вероятность их радиационного распада равна нулю. С этой точки зрения интерференционные моды пленки "плохие": их можно считать модами только с конечным временем жизни. Интерференционные моды являются однородно уширенными за счет их радиационного распада.

88]. Как известно [2], уравнения для таких состояний получаются из уравнений Максвелла при формальном устремлении скорости света к бесконечности:

$$\operatorname{div} \mathbf{D} = 0, \quad (20)$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E} = 0. \quad (21)$$

В пренебрежении эффектами пространственной дисперсии материальная связь между векторами индукции $\mathbf{D}$ и напряженности $\mathbf{E}$ электрического поля является локальной:

$$\mathbf{D}(\omega, \mathbf{r}) = \varepsilon(\omega) \mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}), \quad (22)$$

что позволяет подставить в соотношение (22) диэлектрическую проницаемость $\varepsilon(\omega)$, известную для массивного монокристалла (см. формулу (7)) [8].

Решение системы уравнений (20), (21) будем искать в виде

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_q(z) \exp(iqx).$$

Ось x выберем вдоль двумерного волнового вектора $\mathbf{q}$, лежащего в плоскости пленки, ось z — перпендикулярно пленке. Система уравнений (20), (21) распадается на два уравнения: для компонент электрического поля E_x и E_z (p -поляризация) и для компоненты поля E_y (s -поляризация).

s -поляризованные колебания, поперечные моды. Для s -поляризованных состояний из (21) имеем $E_y = 0$, однако поляризация в среде $\mathbf{P} = (\mathbf{D} - \mathbf{E})/4\pi$ может быть отличной от нуля. Из равенства $E_y = 0$ следует, что $P_y \neq 0$, если $\varepsilon(\omega) \rightarrow \infty$. Это означает, что частота мод $\omega = \omega_{\text{ТО}}$. Сама же функция $P_y(z)$ оказывается неопределенной, поскольку при $\omega = \omega_{\text{ТО}}$ любая зависимость $P_y = P_y(z)$ в интервале $-d < z < 0$ согласуется как с условием $E_y = 0$, так и с граничными условиями (нормальная компонента вектора индукции $\mathbf{D}$ и тангенциальная компонента вектора напряженности $\mathbf{E}$ электрического поля для рассматриваемых колебаний всюду равны нулю).

В интервале $-d < z < 0$ произвольную функцию $P_y(z)$ можно представить в виде линейных комбинаций независимых функций:

$$P_y^s(z) = A_n \sin \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad n = 1, 2, \dots, \quad (23)$$

$$P_y^c(z) = B_n \cos \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad n = 0, 1, \dots \quad (24)$$

Система этих мод многократно вырождена, т.е. частоты всех мод равны:

$$\omega_q^s = \omega_q^c = \omega_{\text{ТО}}.$$

Рассматриваемые колебания атомов в пленке не сопровождаются появлением объемного заряда ($\rho = -\operatorname{div} \mathbf{P} = 0$), как и поперечные колебания в массивных монокристаллах. Не возникают при этом и поверхностные заряды. По аналогии с массивным монокристаллом будем называть моды (23) и (24) поперечными модами пленки, отдавая себе, однако, отчет в том, что

однозначное разделение колебаний на продольные и поперечные возможно лишь для однородных систем.

p -поляризованные колебания, поверхностные моды. Рассмотрим сначала моды, для которых $\varepsilon(\omega) \neq 0$ и напряженность электрического поля не обращается тождественно в нуль. Сокращая в (20) на $\varepsilon(\omega)$ в каждой среде, получаем

$$\frac{dE_z}{dz} + iqE_x = 0. \quad (25)$$

Для p -поляризованного поля уравнение (21) дает

$$\frac{dE_x}{dz} - iqE_z = 0. \quad (26)$$

Учитывая, что при $|z| \rightarrow \infty$ поле обращается в нуль, и используя обычные условия сшивки на границах "вакуум-пленка" и "пленка-подложка", находим поле внутри пленки ($-d < z < 0$):

$$E_x(z) = E_0 \left[\cosh(qz) - \frac{1}{\varepsilon(\omega)} \sinh(qz) \right], \quad (27)$$

$$E_z(z) = iE_0 \left[\frac{1}{\varepsilon(\omega)} \cosh(qz) - \sinh(qz) \right], \quad (28)$$

и дисперсионное уравнение для частоты моды:

$$\varepsilon^2(\omega) \tanh(qd) + \varepsilon(\omega)(1 + \varepsilon_m) + \varepsilon_m \tanh(qd) = 0. \quad (29)$$

Уравнение (29) распадается на два соотношения для $\varepsilon(\omega)$, которые при $|\varepsilon_m| \gg 1$ имеют вид

$$\varepsilon(\omega) = -\tanh(qd), \quad (30)$$

$$\varepsilon(\omega) = -\varepsilon_m \coth(qd). \quad (31)$$

Рассмотрим моды, соответствующие этим дисперсионным уравнениям.

1. Подставляя (30) в (27) и (28), для поля в пленке находим

$$E_x(z) = E \sinh[q(z + d)], \quad (32)$$

$$E_z(z) = -iE \cosh[q(z + d)]. \quad (33)$$

Отсюда видно, что при большой толщине пленки ($qd \gg 1$) поле в моде сосредоточено вблизи границы раздела "вакуум-пленка" и экспоненциально убывает в глубь пленки. При $qd \rightarrow \infty$ дисперсионное уравнение (30) переходит в известное [8, 9, 17] уравнение для поверхностного фонона на границе "полубесконечная среда-вакуум" (в пренебрежении запаздыванием):

$$\varepsilon(\omega) = -1. \quad (34)$$

С учетом этого для диэлектрической проницаемости (7) получаем частоту поверхностного фонона ω_S при $d \rightarrow \infty$:

$$\omega_S = \omega_{\text{ТО}} \left(\frac{\varepsilon_0 + 1}{\varepsilon_\infty + 1} \right)^{1/2}. \quad (35)$$

Для произвольной толщины пленки d решение уравнения (30) с диэлектрической проницаемостью (7) имеет вид

$$\omega_{S+}(q, d) = \omega_{\text{ТО}} \left(\frac{\varepsilon_0 + \tanh(qd)}{\varepsilon_\infty + \tanh(qd)} \right)^{1/2}. \quad (36)$$

Рассматриваемый тип колебаний не связан с объемными зарядами (так как $\text{div } \mathbf{E} = 0$ при $-d < z < 0$), однако сопровождается появлением поверхностных зарядов на границах пленки:

$$\rho_{S+} = iE \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{4\pi} \cosh(qd), \quad z = 0, \quad (37)$$

$$\rho_{S+} = -iE \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{4\pi}, \quad z = -d. \quad (38)$$

Будем называть такие колебания поверхностной модой [16, 33, 59, 88]. Как показано в разделе 5.1.4, поверхностные моды с $q < \omega/c$ взаимодействуют с поперечным электромагнитным полем и являются нестационарными (радиационными).

Отметим весьма существенный для интерпретации экспериментальных результатов факт, что в соответствии с (30) при $qd \rightarrow 0$ диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega) \rightarrow 0$, а частота поверхностной моды границы раздела "вакуум-пленка" определяется соотношением

$$\omega_{S+}(qd) \rightarrow \omega_{LO} = \omega_{TO} \left(\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty} \right)^{1/2},$$

где ω_{LO} — частота продольного оптического фонона в массивном кристалле. Кроме того, в тонкой пленке ($qd \ll 1$) электрическое поле поверхностной моды направлено почти перпендикулярно поверхности пленки и практически однородно по ее толщине [24, 25, 33].

2. Рассмотрим моду, которая соответствует дисперсионному уравнению (31). В это уравнение явно входит диэлектрическая проницаемость металлической подложки. Идеально проводящей подложке отвечает предел $|\varepsilon_m| = \infty$, при этом из (31) следует, что $\varepsilon(\omega) = \infty$, и из (7) получаем

$$\omega_{S-}(qd) = \omega_{TO}.$$

Нас интересует также распределение поля в рассматриваемой моде. Из конечности вектора индукции $\mathbf{D} = \varepsilon(\omega) \mathbf{E}$ в пленке следует, что при $|\varepsilon_m| \rightarrow \infty$ электрическое поле в пленке стремится к нулю, однако значение поляризации среды $\mathbf{P} = (\varepsilon(\omega) - 1) \mathbf{E}/4\pi$ остается конечным. Находя его с помощью (27) и (28) при конечном значении $|\varepsilon_m|$ и выполняя переход к пределу $|\varepsilon_m| \rightarrow \infty$, для поляризации $\mathbf{P}$ данной моды получаем

$$P_x(z) = P \cosh(qz), \quad (39)$$

$$P_z(z) = -iP \sinh(qz). \quad (40)$$

Отсюда видно, что при большой толщине пленки ($qd \gg 1$) колебание сосредоточено в области максимально возможных в пленке значений $|z|$, т.е. на границе с металлом ($z = -d$), и экспоненциально затухает при удалении от этой границы.

Таким образом, мы имеем дело со второй поверхностной модой структуры "вакуум-пленка-подложка". Заметим, что в тонкой пленке ($qd \ll 1$) поляризация $\mathbf{P}$ этой моды направлена почти параллельно поверхности пленки и практически постоянна по ее толщине.

Конечная проводимость металлической подложки приводит к тому, что частота поверхностной моды может несколько отличаться от ω_{TO} и появляется ее слабая зависимость от волнового вектора $\mathbf{q}$ и толщины

пленки d . При $|\varepsilon_m| \gg 1$ из уравнения (31) находим

$$\omega_{S-}(q, d) = \omega_{TO} \left[1 + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{2\varepsilon_m} \tanh(qd) \right]. \quad (41)$$

Отсюда явно следует, что в тонкой пленке сдвиг частоты, пропорциональный $\text{Re } \varepsilon_m^{-1}$, и затухание моды, пропорциональное $\text{Im } \varepsilon_m^{-1}$, оказываются линейно зависящими от d и q [39, 40, 90].

p-поляризованные колебания, продольные моды. Рассмотрим теперь *p*-поляризованные моды, отвечающие условию

$$\varepsilon(\omega) = 0. \quad (42)$$

Из уравнения (21) следует уравнение (26), справедливое как в вакууме, так и в пленке. Уравнение же (20) при условии (42) выполняется внутри пленки тождественно.

Из граничного условия $E_z(0 + \delta) = \varepsilon(\omega) E_z(0 - \delta)$ и уравнений (25) и (26) получаем, что поле в вакууме тождественно равно нулю. Поэтому граничное условие для поля в пленке $E_x(0 - \delta) = 0$. Последнее условие вместе с соотношением $E_x(-d) = 0$ определяет вид собственных мод в пленке:

$$E_x^{(n)}(z) = C_n \sin \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad (43)$$

$$E_z^{(n)}(z) = -iC_n \frac{\pi n}{d} \cos \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad (44)$$

где $n = 1, 2, \dots$

Используя (42) и (7), находим частоту мод, соответствующую уравнениям (43) и (44):

$$\omega = \omega_{TO} \left(\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty} \right)^{1/2} \equiv \omega_{LO}.$$

Эти колебания сопровождаются появлением объемного и поверхностного зарядов:

$$\rho(q) = -i \frac{C_n}{4\pi} \left(q + \frac{\pi^2 n^2}{qd^2} \right) \sin \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad (45)$$

$$\rho_S(q) = i \frac{C_n n}{4qd} \begin{cases} (-1)^n, & z = 0, \\ 1, & z = -d. \end{cases} \quad (46)$$

Свойства мод (45) и (46) близки к свойствам продольных мод (фононов) монокристалла, а их частоты вообще совпадают. Будем называть эти моды продольными модами пленки.

p-поляризованные колебания, поперечные моды. Рассмотрим, наконец, *p*-поляризованные моды пленки, для которых электрическое поле $\mathbf{E}$ тождественно равно нулю (обсуждаются кулоновские моды, т.е. без учета запаздывания). Поляризация среды $\mathbf{P}$ и вектор индукции $\mathbf{D}$ могут быть отличны от нуля. Из условия $\mathbf{D} = \varepsilon(\omega) \mathbf{E} \neq 0$ при $\mathbf{E} \equiv 0$ следует, что $\varepsilon(\omega) = \infty$. Частоты исследуемых мод совпадают с частотой поперечных фононов монокристалла:

$$\omega = \omega_{TO}.$$

Из (20) для поляризации $\mathbf{P}$ получаем

$$iqP_x(z) + \frac{dP_z(z)}{dz} = 0. \quad (47)$$

Уравнение (21) для рассматриваемых мод является, очевидно, тождеством. Из условия непрерывности тан-

генциальной компоненты электрического поля $\mathbf{E}$ на границе "вакуум – пленка" следует, что компоненты E_x и, следовательно, E_z в вакууме равны нулю. Из равенства $E_z = 0$ в вакууме и условия непрерывности нормальной компоненты вектора индукции $\mathbf{D}$ вытекает граничное условие $P_z(0) = 0$. При конечном значении диэлектрической проницаемости ε_m металлической подложки можно аналогично получить и второе граничное условие для P_z : $P_z(-d) = 0$, которое сохраняет свой вид и при переходе к случаю идеально проводящей подложки ($|\varepsilon_m| \rightarrow \infty$).

Уравнение (47) и оба граничных условия определяют вид функции $\mathbf{P}(z)$:

$$P_x(z) = \sum_n C_{n,q} \cos \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right], \quad (48)$$

$$P_z(z) = -i \frac{qd}{\pi} \sum_n \frac{C_{n,q}}{n} \sin \left[\frac{\pi n}{d} (z + d) \right]. \quad (49)$$

Отсюда видно, что функция $\mathbf{P}(z)$ является линейной суперпозицией независимых мод. Частота каждой из мод (48) и (49), как показано выше, равна ω_0 . Эти колебания не сопровождаются появлением ни поверхностного заряда, так как $P_z(0) = P_z(-d) = 0$, ни объемного заряда в силу (47). Естественно назвать эти моды поперечными.

Взаимодействие найденных кулоновских мод с поперечным электромагнитным полем приводит к образованию поверхностных и объемных поляритонов структуры "вакуум – пленка – металлическая подложка", являющихся собственными состояниями структуры. Состояния с $q < \omega/c$ оказываются радиационными и обладают конечным радиационным временем жизни [15, 16], а состояния с $q > \omega/c$ — нерadiационными [13, 16]. Взаимодействие поперечных кулоновских мод с электромагнитным полем приводит к изменению их закона дисперсии. Продольные же моды (продольные фононы) не взаимодействуют с электромагнитным полем, и учет запаздывания не меняет их закона дисперсии (состояния) [12–17, 33].

5.1.2. Дисперсия поверхностных поляритонов. В случае пленки на металлической подложке в зависимости от проводимости подложки могут наблюдаться либо поверхностный поляритон ω_{S+} , связанный с кулоновской модой (36) границы раздела "вакуум – пленка", либо (в дополнение к нему) поверхностный поляритон ω_{S-} вблизи границы раздела "пленка – металл", связанный с кулоновской модой (41).

Как показано далее, возможность наблюдения поляритона ω_{S-} обусловлена конечной проводимостью подложки. В соответствии с (41) для идеально проводящей металлической подложки частота ω_{S-} поверхностного поляритона оказывается равной частоте ω_0 поперечных оптических фононов пленки, и без дополнительного анализа невозможно определить, с какими состояниями связан этот пик в спектре излучения: с излучением поверхностного поляритона границы раздела "пленка – металл" или с излучением поперечных мод пленки, рассмотренных в разделе 5.1.1.

Для получения дисперсионного уравнения поверхностных поляритонов с учетом запаздывания воспользуемся системой уравнений Максвелла, дополненной в каждой из трех сред (включая вакуум над пленкой)

локальной материальной связью $D(\omega) = \varepsilon(\omega) E(\omega)$ с соответствующими значениями диэлектрической проницаемости каждой среды. Решение расширенной системы уравнений для p -поляризованного электромагнитного поля будем искать в виде

$$E(r) = E(z) \exp(iqx),$$

причем потребуем, чтобы при $z \rightarrow \infty$ поле стремилось к нулю.

Сшивая поля на границах раздела сред $z = -0$ и $z = -d$, находим дисперсионное уравнение для поверхностных поляритонов [39, 90]:

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\kappa}{2} \coth(\kappa d) \left(\frac{1}{\kappa_0} + \frac{\varepsilon_m}{\kappa_m} \right) \times \\ \times \left[-1 \pm \left(1 - \frac{4\varepsilon_m \tanh^2(\kappa d)}{\kappa_0 \kappa_m (1/\kappa_0 + \varepsilon_m/\kappa_m)^2} \right)^{1/2} \right], \quad (50)$$

где $\varepsilon(\omega)$ и ε_m — диэлектрические проницаемости пленки и подложки,

$$\kappa = \sqrt{q^2 - k_0^2 \varepsilon(\omega)}, \quad \kappa_0 = \sqrt{q^2 - k_0^2}, \\ \kappa_m = \sqrt{q^2 - k_0^2 \varepsilon_m}, \quad \operatorname{Re} \kappa > 0, \quad \operatorname{Re} \kappa_m > 0.$$

Отметим, что уравнение (50) совпадает с уравнением (4), и оба они совпадают с уравнением (30), если в (50) и (4) скорость света стремится к бесконечности. Таким образом, уравнение (50) описывает поляритоны, отвечающие кулоновским модам с законом дисперсии (30). Учет запаздывания меняет не только дисперсию поляритонов, но и характеристики поля в пленке, сопровождающего эти моды. Поле поверхностного поляритона в пленке с учетом запаздывания имеет вид

$$E_x \propto i \frac{\kappa}{q} \left[\frac{1}{\varepsilon(\omega)} \sinh(\kappa z) - \frac{\kappa_0}{\kappa} \cosh(\kappa z) \right], \quad (51)$$

$$E_z \propto \frac{1}{\varepsilon(\omega)} \cosh(\kappa z) - \frac{\kappa_0}{\kappa} \sinh(\kappa z), \quad (52)$$

причем в выражения для полей (51) и (52) вместо $\varepsilon(\omega)$ следует подставить соответствующее решение уравнения (50).

В ИК-области спектра значение $|\varepsilon_m|$ для среды с металлической проводимостью велико ($|\varepsilon_m| \gg |\kappa_m| \gg 1$) и для поверхностных волн второй член в квадратных скобках уравнения (50) мал по сравнению с единицей. Поэтому, разлагая корень в (50), для частот ω_{S+} и ω_{S-} поверхностных поляритонов получаем уравнения

$$\varepsilon(\omega_{S+}) \approx -\frac{\kappa}{\kappa_0} \tanh(\kappa d) \left[1 - \frac{\kappa_m}{\varepsilon_m \kappa_0} \left(1 + \frac{\tanh^2(\kappa d)}{4} \right) \right], \quad (53)$$

$$\varepsilon(\omega_{S-}) \approx -\frac{\varepsilon_m \kappa}{\kappa_m} \coth(\kappa d). \quad (54)$$

При выводе уравнения (53) сохранено малое (в первом порядке) слагаемое, учитывающее конечную проводимость подложки (второй член в квадратных скобках). Из уравнения (53) следует, что в случае тонкой пленки диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega_{S+}) \sim qd$

мала, а частота $\omega_{S+}(q)$ близка к частоте ω_{LO} при $q > \omega/c$. Пренебрегая вторым членом в круглых скобках (53) и рассматривая только длины волн поверхностных поляритонов, для которых $qd \ll 1$, находим упрощенное дисперсионное уравнение для ω_{S+} :

$$\varepsilon(\omega_{S+}) \approx \frac{q^2 d}{\sqrt{q^2 - k_0^2 - k_0^2 d}}. \quad (55)$$

Подставляя в уравнения (51) и (52) значение $\varepsilon(\omega_{S+})$ из (53), находим поле в пленке, соответствующее моде (55):

$$E_x(z) \propto i \frac{\kappa_0}{q} \sinh[\kappa(z+d)], \quad (56a)$$

$$E_z(z) \propto -\frac{\kappa_0}{\kappa} \cosh[\kappa(z+d)]. \quad (56b)$$

Отсюда следует, что в данной моде поле имеет наибольшее значение на границе раздела "вакуум – пленка" и экспоненциально убывает в глубь пленки.

В тонкой пленке ($qd \ll 1$) неоднородность поля по толщине весьма мала, электрическая компонента поля направлена практически перпендикулярно пленке, так как $|E_z| \gg |E_x|$. Диссипативные процессы в металле учитываются мнимой частью ε_m , поэтому член с κ_m/ε_m в (53) позволяет определить металлическое тушение поверхностного поляритона [39, 40]. Соответствующее увеличение полуширины линии γ_m за счет металлического тушения является величиной порядка

$$|\omega_{S+} - \omega_{LO}| \operatorname{Im} \frac{\kappa_m}{\varepsilon_m}.$$

Поскольку $\operatorname{Im}(\kappa_m/\varepsilon_m) \ll 1$, для "хорошего" металла значение γ_m для поляритона ω_{S+} пренебрежимо мало.

В отличие от (53) решение уравнения (54) дает закон дисперсии поверхностного поляритона границы раздела "пленка – подложка" $\omega_{S-}(q)$, на который сильно влияют свойства подложки. Для идеально проводящей металлической подложки ($\varepsilon_m \rightarrow \infty$) из уравнения (54) следует, что $\omega_{S-}(q) = \omega_{TO}$. С ухудшением "металлических" свойств подложки разность $|\omega_{S-}(q) - \omega_{TO}|$ растет. Распределение поля в пленке, связанное с этой модой, получается при подстановке в соотношения (56) диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega_{S-})$, определяемой уравнением (54). При $|\varepsilon_m| \gg 1$ имеем

$$E = \left(\cosh \kappa z, 0, -i \frac{q}{\kappa} \sinh(\kappa z) \right). \quad (57)$$

Как видно из (57), для этих колебаний атомов поле в пленке имеет максимальное значение на границе "пленка – подложка", т.е. при $z = -d$.

Дисперсии кулоновских мод пленки, рассмотренных в разделе 5.1.1, и поверхностного поляритона металла без учета взаимодействия между ними представлены на рис. 10а. Учет этого взаимодействия приводит к расщеплению поверхностного поляритона металла. Результирующие дисперсионные кривые поляритонов структуры "вакуум – пленка – металл" показаны на рис. 10б. Ветви поляритонов, попадающие в радиационную область ($\omega - q$ -диаграммы, т.е. состояния с $q < k_0$, рассматриваются в разделе 5.1.4. Дисперсия нерадикационных поверхностных поляритонов при $q > k_0$ достаточно легко восстанавливается из эксперимента (см. рис. 4в для массивных монокристаллов и рис. 13 для пленок).

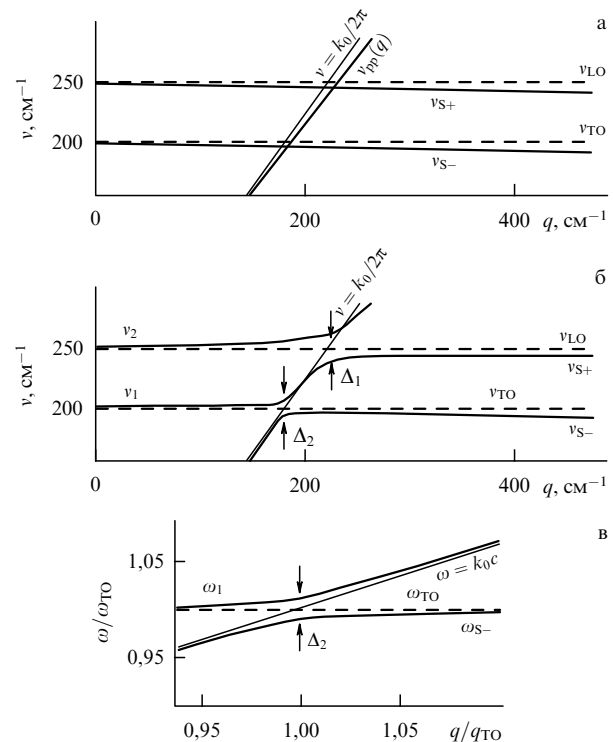


Рис. 10. Иллюстрация дисперсионных соотношений для колебательных состояний пленки ZnSe на металле [32, 33]: (а) дисперсии кулоновских мод v_{S+} и v_{S-} и поверхностного плазмон-поляритона металла $v_{pp}(q)$ без учета их взаимодействия; (б) взаимодействие между кулоновскими модами пленки и поляритоном подложки учтено; (в) дисперсионные кривые в окрестности резонансной щели Δ_2 .

Значительно труднее восстановить из эксперимента дисперсионные кривые поляритонов при $q \approx k_0$, поскольку в этой области значений волновых векторов призма НПВО сильно возмущает поляритон структуры [31, 79, 83]. Это возмущение обусловлено возникновением радиационного распада "нерадиационных" поляритонов пленки на подложке из-за призмы над пленкой и определяется толщиной зазора между призмой и пленкой. На рисунке 11 представлены рассчитанные по формуле (6) спектры поглощения термостимулированного излучения структуры "призма из кремния – зазор – пленка ZnSe толщиной 1 мкм – алюминиевая подложка" для различных углов излучения при толщине зазора 3, 40 и 60 мкм. Видно, как "нерадиационные" поверхностные поляритоны при $\varphi > \varphi_c = 17^\circ$ переходят в радиационные поверхностные поляритоны при $\varphi < \varphi_c$.

Спектры на рис. 11а отвечают слабо возмущенным поверхностным поляритонам при $\varphi > 30^\circ$, параллельная оси частот полоса поглощения при $\varphi \approx 17^\circ$ соответствует поглощению света поверхностным плазмоном металла. При пересечении этой полосы с кулоновскими модами ω_{S-} и ω_{S+} (рис. 10а) видно их резонансное взаимодействие с возрастанием интенсивности поглощения и возникновением слабо выраженной щели в области ω_{S+} . Спектры на рис. 11б отвечают слабо возмущенным поверхностным поляритонам при $\varphi > 20^\circ$. Формирующиеся в окрестности щелей Δ_1 и Δ_2 поляритонные ветви соответствуют рис. 10б. Спектры на рис. 11в можно рассматривать как слабо возмущенные "нерадиационные" поляритоны при $q \approx k_0$, т.е. при $\varphi \geq 17^\circ$.

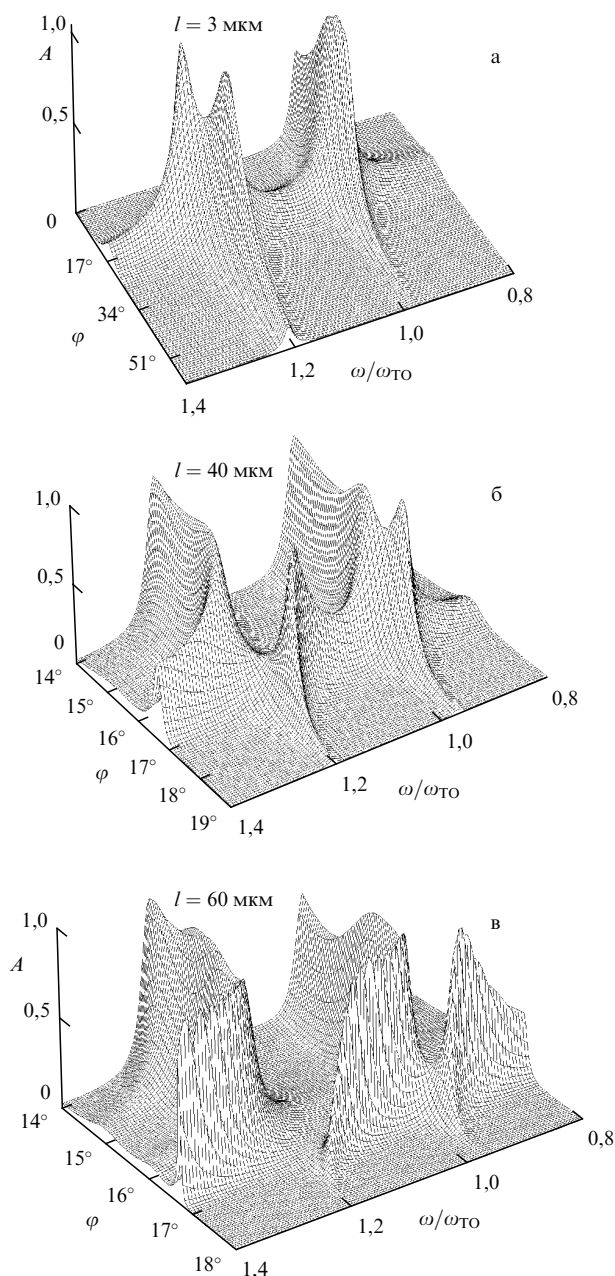


Рис. 11. Спектры поглощения термостимулированного излучения структуры "Si-призма–зазор–пленка ZnSe (1 мкм)–Al-подложка" при различной толщине зазора l [33].

При $\varphi < 17^\circ$ на рис. 11б и 11в хорошо видны поведение ветвей радиационных поляритонов (см. разделы 5.1.3 и 5.1.4), а также появление щелей Δ_1 и Δ_2 в спектрах поверхностных поляритонов. Частотно-угловая зависимость максимумов полос поглощения на рис. 11в соответствует дисперсионным кривым на рис. 10б и 10в в области резонанса поверхностных кулоновских мод пленки на металлической подложке с поверхностным плазмон-поляритоном подложки. При толщине зазора между призмой и пленкой полупроводника на металле, большей чем длина волны, как это имеет место на рис. 11в, в радиационной области ($\varphi < 17^\circ$) появляются полосы поглощения интерференционными модами зазора между призмой и пленкой. Относительно слабые полосы поглощения при $\varphi \approx 15^\circ$ и

$\varphi \approx 16^\circ$ в высокочастотной области спектра на рис. 11в имеют ту же природу, что и полосы поглощения на рис. 6.

5.1.3. Нерадиационные поляритоны. Экспериментальные спектры термостимулированного излучения поверхностных поляритонов пленки ZnSe на различных металлических подложках получались так же, как и для поверхностных поляритонов массивного монокристалла — с использованием полуцилиндрической призмы НПВО из кремния [33, 39, 83, 90]. На рисунках 12а и 12б представлены экспериментальные и рассчитанные спектры p -поляризованного излучения поверхностных поляритонов пленки ZnSe толщиной 1 мкм на алюминиевом зеркале при углах излучения $\varphi = 18^\circ$ и $\varphi = 30^\circ$. Спектры термостимулированного излучения структуры "призма из кремния–зазор–пленка ZnSe–алюминиевое зеркало" для угла излучения $\varphi = 20^\circ$, большего критического ($\varphi_c = 17^\circ$), при различной толщине зазора между пленкой и призмой, задаваемой толщиной майларовой пленки, показаны на рис. 12в. Толщина пленки ZnSe и алюминиевого зеркала была около 1 мкм, при этом толщина алюминиевого зеркала была много больше толщины скин-слоя в интересующем нас диапазоне частот.

Численный расчет спектров излучения структуры с призмой выполнялся по формуле (6). Параметры, входя-

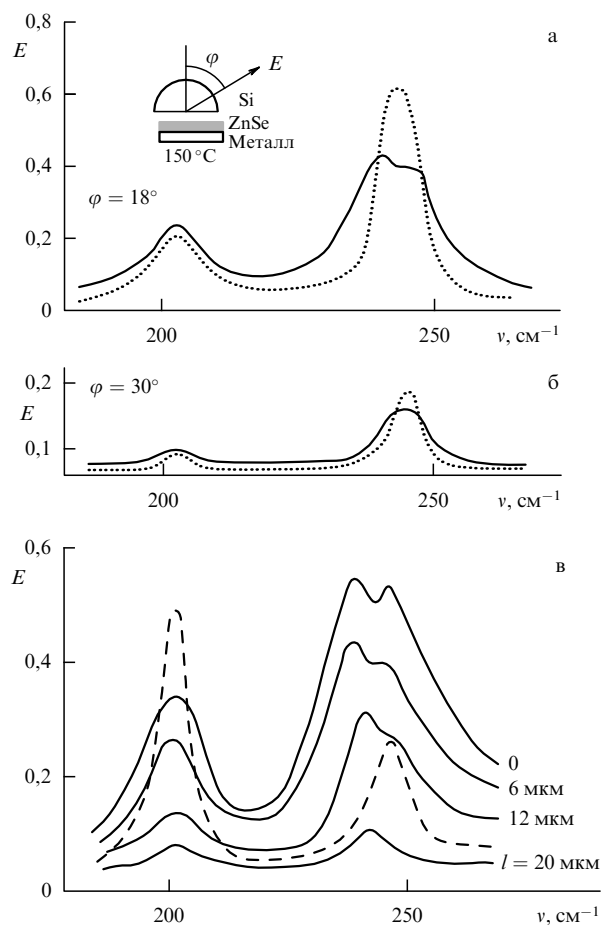


Рис. 12. Спектры p -поляризованного излучения "нерадиационных" поверхностных поляритонов пленки ZnSe (1 мкм) на Al-зеркале: (а), (б) при двух углах излучения (сплошные кривые — эксперимент, пунктирные — расчет) [88]; (в) при ($\varphi = 20 \pm 2^\circ$) и различной толщине зазора l (штриховая кривая — излучение пленки без призмы) [39, 90].

щие в (7) и (8), брались из независимых измерений спектров излучения пленки ZnSe на алюминиевом зеркале (без призмы) [73]. Рассчитанные спектры излучения структуры, нормированные на излучение абсолютно черного тела, измеренное в идентичных условиях, качественно хорошо согласуются с экспериментальными данными. Некоторое непринципиальное отличие расчета с экспериментом связано со следующими неустраняемыми экспериментальными погрешностями.

1) Материал полуцилиндрической призмы из кремния обладал достаточно большой собственной неселективной излучательной способностью: интенсивность излучения структуры "призма-зазор-зеркало" составляла около 80 % интенсивности излучения структуры "призма-зазор-пленка-зеркало".

2) Осветительная оптическая схема спектрометра FIS-21, который использовался в экспериментах, не была предназначена для подобных исследований: из-за больших aberrаций в схеме (кома, астигматизм) нельзя было обеспечить параллельность светового пучка в призме НПВО с погрешностью менее $\pm 2^\circ$. Погрешность в определении угла излучения φ вызывала погрешность в определении волнового вектора $q = k_0 n_{\text{Si}} \sin \varphi$ (n_{Si} — показатель преломления призмы), которая и приводила к уширению полосы излучения, особенно при углах излучения $\varphi \approx \varphi_c = 17^\circ$, когда $q \approx k_0$.

3) Толщина зазора не измерялась, а полагалась равной толщине майларовой пленки.

Наилучшее согласие расчета с экспериментом (рис. 12а и 12б) достигалось при использовании в качестве подгоночного параметра толщины зазора l . Отклонение значения l от заданного в эксперименте достигало почти 50 %. Это не удивляет, поскольку в условиях термостата именно толщина зазора не поддается в вакууме надежному контролю. Кроме того, в экспериментальных спектрах производилась небольшая коррекция нулевой кривой (до уровня фона рассчитанных спектров). Восстановленные из экспериментальных данных дисперсионные кривые поверхностных поляритонов пленки ZnSe, напыленной на металлическую подложку, а также результаты численного расчета дисперсии по формулам (53) и (54) представлены на рис. 13. Видно хорошее согласие расчета с экспериментом, особенно для дисперсионных кривых.

В s -поляризованном излучении наблюдается только одна полоса: вблизи частоты ω_{TO} монокристалла [31, 92]. В спектрах p -поляризованного термостимулированного излучения поверхностными поляритонами пленки ZnSe толщиной 1 мкм на подложке из хрома высокочастотный пик практически остается таким же, как и в спектрах излучения такой же пленки ZnSe на алюминиевой подложке [33, 39, 88–90]. Этот пик соответствует поверхностному поляритуonu границы раздела "вакуум-пленка", и, как следует из эксперимента и теории, его частота слабо зависит от диэлектрической проницаемости подложки. Действительно, для тонкой пленки ($qd \ll 1$) при $q > k_0$ и $|\varepsilon_m| \gg 1$ из уравнения (53) следует [39, 90]

$$\omega_{\text{S}+} = \omega_{\text{LO}} \left(1 - qd \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{2\varepsilon_0 \varepsilon_\infty} \operatorname{Re} \frac{\varepsilon_m(\omega)}{1 + \varepsilon_m(\omega)} \right). \quad (58)$$

Низкочастотный пик в спектрах p -поляризованного излучения пленки ZnSe на хrome при $q > k_0$ соответ-

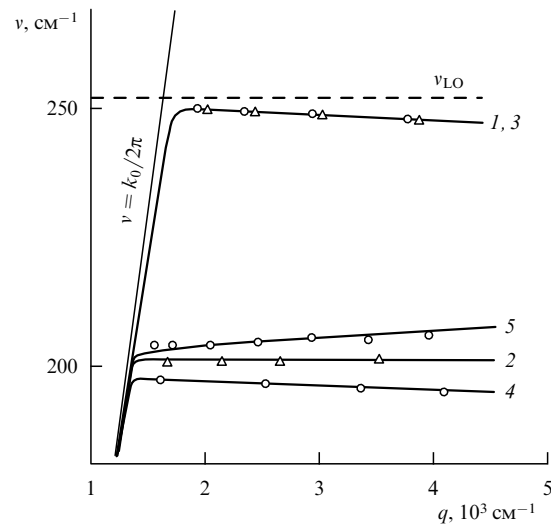


Рис. 13. Дисперсия поверхностных ТМ-поляритонов пленки ZnSe (1 мкм) на металлической подложке при $q > k_0$: 1 и 2 — $v_{\text{S}+}$ - и $v_{\text{S}-}$ -ветви для пленки ZnSe на алюминии, 3 и 4 — $v_{\text{S}+}$ - и $v_{\text{S}-}$ -ветви для пленки ZnSe на хrome, 5 — $v_{\text{S}-}$ -ветвь для пленки ZnSe на тонком (меньше 0,1 мкм) Al-зеркале [39]; сплошные кривые — расчет, точки — эксперимент [39, 90]. Ветвь 2 совпадает с частотой ν_{TO} .

ствует поверхностному поляритуonu границы раздела "пленка-металл", т.е. интерфейсному поляритуonu. Его дисперсия сильно зависит от проводимости подложки. Частота этого поляритона для тонкой пленки ZnSe на хrome при $q > k_0$ отщепляется от ω_{TO} и совпадает с ω_{TO} для пленки ZnSe на алюминии (рис. 13) [39, 88, 90].

Как отмечалось выше, расщепление $|\omega_{\text{S}-} - \omega_{\text{TO}}|$ определяется проводимостью подложки и зависимостью от d и q . Используя $\varepsilon(\omega)$ для ZnSe в виде (7), при $q > k_0$ и $|\varepsilon_m| \gg 1$ из уравнения (54) имеем [90]

$$\omega_{\text{S}-} = \omega_{\text{TO}} \left[1 + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{2} \operatorname{Re} \frac{\tan(qd)}{\varepsilon_m} \right], \quad (59)$$

что согласуется с выражением (41), полученным без учета запаздывания для любого значения q . Таким образом, для тонкой пленки на металлической подложке сдвиг частоты интерфейсного поляритона $|\omega_{\text{S}-} - \omega_{\text{TO}}|$ и его затухание, пропорциональное $\operatorname{Im} \varepsilon_m^{-1}(\omega)$, оказываются линейно зависящими от d и q .

Аналогичная линейная зависимость разности частот $|\omega_{\text{LO}} - \omega_{\text{S}+}|$ от q и d следует из уравнения (58) и эксперимента для верхней ветви поверхностного поляритона. Восстановленные из экспериментов [39, 88, 90] дисперсии поверхностных поляритонов структуры "вакуум-пленка ZnSe-хром" при $q > k_0$ представлены на рис. 13 вместе с результатами численного расчета дисперсионных кривых по формуле (50). Видно хорошее согласие расчета с экспериментом.

Отрицательный наклон обеих дисперсионных ветвей поверхностных поляритонов структуры "вакуум-пленка-хром" означает, что для определенной частоты ω в области отрицательного наклона дисперсионной ветви существуют по две поверхностные волны с разными $q = 2\pi/\lambda$, отвечающие различным λ . При этом для одной поверхностной волны с данной частотой ω (для каждой из ветвей $\omega_{\text{S}+}(\omega)$ или $\omega_{\text{S}-}(\omega)$) волновой вектор $q_1 \approx k_0 [1 + \operatorname{Re}(1/2\varepsilon_m(\omega))]$ слабо отличается от k_0 , а для другой с той же частотой ω волновой вектор $q_2 \gg k_0$.

Поверхностные волны с волновым вектором q_1 — обычные поверхностные поляритоны, а с волновым вектором q_2 — добавочные поверхностные поляритоны, существование которых было предсказано В.М. Аграновичем (см., например, обзоры [9, 40]).

Добавочные поверхностные поляритоны возникают из-за резонансного взаимодействия дипольно-активного колебания с частотой ω_0 в тонкой пленке с поверхностным плазмон-поляритон металла. Этот резонанс приводит к расщеплению ветви обычного поверхностного поляритона металла, т.е. к возникновению щели на частоте ω_0 в его спектре, ширина которой пропорциональна $\sqrt{d/\lambda}$ [5, 9, 40, 62]. В случае тонкой пленки ZnSe на металле ширина такой щели для верхней ветви поверхностного поляритона с $\omega_0 = \omega_{s+} \approx \omega_{LO}$ определяется выражением [32, 40]

$$\Delta_1 = \omega_{LO} \left(2d \operatorname{Re} \frac{\omega_{LO} \varepsilon_m(\omega)(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)}{c \varepsilon_0 \varepsilon_\infty (1 + \varepsilon_m(\omega))} \right)^{1/2}. \quad (60)$$

Как видно из (58) и (60), ширина щели Δ_1 практически не зависит от диэлектрической проницаемости металлической подложки. В случае пленки ZnSe толщиной 1 мкм на алюминии ширина щели $\Delta_1 \approx 13 \text{ см}^{-1}$.

Для нижней ветви поверхностного поляритона с $\omega_0 = \omega_{s-} \approx \omega_{TO}$ ширина щели [32, 40]

$$\Delta_2 = \omega_{TO} \left(2d \operatorname{Re} \frac{\omega_{TO}(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)}{c(1 + \varepsilon_m(\omega))} \right)^{1/2}. \quad (61)$$

Видно, что ширина щели Δ_2 зависит от $\varepsilon_m(\omega)$. В случае пленки ZnSe толщиной 1 мкм на алюминии ширина щели $\Delta_2 \approx 2 \text{ см}^{-1}$, на хrome $\Delta_2 \approx 10 \text{ см}^{-1}$. Значения Δ_1 и Δ_2 , рассчитанные по формулам (60) и (61), хорошо согласуются с экспериментом.

Отметим, что щели в спектре поляритона рассматриваемой структуры образуются только для p -поляризованных (ТМ) поверхностных поляритонов. Для s -поляризованных (ТЕ) поверхностных поляритонов структуры аналогичные щели в их спектрах отсутствуют [92].

Если в структуре "вакуум–пленка ZnSe–пленка металла на диэлектрической подложке" толщина пленки металла значительно меньше толщины скин-слоя, то, как следует из спектров излучения такой структуры в режиме обращенного НПВО, отщепление интерфейсного поляритона ω_{s-} от ω_{TO} происходит в высокочастотную область [39, 88, 90]. Это означает, что эффективная диэлектрическая проницаемость тонкой металлической пленки в исследуемом спектральном диапазоне положительна (а не отрицательна, как обычно) и не описывается больше формулой Друде.

Используя формулу (59), по величине и знаку отщепления интерфейсного поляритона ω_{s-} от ω_{TO} (полученным из экспериментальных данных) можно оценить величину и знак $\operatorname{Re} \varepsilon_m(\omega)$ тонкой пленки алюминия, расположенной между пластиной из плавленого кварца и пленкой ZnSe. В нашем случае величина $\operatorname{Re} \varepsilon_m(\omega)$ оказалась положительной и почти в 200 раз меньше, чем у толстой свеженапыленной алюминиевой пленки [39]. Такое изменение диэлектрической проницаемости тонкой пленки алюминия (около 50 нм) кажется удивительным, поскольку большая положительная диэлектрическая проницаемость пленок металла получается в случае, когда пленки имеют гранулярную структуру с очень слабой перколяционной проводимостью [92].

Обычно подобные свойства наблюдаются у пленок толщиной в несколько нанометров, приготовленных методом термического испарения из расплава. При радиочастотном магнетронном распылении металлов, использованном в нашем случае, как правило, получаются однородные сплошные пленки с металлической проводимостью, толщина которых порядка нанометра [93]. При отжиге структуры тонкая пленка алюминия превращается, по-видимому, из сплошной в островковую.

Из эксперимента и теории следует, что расщепление $|\omega_{TO} - \omega_{s-}|$ возрастает с уменьшением величины $|\operatorname{Re} \varepsilon_m(\omega)|$, т.е. с ухудшением металлических свойств подложки. Если в качестве подложки использовать вырожденный полупроводник с $\omega_p > \omega_{TO}$ пленки, то расщепление $|\omega_{TO} - \omega_{s-}|$ должно быть значительно больше, чем в рассмотренных выше случаях пленки на металле. В экспериментах, выполненных в работе [42] для структуры "вакуум–пленка ZnSe–вырожденный InSb", наблюдались три обыкновенных связанных плазмон-фоонных поляритона: первый в области $\omega_I > \omega_{LO}$, второй в области $\omega_{TO} > \omega_{II} > \omega_{LO}$, третий в области $\omega_{III} < \omega_{TO}$. При этом добавочные поверхностные поляритоны не наблюдались.

Для пленки на диэлектрической подложке с $\varepsilon_m > 1$ картина несколько сложнее, поскольку часть дисперсионных ветвей поверхностного и интерфейсного поляритонов пленки попадают в область существования объемных (волноводных) поляритонов подложки. Взаимодействие этих двух семейств возбуждений граничащих сред приводит к тому, что в области частот $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$ образуются четыре ветви (вместо двух) смешанных поверхностных поляритонов (см., например, [47, 94]).

Таким образом, экспериментальные результаты подтверждают теоретические расчеты и свидетельствуют о сильном влиянии проводимости подложки на характеристики p -поляризованных поверхностных поляритонов многослойных структур. Как следует из работы [92], s -поляризованные поляритоны появляются в случае, если величина $|\operatorname{Re} \varepsilon_m(\omega)|$ не очень большая. Кроме того, экспериментальные данные, представленные на рис. 13, показывают, что поперечные кулоновские моды, рассмотренные в разделе 5.1.1, не проявляются в эксперименте при $q > k_0$. В окрестности частоты ω_{TO} имеется только пик излучения, принадлежащий интерфейсному поляритону ω_{s-} , и отсутствуют явно выраженные пики на частоте поперечных кулоновских мод ω_{TO} . Такое заключение можно сделать, исходя из того факта, что частота интерфейсного поляритона ω_{s-} зависит от диэлектрической проницаемости подложки, а частоты поперечных кулоновских мод, как объемных состояний пленки, не зависят от нее. Их отсутствие в спектрах связано, по-видимому, с сильным металлическим тушением излучения [40].

5.1.4. Радиационные поляритоны. В разделе 5.1.1 найдены нормальные кулоновские моды структуры "вакуум–пленка–металл", т.е. состояния, полученные в пренебрежении взаимодействием с поперечным электромагнитным полем. Гамильтониан этого взаимодействия имеет вид [59]

$$H_{\text{int}} = - \int \hat{P} \hat{E}^\perp dV, \quad (62)$$

где $\mathbf{P}$ — поляризация, соответствующая кулоновским модам структуры, $\mathbf{E}^\perp$ — поперечное электромагнитное поле свободных фотонов.

Взаимодействие (62) приводит, вообще говоря, к радикальному изменению собственных мод пленки за счет смешивания их с поперечным полем (поляритонный эффект). В задаче о поглощении падающей поперечной электромагнитной волны учет многократных процессов реабсорбции, описываемый гамильтонианом (62), также существен. В частности, он приводит к перенормировке поля падающей волны внутри пленки в соответствии с формулами Френеля. Однако при уменьшении толщины пленки роль процессов высших порядков по взаимодействию (62) убывает. В пленке с оптической толщиной, малой по сравнению с длиной волны поперечного поля, можно ограничиться учетом взаимодействия (62) в низшем порядке.

Исследуем поглощение света тонкой пленкой в структуре "вакуум — пленка — металл", а именно выясним относительный вклад в поглощение света каждой из найденных в разделе 5.1.1 кулоновских мод и получим зависимость поглощения каждой кулоновской модой от толщины пленки и угла падения света.

Конечно, поглощение и излучение света пленкой на подложке можно определить более простым способом: с помощью закона Кирхгофа и формул Френеля (без предварительного нахождения кулоновских мод структуры). Однако, получив таким образом формулы, описывающие поглощение света структурой, мы оказываемся не в состоянии детально выяснить, во что переходит поглощенная энергия и какие именно колебательные состояния структуры ответственны за тот или иной пик в спектре [33, 59].

Взаимодействие кулоновских мод тонкой пленки на металле с электромагнитным полем свободных фотонов описывается гамильтонианом (62). При поглощении фотона с возбуждением кулоновской моды должны сохраняться энергия и волновой вектор, параллельный плоскости пленки:

$$\omega(q) = \omega, \quad (63)$$

$$q = \frac{\omega(q)}{c} \sin \varphi. \quad (64)$$

Здесь ω и $\omega(q)$ — частоты падающего света и кулоновской моды соответственно, φ — угол падения света. Соотношения (63) и (64) приводят к неравенству

$$q < \frac{\omega(q)}{c}, \quad (65)$$

которое ограничивает набор мод, способных поглощать или излучать свет в одноквантовых процессах. Таким образом, моды с $q > \omega(q)/c$ в линейном поглощении или излучении света не участвуют.

При выполнении условий (63) и (64) вероятность поглощения фотона (интегральное поглощение соответствующей полосы в спектре) с точностью до нормировочного множителя, не зависящего от толщины пленки d и угла падения φ , согласно "золотому" правилу Ферми, является квадратичной по матричному элементу гамильтониана взаимодействия:

$$A \propto \frac{\left| \int P_q^*(z) E_q^\perp(z) dz \right|^2}{\int |P_q(z)|^2 dz}. \quad (66)$$

Функции $P_q(z)$ в (66) соответствуют исследуемым кулоновским модам, полученным в разделе 5.1.1. Функции $E_q^\perp(z)$ описывают поперечное электромагнитное поле в пренебрежении взаимодействием с пленкой, но с учетом отражения от металла: для s -поляризации

$$E_q^\perp \propto (0, \sin [k_z(z+d)], 0), \quad (67)$$

для p -поляризации

$$E_q^\perp \propto \left(i \cos \varphi \sin [k_z(z+d)], 0, \sin \varphi \cos [k_z(z+d)] \right), \quad (68)$$

где

$$k_z = \frac{\omega}{c} \cos \varphi.$$

Исследуем поглощение света различными кулоновскими модами в той же последовательности, в какой они рассматривались в разделе 5.1.1.

s-поляризованные колебания, поперечные моды ($\omega = \omega_{\text{ТО}}$). Очевидно, эти моды взаимодействуют, лишь с s -поляризованным светом. Подставляя в (66) выражение (67) для амплитуды падающей волны и формулы (23) и (24) для поляризации синусоидальных и косинусоидальных мод, при $k_0 d \ll 1$ получаем

$$A \propto (k_0 d)^3 n^{-2} \cos^2 \varphi, \quad n = 1, 2, \dots \quad (69)$$

для синусоидальных мод и

$$A \propto \begin{cases} (k_0 d)^3 \cos^2 \varphi, & n = 0, \\ (k_0 d)^7 n^{-4} \cos^6 \varphi, & n = 2, 4, \dots, \\ (k_0 d)^3 n^{-4} \cos^2 \varphi, & n = 1, 3, \dots \end{cases} \quad (70)$$

для косинусоидальных мод.

Поглощение света всеми s -поляризованными поперечными модами приводит к появлению пика в спектре поглощения тонкой пленки на частоте $\omega_{\text{ТО}}$. Из (69) и (70) видно, что при малых $k_0 d$ основной вклад в пик поглощения вносят синусоидальные моды и косинусоидальные моды с $n = 0$ и $n = 1, 3, \dots$ Суммируя вклады этих мод, находим интегральное поглощение для s -поляризованного света на частоте $\omega_{\text{ТО}}$:

$$A \propto (k_0 d)^3 \cos^2 \varphi. \quad (71)$$

p-поляризованные колебания, поверхностные моды. Взаимодействие p -поляризованного электромагнитного поля с первой поверхностной модой приводит к появлению пика поглощения вблизи частоты $\omega_{\text{ЛО}}$ (согласно (36) при $qd \ll 1$). Используя формулы (32), (33), (66) и (68), получаем интегральное поглощение

$$A(\omega_{\text{S+}} \approx \omega_{\text{ЛО}}) \propto k_0 d \sin^2 \varphi. \quad (72)$$

Взаимодействие со второй поверхностной модой приводит к пику поглощения вблизи частоты $\omega_{\text{ТО}}$. С помощью формул (39) и (40) находим интегральное поглощение

$$A(\omega_{\text{S-}} \approx \omega_{\text{ТО}}) \propto (k_0 d)^3. \quad (73)$$

p-поляризованные колебания, продольные моды ($\omega = \omega_{\text{ЛО}}$). Используя формулы (43), (44) и (68) и выполняя

интегрирование в (66), обнаруживаем, что матричный элемент

$$\left| \int P^* E^\perp dz \right|^2 = 0.$$

Соответственно имеем

$$A(\omega_{LO}) \equiv 0. \quad (74)$$

Таким образом, исследованные в разделе 5.1.1 моды с частотой ω_{LO} вообще не взаимодействуют со свободным электромагнитным полем в одноквантовых процессах (как и продольные моды массивного кристалла). Этим оправдывается данное им название "продольные моды".

***p*-поляризованные колебания, поперечные моды** ($\omega = \omega_{TO}$). Используя уравнения (48) и (49), находим поглощение каждой модой с частотой ω_{TO} :

$$A(\omega_{TO}) \propto \begin{cases} (k_0 d)^3 n^{-4}, & n = 1, 3, \dots \\ (k_0 d)^7 n^{-4} \cos^4 \varphi, & n = 2, 4, \dots \end{cases} \quad (75)$$

Суммарный вклад всех поперечных мод в поглощение

$$A(\omega_{TO}) \propto (k_0 d)^3. \quad (76)$$

Подводя промежуточный итог представленным в данном разделе исследованиям, мы видим, что взаимодействие света с кулоновскими модами структуры "вакуум–тонкая пленка–металл" приводит к появлению пиков поглощения на частотах этих мод.

В *s*-поляризованном свете возникает только один пик на частоте ω_{TO} , связанный с поглощением света ТЕ-модами пленки. Для "идеального" металла колебательные моды пленки не сопровождаются ни объемными, ни поверхностными зарядами, а поглощение света пропорционально $(k_0 d)^3$. При $d \rightarrow \infty$ они переходят в обычные поперечные оптические фононы.

В *p*-поляризованном свете, вообще говоря, имеются три пика поглощения. Один из них расположен вблизи частоты ω_{LO} пленки и обусловлен поглощением света радиационным поверхностным колебанием атомов вблизи границы раздела "пленка–вакуум", которое сопровождается поверхностными зарядами (объемные заряды равны нулю). Поглощение света на частоте этого колебания не зависит от проводимости металлической подложки и пропорционально $k_0 d \sin^2 \varphi$. Для тонкой пленки при больших φ — это самый интенсивный пик поглощения.

Подчеркнем, что пик поглощения вблизи частоты ω_{LO} , впервые наблюдавшийся Д. Берриманом [24], во многих последующих работах (в том числе и в наших ранних работах) ошибочно интерпретировался как пик поглощения продольным оптическим фононом [16, 17, 61–67]. Как следует из приведенного выше анализа, продольные оптические фононы (моды) вообще не взаимодействуют с поперечным электромагнитным полем.

Два других пика поглощения света *p*-поляризованными модами расположены вблизи частоты ω_{TO} и имеют практически одинаковые зависимости интенсивности от толщины пленки и волнового вектора: поглощение света пропорционально $(k_0 d)^3$. Первый из них связан с колебательными поперечными модами пленки, которые не сопровождаются появлением ни объемных, ни поверх-

ностных зарядов. Частота колебаний атомов в поперечных модах не зависит от материала подложки. При $d \rightarrow \infty$ эти моды представляют собой хорошо известные поперечные оптические фононы кристалла. Второй пик связан с радиационными поверхностными (интерфейсными) поляритонами границы раздела "пленка–подложка", которые сопровождаются появлением поверхностных зарядов. Частота колебаний атомов в них зависит от проводимости металлической подложки и пропорциональна малой величине $k_0 d / \varepsilon_m$.

Рассмотренные выше теоретические зависимости хорошо согласуются с экспериментальными данными [31–34, 59, 83–90]. Для проверки теоретических зависимостей излучения пленок, аналогичных показанным на рис. 3, были получены зависимости интенсивности излучения на частотах $\omega_1 \approx \omega_{TO}$ и $\omega_2 \approx \omega_{LO}$ от толщины пленок и угла излучения. Экспериментальные и теоретические зависимости интенсивности пика излучения (для *p*-поляризации) пленок ZnSe на алюминии от толщины пленки при фиксированных углах излучения представлены на рис. 14а и 14б, а от угла излучения при фиксированной толщине пленки — на рис. 14в и 14г [39, 88, 90]. Видно хорошее согласие расчета с экспериментом.

Таблица 1. Оптические колебательные моды тонкой пленки на металлической подложке

Поляризация	Частота	Поглощение	Заряд	$d \rightarrow \infty$
<i>s</i> (ТЕ)	$\omega \equiv \omega_{TO}$	$(k_0 d)^3 \cos^2 \varphi$	0	ТО
<i>p</i> (ТМ)	$\omega \equiv \omega_{TO}$	$(k_0 d)^3$	0	ТО
<i>p</i> (ТМ)	$\omega \equiv \omega_{LO}$	0	ρ_s, ρ_v	ЛО
<i>p</i> (ТМ)	$\omega \approx \omega_{TO}$	$(k_0 d)^3$	ρ_s	S ₋
<i>p</i> (ТМ)	$\omega \approx \omega_{LO}$	$k_0 d \sin^2 \varphi$	ρ_s	S ₊

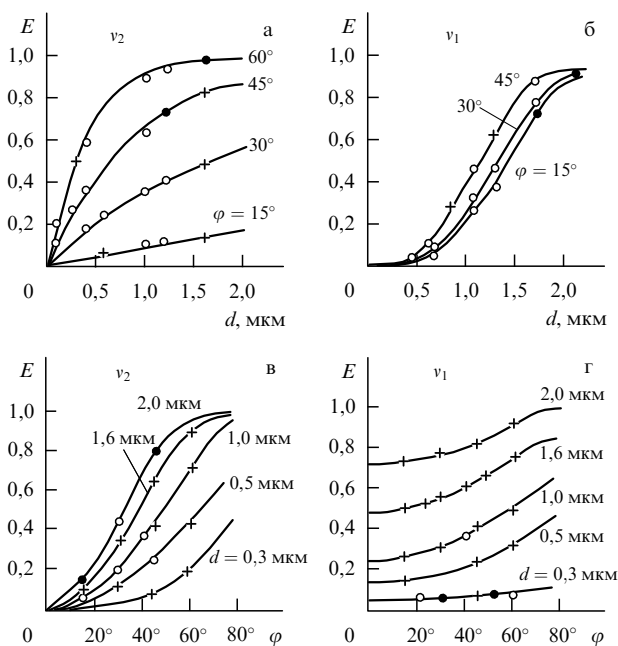


Рис. 14. Зависимость интенсивности излучения пленок ZnSe на алюминии от толщины пленки при различных углах излучения (а, б) и от угла излучения при различной толщине пленок (в, г): точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет; $\nu_2 \approx \nu_{LO} = 250 \text{ см}^{-1}$, $\nu_1 \approx \nu_{TO} = 200 \text{ см}^{-1}$ [59, 88].

Из приведенных данных следует, что пик излучения на частоте $\omega_2 \approx \omega_{LO}$ принадлежит радиационному поверхностному поляритону, локализованному на границе раздела "пленка – вакуум". Определить же, к какому колебанию относится пик излучения на частоте $\omega_1 \approx \omega_{TO}$ (объемному или поверхностному на границе раздела "пленка – металл"), из представленной серии экспериментов нельзя.

Из теоретических расчетов следует, что однозначное отнесение полосы излучения на частоте ω_1 к поперечным колебательным состояниям объема пленки или к интерфейсному поверхностному поляритону возможно только по различному воздействию на них электронной подсистемы металлической подложки. Спектры термостимулированного излучения структуры "вакуум – пленка ZnSe – металл" с толстыми слоями алюминия, хрома и титана, отличающихся величиной $\text{Im } \epsilon_m(\omega)$, представлены на рис. 15. На все эти металлические подложки пленки ZnSe напылялись одновременно термическим испарением в вакууме.

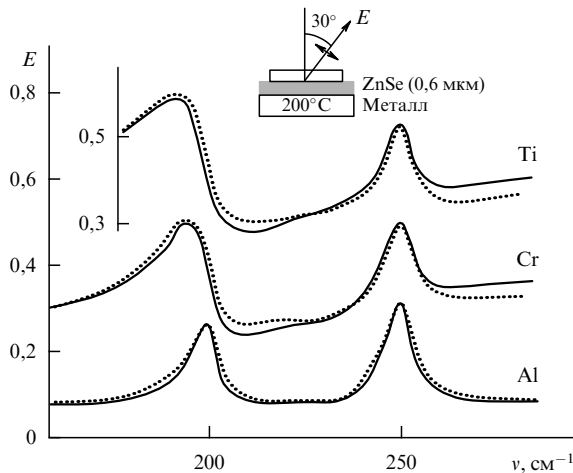


Рис. 15. Спектры p -поляризованного излучения пленок ZnSe толщиной 0,6 мкм на алюминии, хrome, титане: точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет [43].

При термическом напылении, как правило, образуются частично аморфные пленки с большим количеством дефектов упаковки атомов в сильнонапряженной кристаллической решетке (в микрокристаллических зернах — кластерах). Для повышения качества кристаллической структуры пленок образцы подвергались длительному рекристаллизующему отжигу [95] в атмосфере аргона в одной кварцевой ампуле в едином технологическом цикле. Это дает основание надеяться, что толщина и кристаллическая структура пленок ZnSe, а значит, и объемные колебательные свойства полученных образцов практически одинаковы.

Из рисунка 15 видно, что высокочастотная полоса p -поляризованного излучения ω_2 остается практически неизменной. Это является экспериментальным свидетельством одинаковости качества кристаллической структуры всех трех пленок ZnSe. Последнее подтверждается также видом спектров КРС этих образцов, в которых проявляются продольные оптические фононы объема пленки. Из совпадения полос КРС (на продольных и поперечных оптических фононах) образцов сле-

дует, что объемные свойства пленок ZnSe одинаковы⁸ и не зависят от проводимости подложки [59, 110].

Низкочастотная полоса p -поляризованного излучения ω_1 уширяется и смещается в низкочастотную область спектра при уменьшении проводимости металлической подложки. В совокупности это означает, что полоса ω_1 в p -поляризованном термостимулированном излучении структуры "вакуум – пленка ZnSe – металл" связана с радиационным поверхностным (интерфейсным) поляритомом границы раздела "пленка – металл", а не с поперечными колебательными состояниями объема пленки.

На рисунке 15 показаны также рассчитанные спектры излучения сэндвичей. Поскольку для хрома и титана не были известны частоты плазмонов и частоты столкновений электронов в них, в расчетах использовалось соотношение Хагена – Рубенса [96], связывающее проводимость металлической подложки с ее коэффициентом отражения:

$$R_m(\omega) \approx 1 - \left(\frac{2\omega}{\pi\sigma} \right)^{1/2}. \quad (77)$$

Здесь $\sigma = \sigma(\omega)$ — проводимость подложки, которую можно определить из спектров отражения $R_m(\omega)$ чистой металлической поверхности до нанесения на нее пленки ZnSe.

Соотношение Хагена – Рубенса (77) достаточно хорошо описывает отражение металлов в области частот $\omega \ll \omega_p$ [96]. Параметры плазмона алюминия и, следовательно, его диэлектрическая проницаемость хорошо известны. Поэтому спектр излучения пленки ZnSe на алюминиевом зеркале использовался для проверки корректности применения в расчетах спектров излучения выражения $\text{Im } \epsilon_m(\omega) = 4\pi\sigma/\omega$ при значении проводимости подложки σ , полученном из экспериментального значения $R_m(\omega)$ и уравнения (77).

Из спектра излучения пленки ZnSe на алюминии определялись параметры диэлектрической проницаемости ZnSe (ω_{TO} , γ , ϵ_0 , ϵ_∞), которые использовались для расчета спектров излучения пленки ZnSe на хrome и титане. Для них проводимость подложки была единственным подгоночным параметром. Наилучшее согласие экспериментальных и рассчитанных спектров достигалось при значениях $\sigma_{Al} = 8000 \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ ($R_{Al} = 0,94$), $\sigma_{Cr} = 500 \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ ($R_{Cr} = 0,76$), $\sigma_{Ti} = 250 \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ ($R_{Ti} = 0,67$).

Как видно из рис. 15, экспериментальные результаты хорошо согласуются с теоретическими расчетами. Небольшое (и непринципиальное) их различие в области частот $\nu > 260 \text{ см}^{-1}$ для пленок ZnSe на хrome и титане вызвано, по-видимому, тем, что проводимость рассматриваемых подложек на высоких частотах не вполне описывается формулой Хагена – Рубенса. В этом спектральном диапазоне частотная зависимость проводимости хрома и титана отвечает "плохому" металлу. Полу-

⁸ Следует отметить, что электронно-графические и рентгеноструктурные методы анализа кристаллической структуры наиболее чувствительны к нарушениям ближнего порядка в расположении атомов, а методы колебательной и экситонной спектроскопии чувствительны и к нарушениям дальнего порядка. Поэтому степень кристалличности (аморфности) образцов, т.е. качество дальнего порядка, наиболее удобно изучать оптическими методами, когда это возможно [82, 95].

ченные таким способом значения проводимости подложек в сэндвичах лишь на 10–25 % ниже значений, полученных из независимых измерений отражения свободных поверхностей металлов (до напыления на них пленок ZnSe и последующего длительного отжига).

Проведенные исследования показывают, что за поглощение света тонкими пленками широкозонных полупроводников на металлической подложке отвечают не объемные колебательные состояния пленки, а радиационные поверхностные состояния — поляритоны границ раздела "пленка–вакуум" и "пленка–подложка". Дипольные моменты поперечных оптических фононов испытывают, по-видимому, сильное металлическое тушение, так как для тонких пленок совокупный дипольный момент поперечного фонона, параллельный плоскости пленки, вместе с его отображением в металле близок к нулю [40]. Ослабить силы отображения дипольных моментов в металле, ответственных за поперечные объемные колебательные состояния пленки, можно, если отделить пленку от металла, точнее, если создать диэлектрическую прослойку между металлом и пленкой ZnSe.

На рисунке 16 представлены спектры термостимулированного излучения структуры "вакуум–пленка ZnSe–Si-прослойка–Al-подложка" [44]. Кремний не имеет дипольно-активных колебательных состояний в ИК-области спектра, поэтому его излучение очень мало и неселективно. Рассчитанные по формуле (6) спектры (если считать, что ε_1 — диэлектрическая проницаемость вакуума, ε_2 — пленки ZnSe толщиной l , ε_3 — кремниевой прослойки толщиной d , ε_4 — алюминиевой подложки) очень хорошо согласуются с экспериментальными. Видно быстрое возрастание интенсивности излучения и полуширины низкочастотной полосы при увеличении толщины прослойки, а также небольшой сдвиг этой полосы в низкочастотную область спектра. Интенсивность, полуширина и частота максимума высокочастотной полосы остаются при этом неизменными.

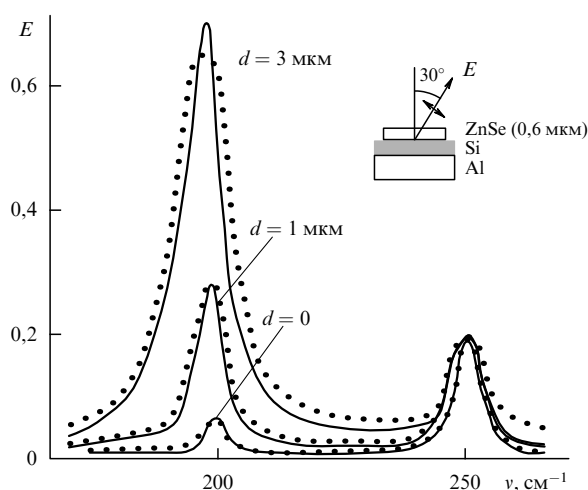


Рис. 16. Спектры p -поляризованного излучения структуры "вакуум–пленка ZnSe (0,6 мкм)–Si-прослойка–Al-подложка" при различной толщине прослойки из кремния: точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет. Экспериментальные точки сдвинуты вниз для спектров при $d = 0$ и $d = 1$ мкм на величину 0,06, а для спектра при $d = 3$ мкм — на величину 0,13 (редукция на фоновое излучение) [44].

Из рисунка 16 и теоретического анализа следует, что металлическое тушение поглощения испытывают только состояния с дипольными моментами, параллельными плоскости подложки (они описываются формулами (70) и (75)). Состояния же с дипольными моментами, перпендикулярными подложке, согласно формуле (72), не взаимодействуют с электронами проводимости металлической подложки. По-видимому, на частоте $\omega_1 \approx \omega_{\text{TO}}$ при малой толщине прослойки из кремния мы имеем дело как с интерфейсным поляритоном, так и с сильно ослабленными поперечными объемными колебательными состояниями пленки ZnSe, а при большой толщине прослойки из кремния — практически только с поперечными объемными колебательными состояниями.

Строго говоря, указанные состояния не являются поперечными объемными оптическими фононами пленки, как считалось ранее, поскольку полуширина полос поглощения этими состояниями Γ существенно зависит от толщины прослойки и толщины пленки. При большой толщине прослойки полуширина полос поглощения Γ в несколько раз превосходит полуширину мнимой части диэлектрической проницаемости γ массивного монокристалла ZnSe. Это различие связано с радиационным каналом распада состояний, вероятность которого γ_r в тонких пленках аддитивна ангармоническому распаду γ , т.е. $\Gamma \approx \gamma + \gamma_r$ [16, 25].

Похуже результаты были получены ранее при исследовании спектров отражения-поглощения и теплового излучения пленок LiF [24, 57, 58] и спектров отражения-поглощения пленок CdS [25, 65, 69], напыленных на металлические и диэлектрические подложки. В них также наблюдалось большое возрастание интенсивности полос поглощения на частоте ω_1 и их полуширины при замене металлических подложек на диэлектрические.

Таким образом, как следует из проведенных исследований, в тонких ($\beta_2 d \ll 1$) пленках широкозонных полупроводников на металлических подложках поглощают и излучают свет только поверхностные поляритоны границ раздела "пленка–вакуум" и "пленка–подложка". Объемные колебательные состояния пленки (продольные и поперечные оптические фононы) не поглощают и не излучают p -поляризованного света, но они хорошо наблюдаются в спектрах КРС [6, 7, 36, 59]. Поперечные оптические фононы пленки могут проявиться в спектрах поглощения и теплового излучения, если пленка отделена от металлической подложки диэлектрической прослойкой [33, 44, 85].

5.2. Толстые пленки

В разделе 5.1 были представлены результаты исследований радиационных колебательных поляритонов тонкой (около 1 мкм) пленки диэлектрика (полупроводника) на металлической подложке. Проследим за эволюцией колебательных спектров поглощения пленок на металле при увеличении толщины пленки от нескольких микрометров до нескольких миллиметров, когда пленку с уверенностью можно считать массивным монокристаллом.

Если оптическая толщина пленки больше длины волны элементарных возбуждений, то по теоретическим данным [12–17] в таких пленках существует набор дополнительных (по сравнению с тонкой пленкой) нормальных состояний, частота и полуширина которых

зависят от толщины кристаллического слоя. Эти состояния — интерференционные моды плоскопараллельной пластины (моды Фабри–Перо). Уравнения, описывающие такие состояния [15, 16], переходят в привычные уравнения для интерференционных мод в тех областях частот, где мнимая часть диэлектрической проницаемости материала слоя обращается в нуль.

Интерференционные моды пленки использовались неоднократно для измерений n и k слабопоглощающих веществ [27, 91, 97]. Тем не менее следует еще раз рассмотреть условия возникновения интерференционных мод в сравнительно тонкой пленке. Первая и единственная "интерференционная мода" (при $2nd \approx \lambda$) появляется в области спектра, в которой показатель преломления $n(\lambda)$ максимален, т.е. в области, в которой нормальная дисперсия показателя преломления переходит в аномальную дисперсию. Эта область спектра примыкает к частоте поперечного оптического фонона кристалла $\omega_{\text{ТО}}$ с низкочастотной стороны [68], где кристалл обладает большими значениями $\text{Re } \varepsilon(\omega)$ и $\text{Im } \varepsilon(\omega)$. Для пленки на идеальном металле ($\varepsilon_m \rightarrow \infty$) уравнение (4), описывающее дисперсию ТМ-поляритонов, переходит в уравнение

$$\beta_1 \cot(\beta_2 d) = i\beta_2 \varepsilon(\omega). \quad (78)$$

При $\beta_2 d \ll 1$ уравнение (78) давало нам ранее дисперсию p -поляризованных поверхностных поляритонов $\omega_1(q)$ и $\omega_2(q)$ границ раздела "пленка–подложка" и "пленка–вакуум". При $\beta_2 d \approx N\pi/2$ ($N = 1, 3, \dots$) это уравнение дает частоты дополнительных (по сравнению с тонкой пленкой) состояний пленки, которые при действительном значении $\varepsilon(\omega)$ являются интерференционными модами зеркального интерферометра Фабри–Перо [91]. Итак, при переходе от $\beta_2 d \ll 1$ (т.е. $N = 0$) к $\beta_2 d \approx \pi/2$ ($N = 1$) радиационный интерфейсный поляритон плавно переходит в первую "интерференционную моду". При дальнейшем увеличении толщины пленки должны появляться и следующие интерференционные моды: с $N = 3, 5, \dots$

На рисунках 2 и 3 представлены спектры p -поляризованного отражения-поглощения и термостимулированного излучения структур "вакуум–пленка ZnSe–металл" с пленками различной толщины: от 1 мкм до 5 мм. На тех же рисунках показаны рассчитанные спектры отражения-поглощения и термостимулированного излучения структур с пленками ZnSe различной толщины. Спектры отражения-поглощения регистрировались в p -поляризованном свете при угле отражения $\varphi = 16 \pm 12^\circ$, рассчитанные спектры усреднялись в том же диапазоне углов φ . Спектры p -поляризованного излучения регистрировались при угле излучения $\varphi = 30 \pm 10^\circ$, рассчитанные спектры также усреднялись по этому апертурному углу.

Небольшое различие в рассчитанных и экспериментальных спектрах отражения-поглощения и излучения пленок связано с погрешностью в измерении их толщины. Различие же в экспериментальном и рассчитанном спектрах излучения монокристалла ZnSe толщиной 5 мм (рис. 3) значительно превосходит погрешность эксперимента и является принципиальным. Дело в том, что при расчете спектра излучения кристалла через его спектр отражения не учитываются эффекты пленения излучения (реабсорбции).

Как известно [77], спектр отражения формируется на небольшой глубине от поверхности кристалла ($L < \lambda$). Область же пленения излучения в кристалле зависит от его коэффициента поглощения $\alpha(\omega) = 2\pi k/\lambda$. В соответствии с законом Ламберта–Бугера–Бера излученная элементом объема кристалла на глубине L от его поверхности электромагнитная волна выходит из кристалла ослабленной в $\exp(-\alpha L)$ раз. Таким образом, в области больших значений α светится только приповерхностный слой кристалла, а в области малых значений α может светиться весь объем кристалла. Поэтому толстые слои кристаллов излучают, как черное тело, в тех областях спектра, где они непрозрачны. В силу этого закон Кирхгофа $E(\omega) = A(\omega) = 1 - R(\omega)$ для таких кристаллов нужно применять с осторожностью.

Из рисунков 2 и 3 видно, что с увеличением толщины пленки ZnSe в спектрах поглощения света и термостимулированного излучения появляются дополнительные полосы в областях частот $\omega < \omega_{\text{ТО}}$ и $\omega > \omega_{\text{ЛО}}$, т.е. там, где нет одночастичных состояний в пленке. В толстых пленках (тонких кристаллических пластинах) происходит сглаживание (усреднение) спектров отражения-поглощения на частотах интерференционных мод аппаратной функцией прибора, поскольку спектральное расстояние между интерференционными модами толстой пленки меньше ширины аппаратной функции кристаллического слоя как интерферометра Фабри–Перо, т.е. меньше его разрешающей способности.

При увеличении толщины пленки ZnSe от 1 до 2 мкм полоса поглощения (излучения) ω_1 плавно смещается в низкочастотную область спектра (от 200 до 190 см^{-1}) с одновременным возрастанием ее интенсивности пропорционально d^3 . При $\beta_2 d \approx \pi/2$ и $\varepsilon_m \rightarrow \infty$ уравнение (78) дает зависимость частоты первого интерференционного поляритона $\omega_{N=1}$ от толщины пленки d [33]:

$$\omega_{N=1} \approx \omega_{\text{ТО}} \left[1 - \frac{\pi d \gamma}{4} (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \cos \varphi \right]. \quad (79)$$

Из уравнения (79) следует, что разность между частотой интерференционной моды с $N = 1$ и поперечным оптическим фононом пропорциональна d и γ . При дальнейшем увеличении толщины пленки ZnSe до 3 мкм на высокочастотном крыле полосы поглощения (190 см^{-1}) появляется новая, сначала очень слабая, полоса поглощения на частоте 200 см^{-1} , которая при увеличении толщины пленки также смещается в низкочастотную область спектра с одновременным возрастанием интенсивности. Первая же полоса поглощения при увеличении толщины пленки продолжает смещаться в область все более низких частот, уширяется и теряет свою пиковую интенсивность.

Таким образом, при увеличении толщины пленки на частоте $\omega_{\text{ТО}}$ возникают все новые и новые полосы поглощения, переходящие в интерференционные моды с $N = 3, 5, \dots$. Каждая новая полоса поглощения (излучения), возникающая на частоте $\omega_{\text{ТО}}$, быстро растет по интенсивности, достигая своего максимума, затем медленно спадает, сильно уширяясь [32–34]. Толщина пленки, при которой достигается максимум поглощения полосой N , совпадает с моментом рождения полосы $N + 1$. При толщине пленки ZnSe больше 2 мкм уже невозможно однозначно отнести полосы поглощения к поверхностным или объемным поляритонам. Эти

полосы — радиационные состояния пленки, относящиеся к соответствующим поляритонным ветвям сэндвича.

Число радиационных ветвей поляритона в пленке N и их дисперсия, описываемая уравнениями (4) и (5), зависит и от толщины пленки, и от ее диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega)$. Как видно из приведенных выше результатов, число интерференционных поляритонных ветвей в пленке возрастает при увеличении ее толщины. При $\beta_2 d \rightarrow \infty$ число этих ветвей также стремится к бесконечности⁹, полностью заполняя зоны, в которых они могут существовать. Таким образом, в полубесконечном кристалле радиационная область $(\omega - q)$ -диаграммы не пустая, как на рис. 16, а в приближении плоских волн полностью заполнена поляритонными состояниями [33].

Следует подчеркнуть, что интерференционные моды могут реально участвовать в различных процессах, связанных с поглощением и излучением света, если свет действительно может (по крайней мере два раза) пересечь пленку без полного поглощения в ней. Для полубесконечного кристалла даже с бесконечно малой величиной $\text{Im} \varepsilon(\omega)$ обратной волны (возвращающейся назад — к поверхности кристалла) быть не может, да и длина цуга в падающей волне должна быть бесконечной, чтобы проинтерферировать с обратной волной. Здесь накладываются несколько не имеющих физического смысла бесконечностей. Для "полубесконечного" кристалла в этом смысле понятия пустая и полностью заполненная радиационные зоны тождественны.

Из спектров p -поляризованного отражения-поглощения монокристаллических пленок ZnTe, представленных на рис. 17а, видно, что частоты полос поглощения и их интенсивности в спектрах отражения зависят от толщины пленки (подобно спектрам пленок ZnSe на рис. 2 и 3). Аналогичные зависимости в спектрах отражения-поглощения от толщины тонкой пленки наблюдались в тонких пленках CdS, ZnS и CdTe на металлических подложках [64–66].

Хорошее согласие теоретического расчета спектров поглощения пленок на металлической подложке с экспериментальными данными (рис. 2, 3 и 17а) позволяет провести анализ поведения спектров поглощения в зависимости от толщины пленок и диэлектрической проницаемости подложек расчетным путем [32, 33]. Теоретические зависимости спектров поглощения пленки ZnTe на алюминии от толщины пленки на рис. 17б показывают, как с увеличением толщины пленки полоса поглощения на частоте $\nu_1 \leq \nu_{\text{TO}}$ плавно превращается в первую интерференционную моду и на частоте ν_{TO} появляются новые полосы (с $N = 2, 3, \dots$). Видно также, что поглощение света пленками не подчиняется закону Ламберта – Бугера – Бера, в соответствии с которым оно экспоненциально возрастает с толщиной пленки.

Считается общепринятым, что в рассматриваемой нами области спектра падающий из вакуума на кристалл один фотон рождает в кристалле один фонon вблизи центра зоны Бриллюэна, так как волновой вектор света $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$ значительно меньше волнового вектора фоновна края зоны Бриллюэна $Q = \pi/a$ (a — постоянная решетки, λ — длина волны света в

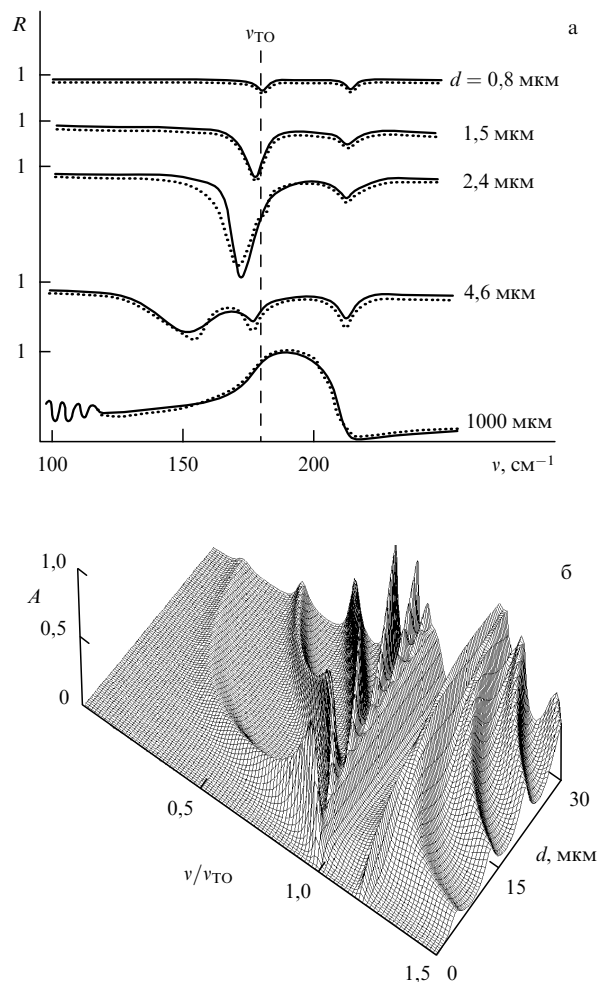


Рис. 17. (а) Спектры p -поляризованного отражения-поглощения пленок ZnTe на алюминии при $\varphi = 20^\circ$ и различной толщине пленок: точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет [38]. (б) Расчетная зависимость p -поляризованного поглощения пленок ZnTe на алюминии при $\varphi = 20^\circ$ от толщины пленок [33].

вакууме). Без учета многолучевой интерференции в слое кристалла поглощение света пропорционально мнимой части диэлектрической проницаемости

$$\text{Im} \varepsilon(\omega) = \frac{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \gamma \omega_{\text{TO}}^2 \omega}{(\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}. \quad (80)$$

Спектр $\text{Im} \varepsilon(\omega)$, а значит, и спектр поглощения имеют форму контура Лоренца с максимумом на частоте ω_{TO} и с быстро спадающей интенсивностью крыльев контура. Эксперименты же дают серию полос поглощения (и излучения) света на частотах $\omega < \omega_{\text{TO}}$ (и $\omega > \omega_{\text{LO}}$), где нет однофоновных состояний материала пленки, и немонотонную зависимость поглощения на частоте ω_{TO} от толщины пленки в очень широком диапазоне изменения толщины.

Из (80) видно, что поглощение света должно быть только в том случае, когда вероятность ангармонического распада фоновна отлична от нуля, т.е. когда $\gamma > 0$. Распад одного оптического фоновна в диэлектрическом кристалле возможен только на несколько других фоновнов в одном акте (на 2, 3, ... фоновнов), т.е. в многофоновных состояниях, поскольку при распаде фоновна должны

⁹ Для пленки ZnSe на металле появляются два набора интерференционных полос при $N \rightarrow \infty$: первый с частотами от нуля до $\omega_N \rightarrow \omega_{\text{TO}}$, второй — от ω_{LO} до $\omega_N \rightarrow \omega_{\text{ex}}$.

сохраняться энергия и импульс. Несмотря на то что в выражении (80) предполагается ангармонический распад только одного фонона кристалла с вероятностью γ , реальное поглощение света в области частот $\omega > \omega_{LO}$ и $\omega < \omega_{TO}$ определяется, по-видимому, плотностью многофононных состояний, поскольку введение отличной от нуля вероятности распада однофононного состояния ($\gamma > 0$) подразумевает в неявном виде конечную плотность многофононных состояний.

Кроме того, как отмечалось выше, в кристалле конечных размеров появляется канал распада поляритонов, связанный с "квантованием" электромагнитного поля объемного поляритона кристалла его границами и с возникновением за счет этого волноводных и интерференционных мод. Через интерференционные моды структуры электромагнитное поле, рожденное тепловыми колебаниями диполей, может выйти из кристалла.

Расщепившийся на интерференционные и волноводные моды объемный поляритон является нестационарным собственным состоянием кристалла конечных размеров. Всякий нестационарный процесс в реальном веществе всегда термодинамически необратим. Это означает, что $\text{Im}\varepsilon(\omega) \neq 0$ при всех $\omega > 0$. Изменение дисперсии объемного поляритона при переходе от бесконечного кристалла к кристаллу конечных размеров приводит к значительному увеличению плотности поляритонных состояний в радиационной области, что и приводит к увеличению поглощения света интерференционными поляритонами на частотах $\omega > \omega_{LO}$ и $\omega < \omega_{TO}$.

Представления о том, что падающий на кристалл из вакуума фотон рождает фонон (объемное колебательное возбуждение кристалла), оказываются противоречащими всей совокупности обсуждаемых результатов. В области частот $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$, где плотность однофононных состояний (см. рис. 3) отлична от нуля, в экспериментальных спектрах нет поглощения света. Тем не менее следует отметить, что оптические свойства кристаллов и пленок в широкой области спектра хорошо описываются с помощью макроскопической диэлектрической проницаемости, определяемой фононами (экситонами) кристалла.

5.3. Резонанс дипольных колебаний примесных атомов с поляритонами кристаллического слоя

Наличие дефектов кристаллической структуры может изменить плотность фононных состояний в области частот $\omega > \omega_{LO}$ и $\omega < \omega_{TO}$. При малых концентрациях дефектов (примесных атомов) возникают малые изменения плотности фононных состояний и диэлектрической проницаемости кристалла [98–101]. Однако введение в кристаллическую пленку малой концентрации примесных атомов, образующих локальные колебания, приводит к очень большим изменениям ее оптических свойств.

Наиболее ярко такое изменение проявляется при взаимодействии локальных колебаний атомов примесей кристаллической решетки с интерференционными модами, которое наблюдалось в спектрах отражения-поглощения пленок твердых растворов $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ и $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ [38]. Эти твердые растворы обладают так называемым "двухмодовым поведением" оптических фононов [98]. При малых x оптические колебания атомов Se или Cd отщепляются от зоны однофононных

состояний CdS и ZnTe соответственно, и их частоты $\omega_g < \omega_{TO}$ попадают в область щели между акустическими и оптическими фононами [98–101].

Изменяя толщину пленок $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$ и $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ при одной и той же концентрации примесей, можно добиться совпадения частот интерференционных мод с частотами щелевых колебаний примесных атомов. (Отметим, что частоты локальных колебаний примесных атомов, как объемные колебательные состояния пленки, не зависят от свойств подложки.) Каждый раз при совпадении частот локальных колебаний примесных атомов и интерференционных мод наблюдалось резонансное возрастание интегрального поглощения света на частоте щелевых колебаний примесных атомов (до 10^5 раз для первого резонанса) [33, 34, 38]. На рисунке 18 представлены спектры отражения-поглощения монокристаллических пленок твердого раствора $\text{Zn}_{0,95}\text{Cd}_{0,05}\text{Te}$ разной толщины на алюминиевом зеркале. Из сравнения рис. 18 и 17 видно, что малая концентрация примеси CdTe в ZnTe приводит к резким изменениям в

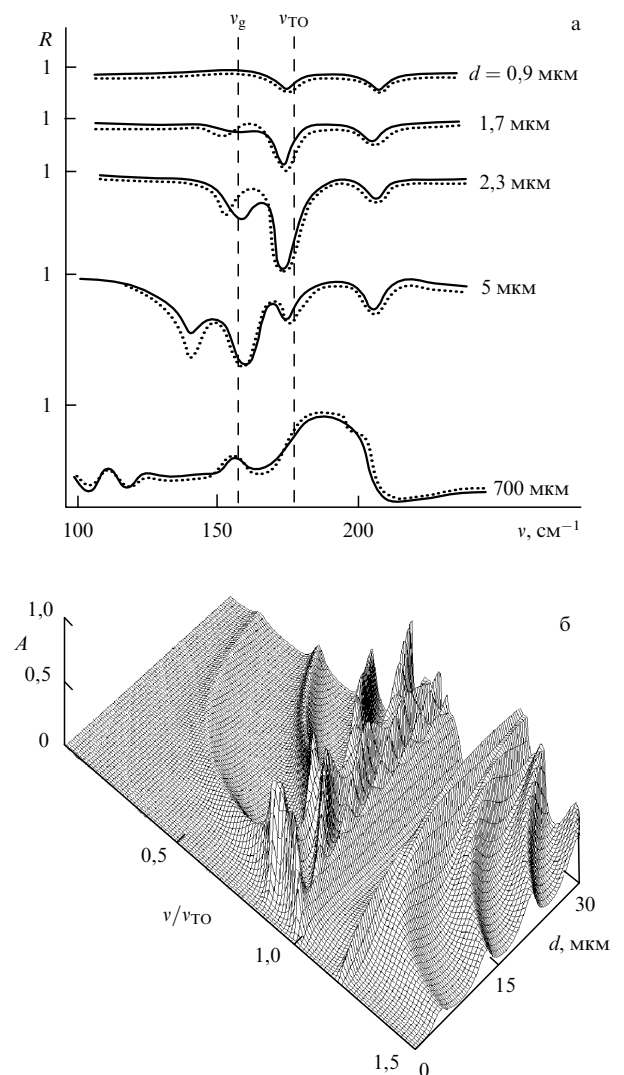


Рис. 18. (а) Спектры p -поляризованного отражения-поглощения пленок $\text{Zn}_{0,95}\text{Cd}_{0,05}\text{Te}$ на Al-зеркале при $\varphi = 20^\circ$ и различной толщине пленок: точки — эксперимент, сплошные кривые — расчет [38]. (б) Расчетная зависимость p -поляризованного поглощения пленок $\text{Zn}_{0,95}\text{Cd}_{0,05}\text{Te}$ при $\varphi = 20^\circ$ от толщины пленок [33].

спектре поглощения при изменении толщины пленки твердого раствора. При малой и большой толщине пленки относительная интенсивность полосы поглощения щелевым колебанием примеси пропорциональна концентрации примеси твердого раствора [98–101]. Интегральный коэффициент поглощения света в пленке на частотах щелевых колебаний примесей сильно зависит от номера интерференционной моды, совпадающей по частоте с щелевым колебанием. Максимальное усиление поглощения при резонансе происходит для $N = 1$ и убывает с увеличением N . При очень больших N , т.е. в толстых кристаллах ($d \approx 1$ мм), резонанс отсутствует.

Наряду с возрастанием поглощения на частотах щелевых колебаний примесных атомов в спектрах отражения-поглощения на рис. 18 происходит значительное уменьшение поглощения света на частотах $\omega_{\text{ТО}}$ колебаний матрицы (растворителя) ZnTe [38]. Аналогичное перераспределение интенсивностей поглощения при увеличении толщины пленки обсуждалось в разделе 5.2. Напомним, что в тонких пленках на металлической подложке колебание на частоте $\omega_{\text{ТО}}$ является радиационным поверхностным (интерфейсным) поляритонном границы раздела "пленка–подложка" [33, 59], а при $d \approx \pi c / (\omega_{\text{ТО}} \sqrt{\varepsilon(\omega)})$ — интерференционным поляритонном структуры.

Число ветвей поляритона в пленке и их дисперсия зависят от толщины пленки и функции $\varepsilon(\omega)$ материала пленки, которая в первом приближении слабо меняется при введении небольших концентраций примеси [98–101]. Расчет спектров отражения-поглощения пленок $(\text{ZnTe})_{1-x}(\text{CdTe})_x$ на алюминиевом зеркале (рис. 18б) осуществлялся по формуле (12) с использованием для диэлектрической проницаемости пленки твердого раствора $(\text{ZnTe})_{1-x}(\text{CdTe})_x$ при малых x соотношения [38]

$$\varepsilon(\omega) = (1-x)\varepsilon_{\text{ZnTe}}(\omega) + x \frac{(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)_{\text{CdTe}} \omega_g^2}{\omega_g^2 - \omega^2 - i\gamma_g \omega}, \quad (81)$$

где ω_g и γ_g — частота и коэффициент затухания щелевого колебания атомов Cd, замещающих атомы Zn в решетке ZnTe. Для расчетов значения ω_g и γ_g брались из экспериментальных данных по исследованию спектров отражения массивных кристаллов твердых растворов [99, 100]. Выражение (81) является довольно грубым приближением для диэлектрической проницаемости твердого раствора, тем не менее оно дает хорошее согласие с экспериментом.

Как следует из сравнения представленных на рис. 17 и 18 данных, наличие малой концентрации примесей приводит к изменению не только интенсивности спектров поглощения пленок, но и дисперсии нижней поляритонной ветви нерadiационного объемного поляритона ZnTe, а значит, и к возникновению щели в ней в окрестности частоты колебания примесных диполей Cd–Te. Наблюдаемая в спектрах на рис. 18 перекачка интенсивности поглощения из одной области спектра в другую свидетельствует о появлении дополнительного механизма взаимодействия между дипольными колебаниями примесных атомов и поляритонными состояниями пленки. Преобразование (возмущение) границами пленки нижней ветви объемного поляритона массивного кристалла, вызывающее отщепление от него интерференционных и волноводных мод, и является, по-видимому, таким дополнительным каналом "перекачки"

плотности поляритонных состояний из одной области спектра в другую, т.е. от нерadiационного объемного поляритона матрицы или интерфейсных поляритонов сэндвича к радиационным поляритонным ветвям, совпадающим по частоте с щелевыми колебаниями примесных атомов в пленке.

Таким образом, казалось бы, справедливое разделение оптических фононов в твердых растворах на фононы матрицы и локальные колебания примесей для массивных монокристаллов [99] становится неправомерным для пленок, поскольку из-за обсуждавшихся выше эффектов щелевые колебания являются уже не локальными, а в некотором смысле резонансными.

Аналогичное резонансное взаимодействие "локальных колебаний", скорее всего, должно наблюдаться и с волноводными поляритонами, существующими в нерadiационной области. По физике и технике волноводных мод существует огромное количество литературы, в том числе и монографии (см., например, [102, 103]). Волноводные моды обладают осциллирующим электромагнитным полем внутри и экспоненциально затухающим полем вне пластины (пленки) [102, 103].

Другими словами, волноводные моды испытывают полное внутреннее отражение от границ пластины, оставаясь "запертыми" внутри нее. Их двумерный волновой вектор $q > k_0$. В частности, в оптических экспериментах волноводные моды могут возбуждаться так же, как и нерadiационные поверхностные поляритоны, — с помощью призмы НПВО [102, 103]. Дисперсия ТМ-волноводных мод описывается уравнением (4), а дисперсия ТЕ-волноводных мод — уравнением (5) при мнимом β_1 . Волноводные моды заполняют области $(\omega - q)$ -диаграммы между дисперсионной кривой объемного поляритона бесконечного кристалла и световой прямой в вакууме. Пересечение областей существования волноводных мод прямой, соответствующей определенному углу в призме НПВО (т.е. условию сохранения энергии и импульса в процессах возбуждения волноводных мод), определяет частоты волноводных мод с заданным волновым вектором q , а когда расстояние между ними меньше их полуширины, — область спектра их возбуждения.

Формула (6) описывает спектры потерь энергии световой волны на возбуждение волноводных мод с помощью призмы НПВО над структурой "кристаллический слой–металлическая подложка" [33]. Как показывают результаты сравнения теории с экспериментом, теория хорошо описывает дисперсионные кривые волноводных поляритонов планарных структур. Прямые измерения дисперсии волноводных поляритонов кристаллического слоя и объемных поляритонов кристалла дают также методы малоуглового КРС и гипер-КРС [7, 36, 37, 47].

6. Радиационное время жизни поляритонов

Как неоднократно подчеркивалось выше, в кристаллах конечных размеров, существует радиационный канал распада поляритонов, приводящий к тому, что даже в гармоническом приближении диэлектрическая проницаемость кристалла $\varepsilon(\omega)$ является комплексной функцией. В работах [12–17] показано, что радиационный распад поляритона можно учесть заменой в уравнении (1) действительной текущей частоты ω на комплексную: $\omega = \omega' + i\omega''$. По определению константа радиационного

распада поляритона с частотой $\omega' = \omega_v$ равна $\gamma_r = 2|\omega''| = \tau_r^{-1}$, где τ_r — радиационное время жизни поляритона, который назван в этих работах виртуальным.

Радиационное время жизни поляритонов плоскопараллельных пластин ионных кристаллов без подложки теоретически исследовалось в [12–16]. В работах [25, 33, 34, 57, 58, 64–66, 69] экспериментально исследовались пленки на подложках, но только для одной поляритонной ветви тонкой пленки с частотой ω_2 (модой ОТН в обозначениях [25, 57, 58, 65, 69]), связанной с радиационным поверхностным поляритоном на границе раздела "пленка–вакуум".

Законы дисперсии радиационного поверхностного поляритона с частотой $\omega_2 = \omega_v \approx \omega_{LO}$ свободной пленки и пленки на металлической подложке совпадают, так как подложка на него практически не влияет. Поэтому радиационное уширение этого поляритона можно экспериментально и теоретически изучать в чистом виде. В случае тонкой пленки ($\beta d \ll 1$) расчеты [25, 58, 65, 69] дают следующее выражение для константы радиационного распада поверхностного поляритона:

$$\gamma_r = -2\omega'' = 2\pi d(\epsilon_\infty^{-1} - \epsilon_0^{-1})\omega_v^2 \frac{1}{\cos \varphi} \sin^2 \varphi. \quad (82)$$

Отражательная способность сэндвича для этого случая (вместо (12)) имеет вид [25, 33]

$$R(\omega, \varphi) = 1 - \frac{4\gamma\gamma_r}{4(\omega_v - \omega)^2 + (\gamma + \gamma_r)^2} - \frac{1}{\cos \varphi} \sqrt{\frac{2\omega}{\pi\sigma}}, \quad (83)$$

где σ — проводимость металлической подложки на частоте ω . Если считать подложку идеальным металлом, т.е. положить $\sigma \rightarrow \infty$, то, как показано в [25, 64–66], из выражения (83) можно получить

$$\frac{A}{R} = \frac{1 - R}{R} = \frac{4\gamma\gamma_r}{4(\omega_v - \omega)^2 + (\gamma - \gamma_r)^2}. \quad (84)$$

Функции (83) и (84) имеют лоренцев контур с полуширинами $\gamma + \gamma_r$ и $\gamma - \gamma_r$ соответственно. Это позволяет восстановить из экспериментальных данных значения γ и γ_r и сравнить последнее с теоретически предсказанным значением (табл. 2). Для обсуждаемого сейчас радиационного поверхностного поляритона константа его радиационного распада γ_r оказывается меньше 1 см^{-1} , что примерно в десять раз меньше константы ангармонического распада γ .

Отметим, что согласно (83) и (84) поглощение и излучение света колебательными состояниями сэндвича

на частоте ω_v возможно, только если γ и γ_r не равны нулю.

Из таблицы 2 видно, что экспериментальные значения для $\gamma_r(v_2)$ очень хорошо согласуются с теоретическими расчетами по формуле (82) [34, 64–66], особенно для полупроводниковых соединений ZnSe, CdTe с кубической симметрией кристаллической решетки, обладающих изотропными оптическими свойствами.

Радиационное время жизни интерференционных мод свободных пленок оценивалось теоретически в [15, 32, 86]. Как следует из этих работ, интерференционные моды с $\omega_N \ll \omega_{TO}$ и $\omega_N \gg \omega_{LO}$ имеют полуширину $\gamma_r \gg \gamma$, т.е. спектральная ширина интерференционных мод определяется их радиационным распадом. Для не очень толстых пленок ($\beta d \approx 1$) расчеты дают $\gamma_r \propto \omega_N/4\pi$, кроме того, полуширина γ_r сильно зависит от q и достигает максимального значения при угле Брюстера для p -поляризованного света [15]. Аналогичные результаты для $\omega_N \ll \omega_{TO}$ пленок на идеальной металлической подложке были получены теоретически в работах [65, 69].

Хорошее совпадение между экспериментальными результатами и рассчитанными спектрами поглощения на частотах интерференционных мод (в том числе значения частот, полуширин, формы контуров полос в спектрах поглощения и излучения интерференционных мод и их интенсивностей) свидетельствует о том, что полосы интерференционных мод в спектрах обладают однородной шириной, которая определяется в основном константой радиационного распада γ_r , т.е. временем τ_r многократного прохождения света через пленку в структуре сэндвича.

Время τ_r можно грубо оценить из простого соотношения $\tau_r = 2dnN_{\text{eff}}/c$, где N_{eff} — эффективное число проходов света через пленку. Из теории интерферометра Фабри–Перо отраженного света [91, 104] можно определить значение N_{eff} и сравнить время жизни τ_r со значением $\Gamma^{-1} = (\gamma_a + \gamma_r)^{-1}$, полученным из измерений спектральной полуширины интерференционных полос в спектрах отражения-поглощения (здесь γ_a — константа нерадационного, ангармонического, распада поляритона на частотах интерференционных мод). Для интерференционных мод с частотами $\omega_N \ll \omega_{TO}$ и $\omega_N \gg \omega_{LO}$ оценка дает $\Gamma \approx \gamma_r$, т.е. $\gamma_r \gg \gamma_a$ для всех исследованных нами образцов.

Таким образом, время жизни радиационных поляритонов с $\omega_N \ll \omega_{TO}$ и $\omega_N \gg \omega_{LO}$ сэндвича можно определить из измерений спектральной ширины полос поглощения или излучения. В случае тонких пленок для первых интерференционных мод ($N = 1, 3, \dots$) радиационное время может быть очень малым. Для полос поглощения на рис. 6, 8, 17 и 18 оно составляет лишь несколько сотен

Таблица 2. Оптические константы тонких пленок полупроводников на алюминиевом зеркале

Пленка полупроводника	d , мкм	v_1 , см^{-1}	$\gamma(v_1)$, см^{-1}	v_2 , см^{-1}	$\gamma(v_2)$, см^{-1}	$\gamma_r(v_2)$, см^{-1} (эксперимент)	$\gamma_r(v_2)$, см^{-1} (теория)
ZnSe	0,5	205	5,0	252	6,5	0,16	0,18
ZnSe	1,6	202	5,5	252	7,5	0,45	0,56
ZnS	1,0	270	18	352	10	0,6	0,87
CdS	0,6	237	8,0	302	12	0,7	0,45
CdTe	0,5	140	5,5	167	6,0	0,045	0,047
CdTe	0,9	139	6,5	167	6,0	0,09	0,087
CdTe	2,4	137	5,5	167	5,0	0,22	0,23

фемтосекунд, а для полос поглощения на рис. 23б — несколько десятков фемтосекунд [32, 86]. Значительное увеличение скорости радиационного распада экситонных поляритонов тонких пленок на металлических подложках было предсказано В.М. Аграновичем и С. Мукамель [105]¹⁰.

7. Люминесценция и резонансное КРС на интерференционных поляритонах

В предыдущих разделах показано, что интерференционные моды сэндвича поглощают и излучают свет в ИК-области спектра. Спектры отражения-поглощения тонких пленок ZnSe на металле в видимой области спектра были представлены на рис. 8 и 9. В данном разделе рассмотрим, как радиационные поляритоны (интерференционные моды) сэндвича проявляются в спектрах люминесценции и комбинационного рассеяния света (КРС). Исследуем эти явления на примере пленок ZnSe толщиной 1,25 мкм, напыленных в одном технологическом процессе на подложки из алюминия, хрома и титана.

Спектры вторичного свечения (люминесценции и КРС) сэндвичей возбуждались различными линиями непрерывного аргонового лазера с $\hbar\omega_L < E_g$ (рис. 19б) при различных углах падения лазерного луча на образец и наблюдались (рис. 19в) при различных углах свечения (рассеяния) [33, 35, 59]. Наряду с обычными полосами в спектрах спонтанного КРС пленок ZnSe на частотах поперечных и продольных оптических фононов и поверхностных поляритонов [35, 59, 110] наблюдались широкие полосы в более длинноволновой области спектра [33, 35].

Как видно из рис. 19а и 19б, положение широких полос не зависит от длины волны возбуждающего излучения и угла падения излучения, а при равенстве углов возбуждения и свечения параметры полос (частоты, полуширины, форма контуров) соответствуют спектрам отражения-поглощения интерференционных мод [33, 35, 59]. Все это говорит о том, что в этих экспериментах наблюдалась люминесценция на интерференционных поляритонах [35].

Малую интенсивность люминесценции, сравнимую с интенсивностью КРС на фононах, можно качественно объяснить тем, что при $\hbar\omega_L < \hbar\omega_{ex} \approx E_g$ пленка ZnSe обладает малым поглощением лазерного излучения. Поглощают и излучают свет различные состояния в запрещенной зоне ZnSe и интерфейсные состояния структуры "пленка-подложка". Как следует из рис. 9, наибольший вклад в поглощение дают плазмоны подложки, но только на частотах радиационных поляритонных ветвей — на интерференционных модах [33, 34].

Оказывается также, что интенсивность люминесценции и спонтанного КРС на фононах возрастает при совпадении длины волны возбуждения с максимумами поглощения света интерференционными модами. Резонансного усиления спонтанного КРС при фиксированных

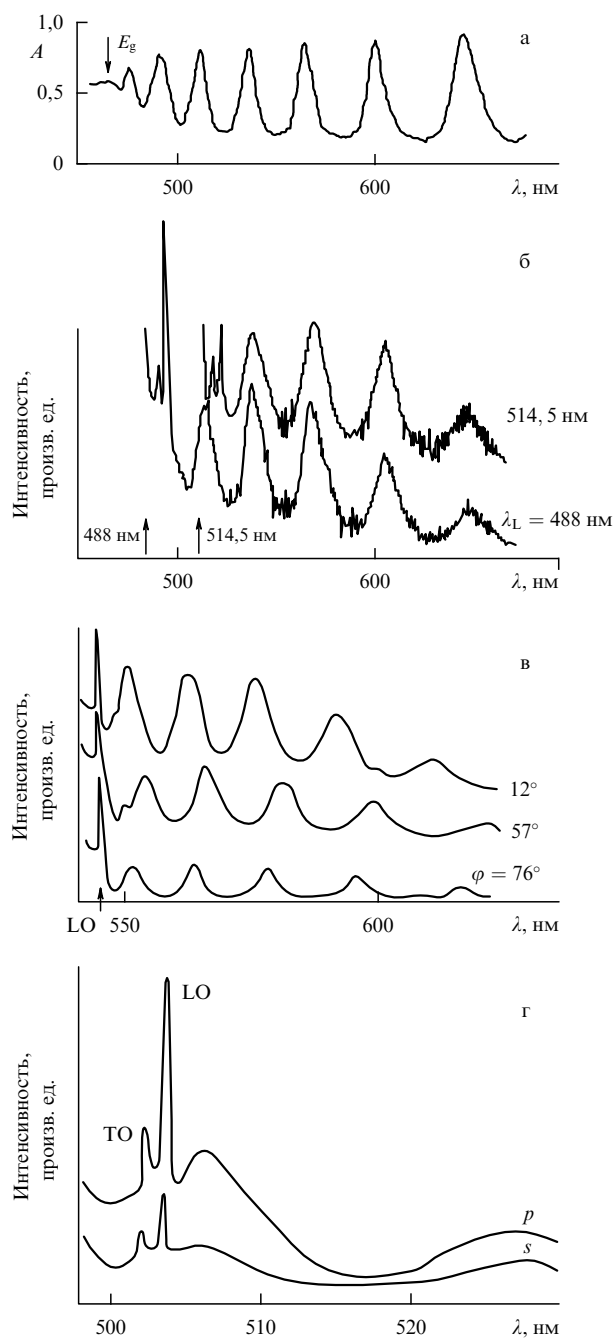


Рис. 19. (а) Спектры *p*-поляризованного поглощения пленки ZnSe толщиной 1,25 мкм на алюминии. (б) Спектры вторичного свечения для возбуждающих лазерных линий $\lambda_L = 488$ нм и $\lambda_L = 514,5$ нм. (в) Спектры вторичного свечения при различных углах рассеяния и $\lambda_L = 488$ нм. (г) Спектры КРС пленки ZnSe на алюминии при *s*- и *p*-поляризации возбуждающего излучения $\lambda_L = 496,5$ нм, падающего на пленку при угле, большем угла Брюстера. $T = 300$ К [33, 35].

длинах волн возбуждения можно добиться двумя способами.

Во-первых, используя угловую зависимость частотного положения интерференционных мод в соответствии с их законом дисперсии $\omega_N(q)$ (см. рис. 7 и 8а), можно обеспечить совпадение частоты интерференционной моды с частотой возбуждения при увеличении угла падения света на образец за счет "наползания" частоты интерференционной моды на частоту возбуждения.

¹⁰ К сожалению, пока неизвестны работы по прямому измерению радиационного времени жизни радиационных поляритонов пленок методами пико- и фемтосекундной спектроскопии. Однако известно, что оно сильно зависит от толщины кристаллического слоя [109] и конфигурации электромагнитного поля внутри многослойной тонкопленочной структуры (в частности, в сверхрешетках с квантовыми ямами) [45, 49, 53].

Угловая зависимость интенсивности пика продольного оптического фонона вдали от резонансного угла изменяется очень слабо, а при переходе к резонансному углу сечение рассеяния на оптических фононах возрастает, как минимум, в три раза [33, 35, 59].

Во-вторых, из рис. 8б следует, что при углах $\varphi > \varphi_{\text{Вг}}$ минимум поглощения интерференционной моды для s -поляризованного света совпадает с максимумом поглощения для p -поляризованного света. Если длина волны возбуждающего лазера (стрелка на оси рис. 8б) совпадает с полосой поглощения для p -поляризации, то, изменяя поляризацию возбуждающего излучения (при той же геометрии эксперимента), можно изменить напряженность электромагнитного поля в пленке, а следовательно, и сечение КРС, поглощение возбуждающего излучения и интенсивность люминесценции. Именно этот случай представлен на рис. 19г, из которого видно резонансное усиление спонтанного КРС на частоте возбуждающего излучения интерференционными модами [33, 35, 59].

Аналогичное явление наблюдалось ранее в работах [106, 107], в которых для увеличения сечения рассеяния света на тонкую пленку сверху наносился слой прозрачного диэлектрика такой толщины, чтобы совокупная толщина сэндвича была кратна $\lambda/2$ возбуждающего излучения. При этом возникала "стоячая волна" (в терминах [106, 107]) на частоте интерференционной моды и напряженность электрического поля световой волны возрастала в число раз, приблизительно равное $N_{\text{эф}}$ — числу проходов (многократных отражений) света в пленке. Именно такое усиление $N_{\text{эф}}$ от 5 до 15 раз (от образца к образцу) наблюдалось в нашем эксперименте [33, 35, 59] и в работах [106, 107].

Из многочисленных исследований резонансного КРС известно, что резонансное усиление наблюдается также при совпадении частоты рассеянного света с каким-либо реальным электронным уровнем (экситоном) [108]. Для проверки существования такого резонанса в нашем случае, т.е. проверки, зависит ли сечение рассеяния света на фононах от совпадения длины волны рассеянного света с максимумом поглощения света интерференционной модой, изучалась зависимость положения в спектрах люминесценции полос интерференционных мод от угла вторичного излучения [33, 35, 59]. Наблюдавшаяся в указанных исследованиях зависимость соответствует закону дисперсии интерференционных мод $\omega_N = \omega_N(q)$, при этом было видно возрастание КРС на фононах при совпадении полосы ТО и/или LO с какой-либо интерференционной модой.

При подобных измерениях обычно трудно оценить количественное усиление КРС, поэтому нормировка спектров КРС проводилась с помощью измерений отношения интенсивностей полос КРС первого и второго порядков при различных углах рассеяния [33, 35, 59]. Из-за относительно большого различия в частотах продольного оптического фонона (250 см^{-1}) и его обертона (2LO-фонона, отстоящего на 500 см^{-1} от линии возбуждения) они совпадают с интерференционными модами при различных углах рассеяния. Такая постановка эксперимента давала возможность оценить зависимость интенсивности спектра КРС от угла рассеяния, не измеряя абсолютных интенсивностей спектров.

Исследования [33, 35, 59] показали, что при совпадении длины волны излучения, рассеянного на продольных

оптических фононах, с длиной волны какой-либо интерференционной моды происходит резонансное возрастание интенсивности КРС. Это усиление интенсивности КРС и люминесценции невелико (всего в несколько раз) и много меньше, чем при возбуждении высоко в зону $\hbar\omega_L > E_g$ [59, 110].

8. Фемтосекундная динамика поляритонов полупроводниковой микрополости

Рассмотрим взаимодействие ультракоротких лазерных импульсов с микрополостями (микрорезонаторными структурами) "полупроводник – металл". Исследование возбуждения и релаксации собственных состояний этих структур методом фемтосекундной лазерной спектроскопии "возбуждение – широкополосное зондирование" [111, 112] показало, что интерференционные поляритоны пленок ZnSe и ZnS на различных металлических подложках оказываются очень чувствительными к ультрабыстрым фотоиндуцированным процессам в структуре "полупроводник – металл".

8.1. Эксперимент

В качестве планарных микрорезонаторных структур использовались пленки ZnSe толщиной 400 и 820 нм на толстой (непрозрачной в видимой области спектра) пленке хрома, пленка ZnSe толщиной 285 нм на полупрозрачном слое меди и пленки ZnS различной толщины (0,29–1,17 мкм) на толстом слое никеля. Исследуемые структуры выращивались на кварцевых подложках толщиной 500 мкм. Возбуждение осуществлялось оптическими импульсами длительностью $\tau \approx 50$ фс для накачки $\hbar\omega_{\text{pu1}} = 2,34$ эВ и $\hbar\omega_{\text{pu2}} = 2,75$ эВ и $\tau \approx 70$ фс для накачки $\hbar\omega_{\text{pu3}} = 5,5$ эВ. Энергия импульса накачки изменялась в пределах 0,4–2 мкДж. Диаметр пятна импульса возбуждения составлял 150–250 мкм.

Измерялись спектры отражения-поглощения широкополосного импульса зондирования, имеющего ту же длительность, что и импульс возбуждения. Диаметр пятна импульса зондирования составлял около 100 мкм. Широкополосный импульс зондирования (1,6–3,2 эВ) диспергировался полихроматором с разрешением 1 нм, спектр этого импульса регистрировался фотодиодной матрицей с 512 пикселями.

Из спектров отражения-поглощения импульса зондирования определялась оптическая плотность микрополости $D_R(\hbar\omega) = \lg R(\hbar\omega)$ при различных временах задержки t_d . С помощью оптической линии задержки импульсы зондирования задерживались относительно возбуждающего импульса на время от $-0,2$ до $2,5$ пс. Время кросс-корреляции "накачка – зондирование" для накачки $\hbar\omega_{\text{pu1}}$ и $\hbar\omega_{\text{pu2}}$ составляло $\tau_{\text{cc}} \approx 70$ фс (ширина на полувысоте), для накачки $\hbar\omega_{\text{pu3}}$ значение $\tau_{\text{cc}} \approx 90$ фс при всех длинах волн зондирования. Анализировались разностные спектры оптической плотности $\Delta D_R(\hbar\omega) = -\Delta \lg R(\hbar\omega)$ возбужденного и невозбужденного образца. При времени задержки $t_d = -0,2$ пс импульс зондирования не перекрывался с возбуждающим и регистрировался спектр невозбужденного образца.

Временная динамика фотонаведенного отражения $\Delta D_R(\hbar\omega)$ определялась с помощью изменения времени задержки между импульсами возбуждения и зондирования с шагом 7 фс. Регистрируемый сигнал усреднялся по восьми измерениям с частотой повторения 2 Гц. Изме-

ряемые спектры корректировались по времени [111, 112], чтобы учесть chirпированность импульса зондирования. Погрешность временной коррекции составляла ± 10 фс. Исследования проводились при комнатной температуре. Качество образца контролировалось в процессе проведения экспериментов. Никаких необратимых изменений в образце из-за облучения его относительно мощными фемтосекундными импульсами после проведения серии экспериментов обнаружено не было.

Для временной коррекции экспериментальных разностных спектров и определения характеристических скоростей релаксации, сигнал $\Delta D_R(\omega, t)$ аппроксимировался следующим образом:

$$\Delta D_{\text{fit}}(\omega, t) = \int_{-\infty}^{\infty} S(t - t') F(t') dt'. \quad (85)$$

Здесь

$$S(t) = \exp \left[- \left(1,665 \frac{t}{\tau_{\text{cc}}} \right)^2 \right]$$

— функция взаимной корреляции "накачка – зондирование",

$$F(t) = \theta(t - t_0) [C_1 \exp(-\gamma_1(t - t_0)) + C_2 \exp(-\gamma_2(t - t_0))].$$

Первый член в квадратных скобках этого выражения описывает быстрый процесс релаксации с характерной скоростью $\gamma_1(\omega)$, второй член соответствует более медленному процессу со скоростью $\gamma_2(\omega)$. Параметры $\gamma_1(\omega)$, $\gamma_2(\omega)$ и нулевая временная задержка $t_0(\omega)$ варьировались для получения наилучшего приближения к экспериментальному сигналу $\Delta D_R(\omega, t)$.

На рисунке 20а представлена эволюция спектров разностного отклика $\Delta D_R(\hbar\omega)$ при различных временах задержки импульса зондирования относительно возбуждающего импульса пленки ZnSe (400 нм) на хроме и результаты аппроксимации этих спектров с помощью экспоненциальных функций отклика [116]. Видно хорошее качество подгонки с использованием процедуры (85). Следует подчеркнуть, что максимальное изменение интенсивности спектра $\Delta D_R(\hbar\omega)$ происходит на частотах интерференционных мод пленки — электромагнитных мод полости (рис. 20б).

Из характерной кинетики $\Delta D_R(\hbar\omega)$ пленки ZnSe (400 нм) на хроме для различных частот зондирования и $\Delta D_{\text{fit}}(\hbar\omega)$ (сплошные кривые на рис. 21) следует наличие двух характерных временных стадий: быстрой с характерным временем порядка длительности импульса возбуждения и медленной с характерным временем порядка 1 пс. Осциллирующая разность $\Delta D_R(\hbar\omega) - \Delta D_{\text{fit}}(\hbar\omega)$ на рис. 21 обусловлена генерацией когерентных фононов [122–124].

Фурье-анализ временной зависимости осциллирующей разности показал, что в образце ZnSe/Cr возбуждаются колебания с частотами 200 и 250 см^{-1} , соответствующие поперечным и продольным оптическим фононам центра зоны Бриллюэна монокристалла ZnSe. Когерентные фононы возбуждаются на всех частотах области зондирования (1,6–3,2 эВ). Распределение интенсивности когерентных фононов зависит от длины волны зондирования и качественно согласуется со спектральной зависимостью линейного отклика (спектром линейного поглощения-отражения) [114–116].

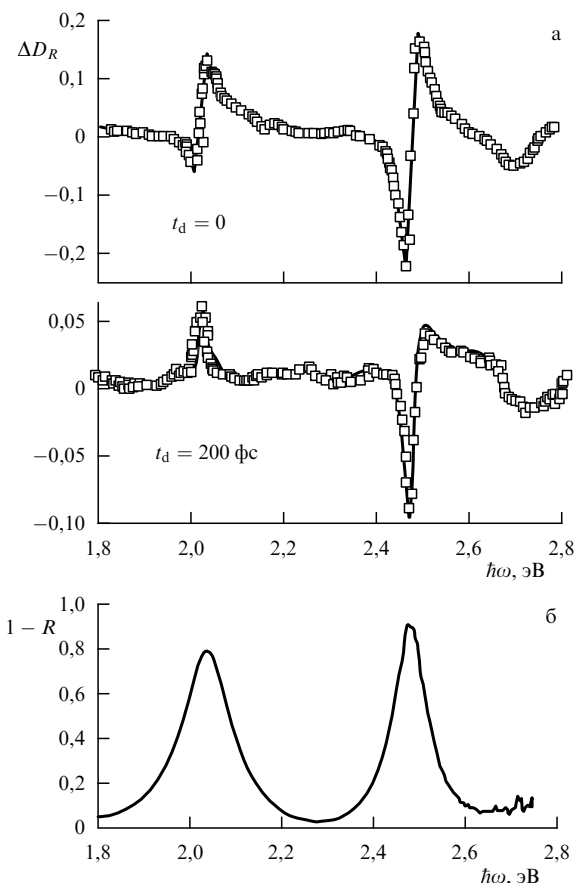


Рис. 20. (а) Временная эволюция спектров разностного отклика пленки ZnSe (400 нм) на хроме при энергии фотона возбуждения $\hbar\omega_{\text{pu1}} = 2,34$ эВ: точки — эксперимент, сплошные кривые — аппроксимация с использованием двухэкспоненциальной функции отклика [116]. (б) Спектр поглощения пленки ZnSe (400 нм) на хроме.

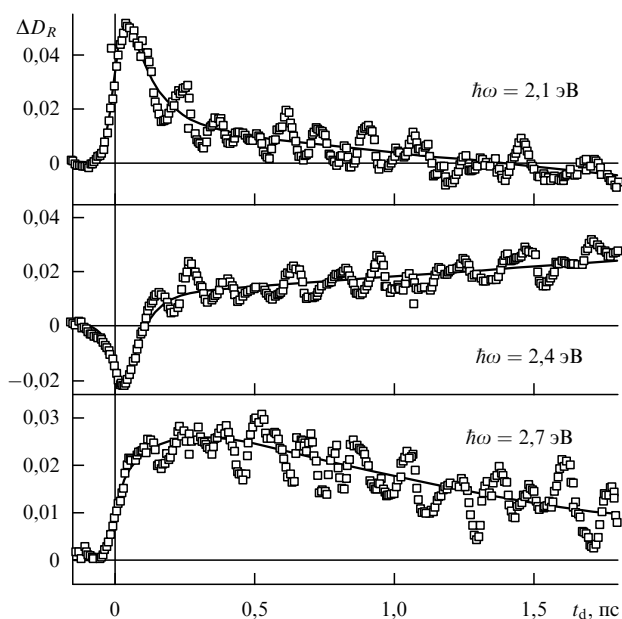


Рис. 21. Временная эволюция фотоиндуцированного разностного отклика пленки ZnSe (400 нм) на хроме для различных частот зондирования: точки — эксперимент, сплошные кривые — результат подгонки с помощью (85) [116].

Отметим, что в исследуемом образце возможны различные механизмы генерации когерентных фононов. Один из них может быть связан с возбуждением когерентных колебаний на частотах $\omega \leq \tau^{-1}$ (где τ — длительность импульса возбуждения) вследствие параметрической накачки мод микрополости [23]. Другой вероятный механизм может быть связан с возбуждением электронов в металле и "импульсной" инжекцией неравновесных носителей в полупроводник через барьер Шоттки [115, 116].

В эксперименте были реализованы два типа возбуждения исследуемых образцов: 1) подзонное возбуждение, когда энергия кванта возбуждающего импульса меньше ширины запрещенной зоны полупроводника E_g ; 2) надзонное возбуждение, когда энергия кванта возбуждающего

импульса больше E_g . Временная эволюция фотоиндуцированных спектров отражения (разностной оптической плотности) при разных временах задержки для подзонного возбуждения образцов ZnS/Ni, ZnSe/Cu и ZnSe/Cr представлена на рис. 22а, 23а и 24 соответственно. Спектры для надзонного возбуждения образцов ZnS/Ni и ZnSe/Cr показаны на рис. 22б и 25. Для надзонного возбуждения образцов отклики всех изучаемых структур оказались качественно подобными. При малых временах задержки ($t_d < 0,5$ пс) наблюдался знакопеременный сигнал, достигающий максимальной амплитуды при $t_d \approx 0,1$ пс и релаксирующий далее с характерным временем порядка 1 пс к сигналу постоянного знака.

Двупольный сигнал фотоиндуцированного разностного отклика внешне очень похож на первую производную спектра поглощения-отражения на частотах интерференционных мод — линейного спектра оптической плотности структур (рис. 20а). Это свидетельствует о возникновении спектрального сдвига интерференционных полос при возбуждении структуры фемтосекундными лазерными импульсами. Сдвиг частоты интерференционной моды плоскопараллельного слоя диэлектрика на металле, в соответствии с формулой (19а),

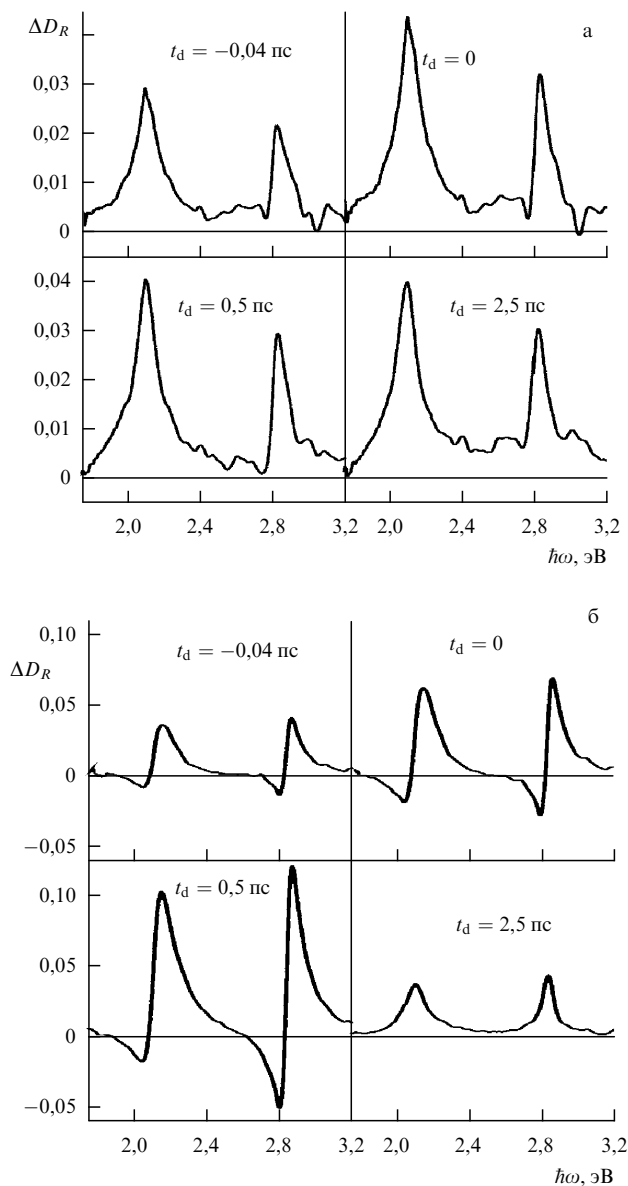


Рис. 22. Спектры $\Delta D_R(\hbar\omega)$ пленки ZnS (293 нм) на Ni-подложке для различных временных задержек: (а) энергия фотона возбуждения $\hbar\omega_{pu2} = 2,75$ эВ, энергия импульса возбуждения 1,6 мкДж, диаметр пятна импульса накачки 120 мкм; (б) энергия фотона возбуждения $\hbar\omega_{pu3} = 5,5$ эВ, энергия импульса возбуждения 1,2 мкДж, диаметр пятна импульса накачки 250 мкм [119–121]. $E_g(\text{ZnS}) \approx 3,7$ эВ при $T = 300$ К.

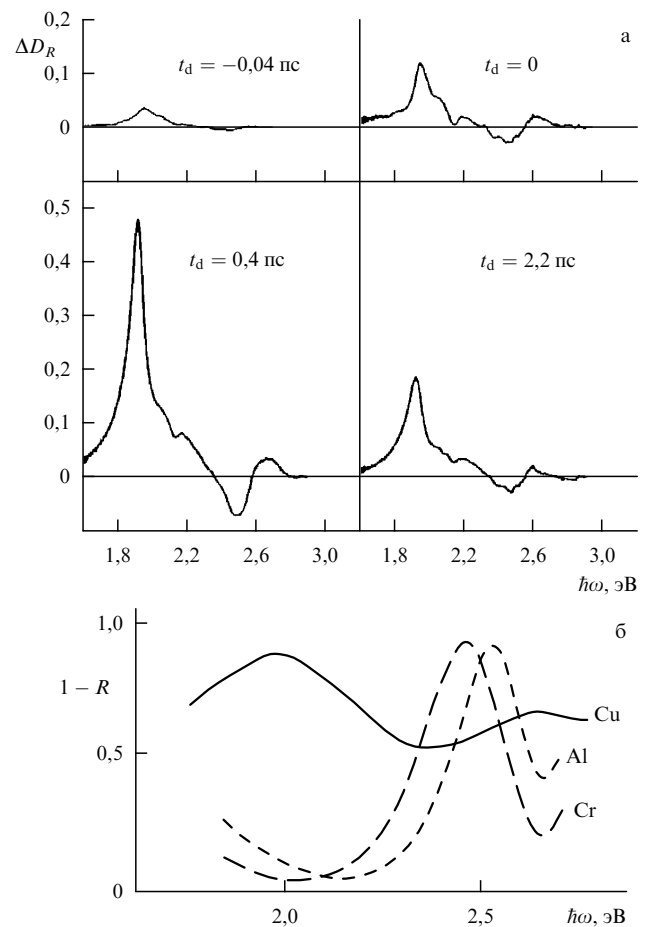


Рис. 23. (а) Спектры $\Delta D_R(\hbar\omega)$ пленки ZnSe (285 нм) на Cu-подложке (22 нм) для различных временных задержек. Энергия фотона возбуждения $\hbar\omega_{pu1} = 2,34$ эВ, энергия импульса возбуждения 0,6 мкДж, диаметр пятна импульса накачки 150 мкм. $E_g(\text{ZnSe}) \approx 2,7$ эВ при $T = 300$ К [118]. (б) Спектры p -поляризованного отражения-поглощения тонкой (270 нм) пленки ZnSe на толстых (больше 500 нм) металлических подложках [86].

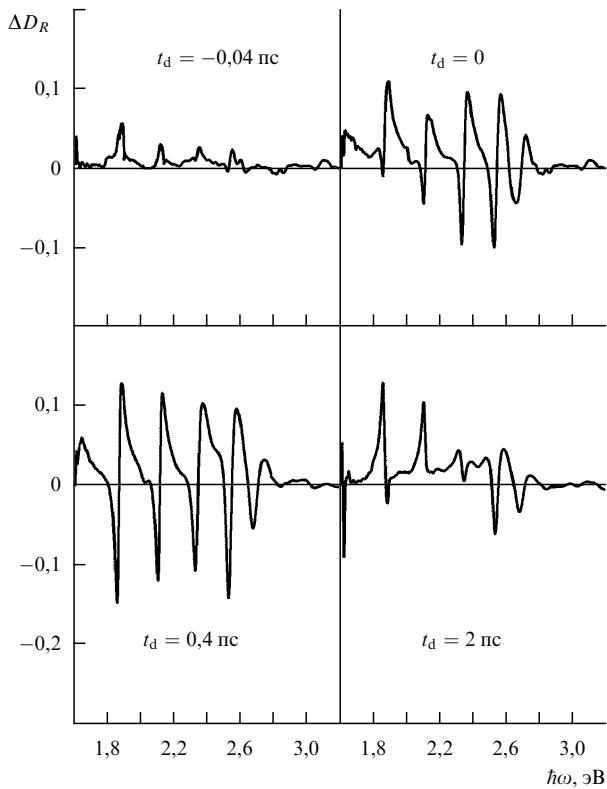


Рис. 24. Спектры $\Delta D_R(\hbar\omega)$ пленки ZnSe (820 нм) на Cr-подложке для различных задержек. Энергия фотона возбуждения $\hbar\omega_{\text{пу1}} = 2,34$ эВ, энергия импульса возбуждения 1,5 мкДж, диаметр пятна импульса накачки 150 мкм. $E_g(\text{ZnSe}) \approx 2,7$ эВ при $T = 300$ К [119, 120].

возможен в первую очередь из-за изменения диэлектрической проницаемости пленки полупроводника и в меньшей степени из-за изменения частоты плазмона металла. Поведение фотоиндуцированных спектров во времени для надзонного типа возбуждения отличается от спектров подзонного возбуждения.

Временная динамика фотонаведенного отклика для подзонного возбуждения зависит от металла, используемого для создания тыльной границы микрорезонатора. Фотонаведенный разностный отклик структуры ZnSe/Cr для положительных временных задержек $t_d = 0 - 0,5$ пс подобен отклику при надзонном возбуждении, т.е. является знакопеременным, а для структур ZnSe/Cu и ZnS/Ni — знакопостоянным (за исключением области вблизи края запрещенной зоны для структуры ZnSe/Cu) при всех исследованных задержках [113–121]. В то же время отклик структуры ZnSe/Cr (рис. 24) при малых отрицательных временных задержках $t_d = -0,04$ пс качественно подобен отклику структуры ZnS/Ni (рис. 22а).

Разностный спектр фотоиндуцированного отклика постоянного знака свидетельствует об изменении интенсивности поглощения света на частотах интерференционных мод. Как показано в разделах 4 и 5.2, интенсивность спектра поглощения обсуждаемых структур на частотах интерференционных мод определяется мнимой частью диэлектрической проницаемости металла. С возрастанием величины $\text{Im } \epsilon_m(\omega)$ растет и поглощение.

Для структуры ZnS/Ni можно выделить две характерные стадии: быструю (с характерным временем,

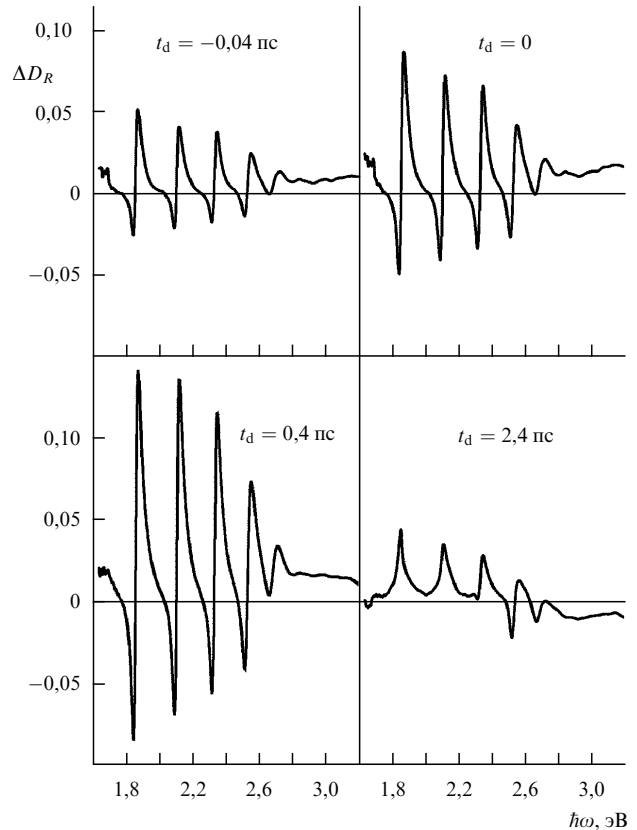


Рис. 25. Спектры $\Delta D_R(\hbar\omega)$ пленки ZnSe (820 нм) на Cr-подложке для различных задержек. Энергия фотона возбуждения $\hbar\omega_{\text{пу3}} = 5,5$ эВ, энергия импульса возбуждения 1,2 мкДж, диаметр пятна импульса накачки 250 мкм [120, 121].

равным длительности импульса) и медленную (с характерным временем $t_d \approx 0,4$ пс). В течение быстрой стадии сигнал достигает максимума при нулевой задержке, затем он уменьшается, превращаясь в возрастающий сигнал (при $t_d \approx 0,4$ пс), который далее относительно медленно релаксирует к нулю при $t_d > 1$ пс. Отклик структуры ZnSe/Cu на рис. 23а подобен отклику структуры ZnS/Ni (кроме быстрой стадии, которая для структуры ZnSe/Cu не наблюдалась) [114, 115, 118–120].

Отметим, что все характерные времена релаксации были больше времени установления мод микрорезонатора $t_{\text{rt}} = \tau_r$ (где τ_r — радиационное время жизни интерференционного поляритона), т.е. суммарного времени N_{eff} прямых и обратных проходов (числа эффективных лучей многолучевой интерференции) света через микрорезонатор. Например, для пленки ZnSe толщиной 800 нм на металлическом зеркале ($N_{\text{eff}} \approx 8$, $n \approx 2,5$) время $t_{\text{rt}} \approx 100$ фс. Отметим также, что быстрая стадия фотонаведенного отклика наблюдалась в разностных спектрах отражения за время, меньшее времени установления мод микрорезонатора t_{rt} [117, 119].

8.2. Обсуждение результатов

Для анализа процессов, определяющих различные вклады в наблюдаемое поведение разностных фотоиндуцированных спектров во времени, вычислялась оптическая плотность $D_R(\hbar\omega) = -\lg R(\hbar\omega)$ и ее производные по диэлектрическим проницаностям металла и полупроводника (ϵ_m и ϵ_s): $dD_R(\hbar\omega)/d\epsilon_{m1,2}$ и $dD_R(\hbar\omega)/d\epsilon_{s1,2}$, где ϵ_{m1}

и ε_{s1} — действительные, а ε_{m2} и ε_{s2} — мнимые части диэлектрических проницаемостей соответственно. Разностную оптическую плотность $\Delta D_R(\hbar\omega)$ можно представить в виде [119, 120]

$$\Delta D_R(\hbar\omega) = \frac{dD(\hbar\omega)}{d\varepsilon_{s1}} \Delta\varepsilon_{s1} + \frac{dD(\hbar\omega)}{d\varepsilon_{s2}} \Delta\varepsilon_{s2} + \frac{dD(\hbar\omega)}{d\varepsilon_{m1}} \Delta\varepsilon_{m1} + \frac{dD(\hbar\omega)}{d\varepsilon_{m2}} \Delta\varepsilon_{m2}. \quad (86)$$

Основной вклад в разностную оптическую плотность $\Delta D_R(\hbar\omega)$ полупроводника определяется изменением действительной части диэлектрической проницаемости ε_{s1} , в то время как основной вклад в $\Delta D_R(\hbar\omega)$ металла дает мнимая часть диэлектрической проницаемости ε_{m2} . Вычисление производных $dD_R(\hbar\omega)/d\varepsilon_{s1}$ и $dD_R(\hbar\omega)/d\varepsilon_{m2}$ для структур "полупроводник–металл" показывает, что их спектральная зависимость различна. Изменение ε_{s1} приводит к сдвигу мод резонатора, и производная $dD_R(\hbar\omega)/d\varepsilon_{s1}$ близка к производной $dD_R(\hbar\omega)/d\omega$ с точностью до масштабного множителя. Назовем этот отклик полупроводниковым. Производная $dD_R(\hbar\omega)/d\varepsilon_{m2}$ имеет пиковую структуру с максимумами вблизи максимумов $\Delta D_R(\hbar\omega)$. Такой фотоиндуцированный отклик назовем металлическим.

Изменение диэлектрической проницаемости металла можно записать как

$$\Delta\varepsilon_m(\hbar\omega) = \Delta\varepsilon_m^{\text{inter}}(\hbar\omega) + \Delta\varepsilon_m^{\text{Drude}}(\hbar\omega). \quad (87)$$

Здесь вклад межзонных переходов [125]

$$\Delta\varepsilon_m^{\text{inter}}(\hbar\omega) = \sum_n C_{m,n} \frac{1}{(\hbar\omega)^2} \times \left[\frac{E_{m,n}^4}{(E_{m,n}^2 - \hbar\omega(\hbar\omega + i\gamma_{m,n}))^2} - 1 \right], \quad (88)$$

а друдеский вклад

$$\Delta\varepsilon_m^{\text{Drude}}(\hbar\omega) = -\frac{(\hbar\omega_p + \Delta\hbar\omega_p)^2}{\hbar\omega(\hbar\omega + i(\gamma_m + \Delta\gamma_m))} + \frac{\hbar\omega_p^2}{\hbar\omega(\hbar\omega + i\gamma_m)}. \quad (89)$$

Изменение диэлектрической проницаемости полупроводника можно представить в виде [125]

$$\Delta\varepsilon_s(\hbar\omega) = \sum_n C_{s,n} \frac{1}{(\hbar\omega)^2} \left[\frac{E_{s,n}^2}{E_{s,n}^2 - \hbar\omega(\hbar\omega + i\gamma_{s,n})} - 1 \right]. \quad (90)$$

Для исследуемых структур мы будем различать два типа возбуждения: ниже и выше запрещенной энергетической зоны полупроводника E_g [120].

8.2.1. Первый тип возбуждения (подзонное возбуждение).

Для энергии возбуждения, меньшей ширины запрещенной зоны полупроводника (подзонное возбуждение), лазерный импульс возбуждает в основном электроны в тонком поверхностном слое металла на границе с полупроводником. Толщину этого слоя можно оценить как $l_{\text{ex}} = 2/\alpha_m(\hbar\omega) \approx 20-30$ нм (для Ni и Cr). Неравновесные носители заряда металла проникают над барьером Шоттки (и частично через него) в полупроводник. Прямое же возбуждение полупроводника может происходить только за счет двухфотонного поглощения.

Из измерений разностной оптической плотности следует, что отклик структуры ZnSe/Cr отличается от откликов структур ZnSe/Cu и ZnS/Ni [118–121]. В чем причина такого различия? Физические процессы, характерные для подзонного типа возбуждения, и соответствующая иерархия времен рассмотрены в работе [120]. Отметим основные из них:

1) возбуждение электронов в металле, приводящее к изменению граничных условий для собственных мод микрорезонатора;

2) тунелирование неравновесных носителей заряда в полупроводник;

3) двухфотонное поглощение в полупроводниковом слое;

4) разогрев структуры.

Первые два процесса непосредственно связаны с зонной структурой металла, и поэтому фотоиндуцированный отклик определяется металлом.

Два типа электронных переходов приводят к изменению диэлектрической проницаемости металла: один связан с поглощением свободными носителями заряда (друдеский вклад в диэлектрическую проницаемость (89)), другой — с межзонными переходами (88). При поглощении свободными носителями заряда в поверхностном слое металла создается неравновесное распределение носителей заряда (электроны выше уровня Ферми и дырки ниже уровня Ферми) в широкой области энергий $E_F \pm \hbar\omega_{\text{pu}}$.

Межзонные переходы возмущают распределение носителей заряда в узкой области, соответствующей энергии перехода. За времена порядка времени электрон-электронных столкновений наиболее сильные изменения функции распределения электронов происходят вблизи уровня Ферми, что и приводит к наиболее заметным изменениям диэлектрической проницаемости металла. Поэтому наличие межзонных переходов в (или из) области уровня Ферми крайне эффективно с точки зрения наблюдения изменений диэлектрической проницаемости металла [126].

Часть возбужденных ультракоротким импульсом неравновесных носителей заряда металла проникает над барьером Шоттки (или через него) в полупроводник. Если скорость электронов на поверхности Ферми металла $v_F \approx 10^8$ см с⁻¹, а толщина возбужденного слоя металла $l_{\text{ex}} \approx 2/\alpha_m(\hbar\omega) = 20-30$ нм, то время пролета электрона через барьер можно оценить как $\tau_b \approx 10$ фс. Эта оценка находится в хорошем согласии с наблюдаемым разностным откликом (рис. 24) для отрицательных временных задержек ($t_d \approx -0,04$ пс), когда отклик определяется изменением диэлектрической проницаемости хрома, хотя для нулевой задержки отклик определяется изменением диэлектрической проницаемости полупроводника.

После установления квазиравновесия в электронной подсистеме металла и полупроводника барьер Шоттки становится непроницаемым для большинства квазиравновесных электронов. Дырки, инжектированные в полупроводник из металла на начальном этапе возбуждения, "всплывают" в валентной зоне и проникают назад в металл. Плотность инжектированных электронов пропорциональна плотности состояний в металле на высоте барьера Шоттки. Высота барьера Шоттки на границе полупроводника n -типа с металлом $\Phi_b \leq E_g/2$. Инжектированные неравновесные носители в полупроводнике изменяют его диэлектрическую проницаемость. За время

действия импульса возбуждения электроны из металла проникают в полупроводник на глубину в несколько десятков нанометров и за время порядка 1 пс распределяются по всему объему пленки. Время инжектирования ограничивается временем электрон-электронной релаксации [120].

Металлы, использованные в структурах микрорезонатора, принадлежат третьей группе переходных металлов. Зонная структура переходных металлов характеризуется пятью узкими d -зонами, которые пересекаются и гибридизируются с широкой зоной почти свободных электронов, образованных из s - и p -состояний. Отличия в электронной структуре одного переходного металла от другого связаны прежде всего с относительным положением sp - и d -зон, их шириной и степенью заполнения, определяющих положение уровня Ферми.

Проанализируем отличия в плотности состояний и межзонных переходах, связанные с различным положением уровня Ферми относительно d -зон.

Хром (3d-переходный металл). В Cr широкие d -зоны приблизительно наполовину заполнены и перекрываются с sp -зонами на уровне Ферми. Плотность состояний на уровне Ферми мала и увеличивается по мере возрастания $|E - E_F|$ [132]. В отличие от Cu и Ni у Cr нет энергетической запрещенной зоны для межзонных переходов. Поэтому изменение диэлектрической проницаемости Cr можно описать только с помощью друдевского вклада (89), где $\Delta\hbar\omega_p$ — изменение плазменной частоты ($\hbar\omega_p = 6,27$ эВ [125]) и $\Delta\gamma_m$ — изменение скорости релаксации электронов ($\gamma_m = 0,063$ эВ [125]). Высота барьера Шоттки для структуры ZnSe/Cr точно не известна, но она порядка 1 эВ. Следовательно, можно ожидать, что изменение диэлектрической проницаемости Cr после возбуждения будет едва заметным, так как вклад межзонных переходов отсутствует. В то же время Cr будет эффективным инжектором электронов и дырок [133], поскольку плотность состояний вблизи энергии барьера Шоттки высока.

Изменение диэлектрической проницаемости Cr рассчитывалось в рамках друдеской модели. Из проведенного анализа следует, что друдеский вклад в изменение диэлектрической проницаемости Cr мал и им можно пренебречь. Это заключение подтверждается измерением разностной оптической плотности чистой пленки Cr при возбуждении фемтосекундными импульсами, где разностный сигнал (в пределах точности измерений) не наблюдался.

Никель (3d-переходный металл). В Ni d -зоны (с шириной 4 эВ и высокой плотностью состояний) почти заполнены и уровень Ферми расположен вблизи верхнего края d -зоны [127]. Для энергий выше уровня Ферми (на 1 эВ) плотность состояний мала и определяется sp -зонами. Имеется группа межзонных переходов из глубоколежащих d -зон в окрестность уровня Ферми. Они расположены в области 2,3 эВ и наблюдаются как слабая структура в экспериментальных стационарных спектрах. Это связано с тем, что начальные и конечные состояния — состояния d -типа и переход $d \rightarrow d$ запрещен. Для Ni изменение диэлектрической проницаемости в зависимости от температуры мало [128], хотя термомодуляционные эксперименты [129] показали, что имеется характерная структура в $\Delta\epsilon_{m2}(\hbar\omega)$ вблизи уровня Ферми, обращающаяся в нуль при 2,3 эВ. Для ZnS/Ni высота барьера Шоттки $\Phi_b \approx 1,7$ эВ. Следова-

тельно, можно ожидать, что возбуждение металла слабо изменяет оптическую плотность исследуемой структуры, поскольку вклад от межзонных переходов мал и инжектирование электронов в полупроводник также мало из-за низкой плотности состояний как ниже, так и выше энергии барьера Шоттки.

Медь (3d-переходный металл). В Cu d -зона полностью заполнены и расположена ниже уровня Ферми [130]. Прямые переходы из d -зоны в окрестность уровня Ферми начинаются с 2,1 эВ. Эти переходы вызывают сильный сдвиг и уширение интерференционной моды в линейных спектрах отражения-поглощения тонкой пленки ZnSe на Cu по сравнению с аналогичными спектрами пленок ZnSe на Cr и Al (рис. 236). Таким образом, в Cu имеются два типа переходов, приводящих к изменению диэлектрической проницаемости: первые связаны с поглощением на свободных носителях заряда (друдеский вклад в диэлектрическую проницаемость (89)), вторые — с межзонными переходами, которые качественно описываются уравнением (88). Межзонные переходы приводят к заполнению электронных состояний выше уровня Ферми примерно на 0,2 эВ. Для ZnSe/Cu высота барьера Шоттки $\Phi_b \approx 1,1$ эВ.

Следовательно, можно ожидать, что возбуждение Cu сильно изменяет оптическую плотность исследуемой структуры, поскольку имеется существенный вклад межзонных переходов. В то же время инжектирование электронов в полупроводник мало по той же причине, что и для Ni: из-за низкой плотности состояний вблизи энергии барьера Шоттки.

Изменение диэлектрической проницаемости Cu можно представить в виде уравнений (87)–(89), где $\hbar\omega_p = 9,3$ эВ — плазменная частота и $\gamma_m = 33$ мэВ — скорость релаксации электронов [131]. Сравнение экспериментальных спектров разностной оптической плотности с линейными спектрами отражения-поглощения показывает, что основной вклад в фотоиндуцированные процессы в области энергий $\hbar\omega < 2,5$ эВ связан с изменением диэлектрической проницаемости Cu, в области более высоких энергий — с изменением диэлектрической проницаемости ZnSe. Друдеский вклад в изменение диэлектрической проницаемости Cu мал.

Анализ показал, что после возбуждения плазменная частота уменьшается на величину порядка 5 мэВ. Максимальное увеличение скорости релаксации $\Delta\gamma_m$ составляет около 100 мэВ. Существенное изменение ($|\Delta\epsilon_{m2}| \sim 1$) из-за вклада межзонных переходов в диэлектрическую проницаемость наблюдается в области переходов в окрестность уровня Ферми, расположенного при 2,15 эВ. Мнимая часть диэлектрической проницаемости увеличивается ниже уровня Ферми и уменьшается выше уровня Ферми.

Таким образом, электронная структура металлов определяет различия в фотоиндуцированных откликах пленок ZnS и ZnSe на этих металлах. Для структур на Ni и Cu отклик при временах задержки $t_d < 1$ пс определяется откликом тонкого металлического слоя, в то время как для структур на Cr отклик определяется изменением диэлектрической проницаемости полупроводника независимо от типа возбуждения: выше или ниже запрещенной энергетической зоны полупроводника. Для пленок ZnS и ZnSe на Cu этот отклик должен быть более выраженным, что и следует из экспериментальных данных, если сравнить амплитуды разностного отклика

на рис. 22а и 24 с амплитудами $\Delta D_R(\hbar\omega)$ на рис. 23а [119–121].

Другой вклад (в течение времени порядка длительности импульса) в изменение разностной оптической плотности при нулевых временных задержках связан с двухфотонным поглощением в полупроводнике. Отметим, что возможна также и генерация второй гармоники на границе раздела "металл–полупроводник", одноквантовое поглощение которой в полупроводнике должно приводить к тем же эффектам, что и двухфотонное поглощение. Спектральная зависимость двухфотонного поглощения непосредственно связана с собственными модами микрополости и повторяет форму линейного спектра поглощения образца. Двухфотонное поглощение вызывает изменение действительной части $\varepsilon_{s1}(\hbar\omega)$ полупроводника. Для подзонного возбуждения этот вклад отрицательный, что качественно согласуется с экспериментальным сигналом для разностной оптической плотности при временных задержках в окрестности нуля.

Интересно отметить, что время установления моды микрополости может быть больше времени наблюдаемой эволюции разностного спектра. Этот факт может быть важным для наблюдения нестационарного эффекта Казимира [23] и других явлений квантовой электродинамики.

Медленная стадия (на временах порядка 1 пс и более) в процессе релаксации фотоиндуцированного изменения спектра отражения исследуемых структур связана с электрон-фононным взаимодействием, вызывающим нагрев решетки электронной подсистемой. Изменение диэлектрической проницаемости вследствие этих процессов приводит к сдвигу мод микрополости и установлению их нового спектрального положения.

8.2.2. Второй тип возбуждения (надзонное возбуждение). Для энергии возбуждения, большей ширины запрещенной зоны полупроводника, лазерный импульс поглощается в тонком приповерхностном слое полупроводника (для ZnS и накачки $\hbar\omega_{pu3}$ толщина такого слоя $l_{ex} = 2/\alpha_{ZnS}(\hbar\omega_{pu3} \approx 40 \text{ нм})$ и создает неоднородное распределение горячих носителей в полупроводнике. Для надзонного возбуждения физические процессы, приводящие к наблюдаемому отклику исследуемых структур, и характерные временные масштабы этих процессов рассмотрены в работе [118], где показано, что основной вклад на временах $t_d < 1 \text{ пс}$ определяется однофотонным поглощением.

Возникновение неравновесных носителей заряда в полупроводниковом слое меняет диэлектрическую проницаемость полупроводника из-за заполнения состояний в зоне проводимости и опустошения состояний в валентной зоне (а также экранирования экситонных переходов). Это приводит к изменению диэлектрической проницаемости в области края поглощения $\hbar\omega \approx E_g$ и отрицательному изменению показателя преломления в области подзонных энергий. В области $\hbar\omega > E_g$ изменение диэлектрической проницаемости определяется поглощением на свободных носителях заряда и внутризонным поглощением. Вклад двухфотонных процессов по сравнению с однофотонными процессами мал, и им можно пренебречь.

Неравновесные электроны в тонком приповерхностном слое полупроводника релаксируют за счет электрон-

электронного и электрон-фононного взаимодействий и, диффундируя внутрь, заполняют постепенно весь объем полупроводникового слоя. Временная эволюция диэлектрической проницаемости полупроводника определяется этими процессами, при этом, как следует из рис. 22–25, время релаксации не превышает 0,5 пс. Аналогичные оценки времени релаксации неравновесных носителей заряда в пленках ZnSe на алюминии были получены ранее и из исследований перераспределения интенсивностей пиков LO-фононных повторений в спектрах горячей люминесценции (резонансного КРС) при изменении толщины пленок ZnSe [59, 109]. Оказалось, что время релаксации неравновесных фотоэлектронов на фоновых при комнатной температуре также было меньше 1 пс.

9. Заключение

Исследования оптических свойств кристаллов методами спектроскопии поверхностных электромагнитных волн показали, что в структурах типа "призма НПВО–зазор–металл" и "пленка полупроводника–металл" изначально нерадиационный поверхностный плазмон металла преобразуется в набор радиационных состояний, электромагнитное поле которых определяется дипольно-активными возбуждениями каждого вещества структуры и зависит от реальной геометрии эксперимента.

Результаты экспериментальных и теоретических исследований оптических свойств кристаллов свидетельствуют о том, что в кристаллах конечных размеров поглощение света осуществляется не в один шаг (фотон, поглощаясь, рождает фонон). Сначала фотон превращается в промежуточное состояние электромагнитного поля в кристалле — радиационный поляритон, и уже этот поляритон взаимодействует со всей совокупностью дипольно-активных состояний образца. В результате такого взаимодействия поляритон превращается в фонон или многофононное возбуждение, экситон или свободный электрон (дырку) либо в плазмон металлической подложки. Поглощение света при этом определяется вероятностями радиационного и ангармонического распадов поляритона. Поляритон многослойной тонкопленочной структуры является смешанным состоянием различных дипольно-активных возбуждений каждого вещества структуры.

В спектрах пленок отчетливо наблюдаются поглощение, термостимулированное излучение и люминесценция на частотах интерференционных мод, резкое возрастание поглощения света на частотах локальных колебаний примесей кристаллической решетки пленки (при совпадении с ними частоты интерференционной моды), увеличение интенсивности спектров спонтанного КРС при совпадении частоты падающего и (или) рассеянного света с частотой интерференционной моды. Все это свидетельствует о том, что интерференционные моды — реальные состояния электромагнитного поля в тонкопленочных структурах. Интерференционные моды однородно уширены, полуширина их полос в спектрах поглощения, термостимулированного излучения и люминесценции определяется в основном радиационным временем жизни. В определенных условиях радиационное время жизни рекордно мало среди всех известных осцилляторов: оно может составлять лишь несколько

десятков фемтосекунд. Интерференционные моды являются хорошо характеризруемыми в эксперименте аналогами мод полости, рассматриваемых в задачах квантовой электродинамики.

С помощью фемтосекундных лазерных импульсов можно селективно манипулировать граничными условиями в микрорезонаторе и управлять интерференционными модами, а также модифицировать временные, спектральные и пространственные характеристики наноструктур типа "полупроводник – металл". Это открывает определенные перспективы для возможных применений таких структур в качестве элементной базы оптоэлектроники.

В заключение считаю своим приятным долгом выразить благодарность Г.Н. Жижину, В.М. Аграновичу, Ю.Е. Лозовику, Т.А. Лесковой, В.И. Юдсону и А.Г. Мальшукову за многочисленные стимулирующие дискуссии и помощь в теоретических расчетах, а также Ю.А. Матвейцу, А.Л. Добрякову и В.М. Фарзтдинову за измерения на фемтосекундном спектрометре.

Работа выполнена частично при поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований и подпрограмм Минпромнауки "Фундаментальная спектроскопия" и "Фундаментальная метрология".

Список литературы

- Борн М, Уан К *Динамическая теория кристаллических решеток* (М.: ИЛ, 1958)
- Агранович В М *Теория экситонов* (М.: Наука, 1968)
- Norfield J J *Phys. Rev.* **112** 1555 (1958)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Теория поля* (М.: Наука, 1967)
- Поверхностные поляритоны. Электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред* (Под ред. В М Аграновича, Д Л Миллса) (М.: Наука, 1985)
- Поливанов Ю Н *УФН* **126** (2) 185 (1978)
- Denisov V N, Mavrin B N, Podobedov V B *Phys. Rep.* **151** 1 (1987)
- Брыксин В В, Мирлин Д Н, Фирсов Ю А *УФН* **113** 2967 (1974)
- Агранович В М *УФН* **115** 199 (1975)
- Optical Properties of Solids* (Ed. F Abelès) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1972)
- Nkoma J, Loudon R, Tilley D R *J. Phys. C: Solid State Phys.* **7** 3547 (1974)
- Fuchs R, Kliever K L *Phys. Rev.* **140** A2076 (1965)
- Kliever K L, Fuchs R *Phys. Rev.* **144** 495 (1966)
- Fuchs R, Kliever K L, Pardee W J *Phys. Rev.* **150** 589 (1966)
- Kliever K L, Fuchs R *Phys. Rev.* **150** 573 (1966)
- Kliever K L, Fuchs R *Adv. Chem. Phys.* **27** 355 (1974)
- Ruppin R, Engman R *Rep. Prog. Phys.* **33** 149 (1970)
- Де Мартини Ф *Квант. электрон.* **15** 1214 (1988)
- Weisbuch C, Benisty H, Houdré R *J. Lumin.* **85** 271 (2000)
- Berman P R (Ed.) *Cavity Quantum Electrodynamics* (Boston: Academic Press, 1994)
- Гиббс Х М *Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света* (М.: Мир, 1988)
- Виноградов Е А и др. *УФН* **169** 347 (1999)
- Lozovik Yu E, Tsvetus V G, Vinogradov E A *Phys. Scripta* **52** 184 (1995)
- Berreman D W *Phys. Rev.* **130** 2193 (1963)
- Balkanski M, Le Toullec R, in *Optic Properties of Dielectric Films* (Ed. N N Axelrod) (New York: Dielectrics and Insulation Division, Electrochemical Soc., 1968) p. 227
- Harbecke B, Heinz B, Grosse P *Appl. Phys. A* **38** 263 (1985)
- Раков А В *Спектрофотометрия тонкопленочных полупроводниковых структур* (М.: Сов. радио, 1975)
- Grosse P *TrAC: Trends Anal. Chem.* **8** 222 (1989)
- Otto A, in *Optical Properties of Solids. New Developments* (Ed. B O Seraphin) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1976) p. 677; Borstel G, Falge H J, Otto A, in "Surface and Bulk Phonon-polaritons Observed by Attenuated Total Reflection" *Solid State Physics* (Springer Tracts in Modern Physics, Vol. 74) (Berlin: Springer-Verlag, 1974) p. 107
- Виноградов Е А, Жижин Г Н *Письма в ЖЭТФ* **24** 84 (1976)
- Zhizhin G N et al. *Appl. Spectrosc. Rev.* **18** (2) 171 (1982)
- Виноградов Е А, Лескова Т А, Рябов А П *Оптика и спектроск.* **76** 311 (1994)
- Vinogradov E A *Phys. Rep.* **217** 159 (1992)
- Виноградов Е А, Хаммадов И И *Спектроскопия объемных и поверхностных фононов кристаллов* (Ташкент: ФАН, 1989)
- Vinogradov E A, Melnik N N, Turok O A, in *Research in Quantum Optics* (Eds A S Shumovsky et al.) (New York: Nova Sci. Publ. Inc., 1996) p. 65
- Valdez J B, Mattei G, Ushioda S *Solid State Commun.* **27** 1089 (1978)
- Денисов В Н и др. *ЖЭТФ* **94** 261 (1988)
- Виноградов Е А, Жижин Г Н, Яковлев В А *ЖЭТФ* **77** 968 (1979)
- Виноградов Е А, Жижин Г Н, Мальшуков А Г *ЖЭТФ* **73** 1480 (1977)
- Agranovich V M, Leskova T A *Prog. Surf. Sci.* **29** 169 (1988)
- Halevi P *Surf. Sci.* **76** 64 (1978)
- Гербштейн Ю М, Мирлин Д Н *ФТТ* **16** 2584 (1974)
- Виноградов Е А и др. *ЖЭТФ* **75** 1919 (1978)
- Виноградов Е А и др. *Оптика и спектроск.* **51** 1061 (1981)
- Alieva E V et al. *Phys. Status Solidi A* **175** 115 (1999)
- Mattei G et al. *Solid State Commun.* **44** 1495 (1982)
- Ushioda S, Loudon R, in *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Eds V M Agranovich, D L Mills) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982) p. 535
- De Martini F et al. *Phys. Rev. Lett.* **59** 2955 (1987)
- Björk G et al. *Phys. Rev. A* **44** 669 (1991)
- Optical Processes in Microcavities* (Adv. Ser. in Appl. Phys., Vol. 3, Eds R K Chang, A J Campillo) (Singapore: World Scientific, 1996)
- Лоудон Р *Квантовая теория света* (М.: Мир, 1976)
- Artoni M, Loudon R *Phys. Rev. A* **55** 1347 (1997)
- Yamamoto Y, Slusher R E *Phys. Today* **46** (6) 66 (1993)
- Баев В М и др. *ЖЭТФ* **74** 43 (1978)
- Reichert J et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 3232 (2000)
- Стирволт Д, Поттер Р, в кн. *Оптические свойства полупроводников* (Под ред. Р Уиллардсона, А Бира) (М.: Мир, 1970) с. 80
- Hisano K *J. Phys. Soc. Jpn* **25** 1091 (1970)
- Hisano K, Okamoto Y, Matsumura O *J. Phys. Soc. Jpn* **28** 425 (1970)
- Виноградов Е А и др. *ЖЭТФ* **78** 1030 (1980)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Электродинамика сплошных сред* (М.: Наука, 1982)
- Zhizhin G N et al., in *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Eds V M Agranovich, D L Mills) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982) p. 93
- Zhizhin G N, Yakovlev V A, in *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Eds V M Agranovich, D L Mills) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982) p. 275
- Antonova K T, Yakovlev V A, Zhizhin G N *Thin Solid Films* **151** 1 (1987)
- Водопьянов Л К и др. *ФТТ* **16** 1419 (1974)
- Proix F, Balkanski M *Phys. Status Solidi* **32** 119 (1969)
- Водопьянов Л К, Виноградов Е А *ФТТ* **16** 1432 (1974)
- Economou E N, Ngai K L *Adv. Chem. Phys.* **27** 265 (1974)
- Hadni A *Essentials of Modern Physics Applied to the Study of the Infrared* (Intern. Ser. of Monographs in Infrared Sci. and Technol., Vol. 2) (Oxford: Pergamon Press, 1967)
- Balkanski M, in *Optical Properties of Solids* (Ed. F Abelès) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1972) p. 529
- Виноградов Е А и др., в кн. *Новые методы спектроскопии* (Под ред. С Г Раутиана) (Новосибирск: Наука, 1982) с. 203
- Виноградов Е А и др. *ФТТ* **18** 2647 (1976)
- Kunc K *Ann. Phys. (Paris)* **8** 319 (1974)
- Бурлаков В М и др. *ФТТ* **22** 100 (1980)
- Степанов Б И *Основы спектроскопии отрицательных световых потоков* (Минск: Изд-во БГУ, 1961)
- Харрик Н *Спектроскопия внутреннего отражения* (М.: Мир, 1970)
- Baltes H P, in *Progress in Optics* Vol. 13 (Ed. E Wolf) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1976) p. 1

77. Born M, Wolf E *Principles of Optics* 3rd ed. (Oxford: Pergamon Press, 1965) Pt. 1.5
78. Гербштейн Ю М, Меркулов И А *ФТТ* **17** 1501 (1975)
79. Жижин Г Н, Киселев С А, Москалева М А *Оптика и спектроск.* **58** 916 (1985)
80. Vinogradov E A, in *Proc. 18-th Intern. Conf. on Infrared and Millimeter Waves, Colchester, United Kingdom, Sept. 6–10, 1993* (Proc. SPIE, Vol. 2104, Eds J R Birch, T J Parker) (Bellingham, Wash.: SPIE, 1993) p. 318
81. Robusto P F, Braunstien R *Phys. Status Solidi B* **107** 443 (1981)
82. Виноградов Е А и др. *ФТТ* **23** 580 (1981)
83. Жижин Г Н и др. *Изв. АН СССР. Сер. физ.* **46** 1097 (1982)
84. Vinogradov E A *Laser Phys.* **6** 326 (1996)
85. Бурлаков В М и др. *Оптика и спектроск.* **47** 926 (1979)
86. Vinogradov E A, Leskova T A *Phys. Rep.* **194** 273 (1990)
87. Agranovich V M, in *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Eds V M Agranovich, D L Mills) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982) p. 187
88. Vinogradov E A, Zhizhin G N, Yudson V I, in *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Eds V M Agranovich, D L Mills) (Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982) p. 145 [Поверхностные поляритоны (Электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред (Под ред. В М Аграновича, Д Л Миллса) (М.: Наука, 1985) с. 105
89. Vinogradov E A, in *The Second Intern. Workshop on Low-Energy Electrodynamics in Solids, Trest, Czech Republic, June 26–30, 1995; Ferroelectrics* **176** 271 (1996)
90. Vinogradov E A et al. *Solid State Commun.* **23** 915 (1977)
91. Троицкий Ю В *Многолучевые интерферометры отраженного света* (Новосибирск: Наука, 1985)
92. Kravtsov V E et al. *Solid State Commun.* **50** 741 (1984)
93. Alieva E V et al. *Phys. Lett. A* **152** 89 (1991)
94. Дмитрук Н Л, Литовченко В Г, Стрижевский В Л *Поверхностные поляритоны в полупроводниках и диэлектриках* (Киев: Наукова думка, 1989)
95. Виноградов Е А, Жижин Г Н *Оптика и спектроск.* **49** 172 (1980)
96. Займан Дж *Принципы теории твердого тела* (М.: Мир, 1968) Гл. 8
97. Волков А А и др., в сб. *Субмиллиметровая диэлектрическая спектроскопия твердого тела* (Труды ИОФАН, Т. 25) (М.: Наука, 1990) с. 3
98. Barker A S (Jr), Sievers A J *Rev. Mod. Phys.* **47** (Suppl. 2) S1 (1975)
99. Vodopyanov L K, Vinogradov E A *Cryst. Latt. Def.* **5** 125 (1974)
100. Виноградов Е А, Водопьянов Л К *ФТТ* **17** 3161 (1975)
101. Verleur H W, Barker A S (Jr) *Phys. Rev.* **155** 750 (1967)
102. Снайдер А, Лав Дж *Теория оптических волноводов* (М.: Радио и связь, 1987)
103. Хаус Х *Волны и поля в оптоэлектронике* (М.: Мир, 1988)
104. Мальшев В И *Введение в экспериментальную спектроскопию* (М.: Наука, 1979)
105. Agranovich V M, Mukamel S *Phys. Lett. A* **147** 155 (1990)
106. Connell G A N, Nemanich R J, Tsai C C *Appl. Phys. Lett.* **36** 31 (1980)
107. Lustig N, Faichtein R, Lannin J S *Phys. Rev. Lett.* **55** 1775 (1985)
108. Weisbuch C, Ulbrich R G, in *Light Scattering in Solids III* (Topics in Appl. Phys., Vol. 51, Eds M Cardona, G Güntherodt) (Berlin: Springer-Verlag, 1982) p. 207
109. Aaviksoo J J. *Lumin.* **48/49** 57 (1991)
110. Виноградов Е А и др. *ФТТ* **21** 2744 (1979)
111. Kovalenko S A, Ernsting N P, Ruthmann J *Chem. Phys. Lett.* **258** 445 (1996)
112. Farztdinov V M et al. *Phys. Rev. B* **56** 4176 (1997)
113. Vinogradov E A, in *Modern Problems of Laser Physics: MPLP'95, Novosibirsk, Aug. 28–Sept. 2, 1995* (Eds S N Bagayev, V I Denisov) (Novosibirsk: Siberian Division of Russian Acad. of Sci., 1996) p. 370
114. Vinogradov E A et al., in *Intern. Conf. on Optical Diagnostics of Materials and Devices for Opto-, Micro-, and Quantum Electronics, Kiev, Ukraine, May 11–13, 1995* (Proc. SPIE, Vol. 2648, Eds S V Svechnikov, M Y Valakh) (Bellingham, Wash.: SPIE, 1995) p. 2
115. Vinogradov E A et al., in *Photon Echo and Coherent Spectroscopy 97, Yoshkar-Ola, Russia, June 29–July 4, 1997* (Proc. SPIE, Vol. 3239, Ed. V V Samartsev) (Bellingham, Wash.: SPIE, 1997) p. 294
116. Виноградов Е А и др. *Изв. РАН. Сер. физ.* **62** 221 (1998)
117. Vinogradov E A et al. *Laser Phys.* **8** 316 (1998)
118. Vinogradov E A et al. *Laser Phys.* **8** 620 (1998)
119. Vinogradov E A et al., in *ICONO'98: Ultrafast Phenomena and Interaction of Superstrong Laser Fields with Matter. Nonlinear Optics and High-Field Physics, Moscow, Russia, June 29–July 3, 1998* (Proc. SPIE, Vol. 3735, Eds M V Fedorov et al.) (Bellingham, Wash.: SPIE, 1999) p. 105
120. Виноградов Е А и др. *Изв. РАН. Сер. физ.* **63** 1058 (1999)
121. Vinogradov E A et al. *Laser Phys.* **9** 215 (1999)
122. Bakker H J, Hunsche S, Kurz H *Rev. Mod. Phys.* **70** 523 (1998)
123. Merlin R *Solid State Commun.* **102** 207 (1997)
124. Albert O et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 29 (1996)
125. Мазин И И и др. *Труды ФИАН* **190** 4 (1988)
126. Dobryakov A L, Farztdinov V M, Lozovik Yu E *Phys. Rev. B* **47** 11515 (1993); Добряков А Л и др. *Оптика и спектроск.* **76** 975 (1994)
127. Wang C S, Callaway J *Phys. Rev. B* **9** 4897 (1974); Smith N V, Lässer R, Chiang S *Phys. Rev. B* **25** 793 (1982)
128. Johnson P B, Christy R W *Phys. Rev. B* **11** 1315 (1975)
129. Hanus J, Feinleib J, Scouler W J *Phys. Rev. Lett.* **19** 16 (1967); Cardona M *Modulation Spectroscopy* (Solid State Physics, Suppl. 11, Eds F Seitz, D Turnbull, Ehrenreich) (New York: Academic Press, 1969) p. 133
130. Jepsen O, Glözel D, Mackintosh A R *Phys. Rev. B* **23** 2684 (1981)
131. Rosei R, Lynch D W *Phys. Rev. B* **5** 3883 (1972)
132. Kulikov N I et al. *Phys. Rev. B* **36** 929 (1987)
133. Vinogradov E A et al. *Laser Phys.* **11** 1147 (2001)

Semiconductor microcavity polaritons

E.A. Vinogradov

*Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences,
142190 Troitsk, Moscow region, Russian Federation
Tel. (7-095) 334-05 79. Fax (7-095) 334-08 86
E-mail: evinogr@isan.troitsk.ru*

Optical properties of wide gap semiconductor films on metal substrates are studied experimentally — by IR spectroscopy, Raman scattering, and femtosecond spectroscopy — and analyzed theoretically within the macroscopic crystal optics framework. It is shown that the optical spectra of such planar structures (microcavities) yield information about electromagnetic excitations in the bulk and at the surfaces of the structure. The optical spectra are determined by the interaction of all dipole active excitations in the component materials with the electromagnetic modes of the microcavity which, in their turn, are determined by the dielectric constant of each component, by thickness of the microcavity, and by the experimental conditions.

PACS numbers: **71.36.+c**, **78.20.Bh**, **78.40.-q**, **78.66.-w**

Bibliography — 133 references

Received 29 January 2002, revised 4 June 2002