

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК**ДОБАВОЧНЫЕ СВЕТОВЫЕ ВОЛНЫ В КРИСТАЛЛАХ
И ЭКСИТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ *)****С. И. Пекар****1. ВВЕДЕНИЕ**

В кристаллооптике среда характеризуется тензором диэлектрической проницаемости $\epsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ (ω — частота, \mathbf{k} — волновой вектор электромагнитной волны). Пространственная дисперсия, т. е. зависимость ϵ_{ij} от \mathbf{k} , введена очень давно¹, но до последних лет считалось, что она существенна лишь при рассмотрении вращения плоскости поляризации света в гиротропных кристаллах; в остальном же она вносит лишь ничтожные поправки в кристаллооптику — порядка a/λ (a — постоянная решетки, λ — длина волны света). Даже при рассмотрении самих эффектов пространственной дисперсии в кристаллах вплоть до 1957 г. молчаливо предполагалось², что сохраняется обычное двупреломление. При данном направлении распространения s существует две волны с векторами индукции \mathbf{D}_1 и \mathbf{D}_2 , взаимно перпендикулярными и перпендикулярными к s .

Такая оценка малости эффектов, связанных с пространственной дисперсией, в большинстве случаев справедлива. Однако, как мы показали в 1957 г.³, если частота света приближается к какой-нибудь полосе экситонного поглощения, приведенные выше оценки совершенно неприменимы: учет пространственной дисперсии существенно меняет ϵ_{ij} , даже при $\lambda \gg a$. В результате существенно меняется и частотная зависимость показателей преломления, становятся возможными произвольно большие отклонения от известного соотношения между интегральным поглощением полосы и силой осциллятора элементарной ячейки кристалла и др. Наиболее интересным результатом работы³ было предсказание существования добавочных световых волн в окрестности экситонных полос поглощения, помимо общеизвестных волн двойного лучепреломления. Было показано, что в кристалле возможны, например, две световые волны, обладающие одинаковой поляризацией и направлением распространения, но разными скоростями.

После опубликования работы³ теория добавочных волн начала интенсивно развиваться, и за истекшие четыре года в этой области появилось много работ⁴⁻³⁴. Добавочные световые волны удалось обнаружить экспериментально в антрацене^{23, 24} и в записи меди²⁶. Попытки их экспериментального обнаружения в некоторых других кристаллах уже дали предварительные положительные результаты.

Исследование показало, что добавочные волны возникают только вблизи экситонных полос поглощения. При этом под экситоном понимается возбуждение кристалла, обладающее единственным непрерывным квантовым

*) Доклад, прочитанный на пленарном заседании VIII Совещания по физике низких температур в Киеве 13 октября 1961 г.

числом — квазиимпульсом \mathbf{k} (остальные квантовые числа дискретны)³. Требуется также, чтобы упомянутый экситон с достаточной точностью представлял стационарное состояние кристалла, т. е. чтобы он обладал достаточно большим временем жизни по отношению к тепловым переходам (рассеянию на фононах, переходу в «многофононный ветер» и пр.). Поскольку время жизни (пробега) экситона растет с понижением температуры^{28, 29}, в области низких температур добавочные волны и связанные с ними явления должны проявляться более резко.

2. ДОБАВОЧНЫЕ СВЕТОВЫЕ ВОЛНЫ ПРИ УЧЕТЕ ПОГЛОЩЕНИЯ

Если частота света ω близка к $\omega_0 \equiv \mathcal{E}(0)/\hbar$, где $\mathcal{E}(\mathbf{k})$ — изолированная экситонная энергетическая зона, то удельный дипольный момент поляризации кристалла $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$, возникающий при прохождении световой волны, равен^{3,9}

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} + \mathbf{P}_0^* e^{-i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)}, \quad \mathbf{P}_0 = \beta(\omega, \mathbf{k}) E_0^{\text{внеш}}, \quad (1)$$

где β — тензор второго ранга,

$$\beta_{xy} = \beta'_{xy} + \frac{Q_{xy} + \alpha_{xy}}{\mathcal{E}(\mathbf{k}) + H^a - \hbar\omega}, \quad (2)$$

$$Q_{xy} = V(\mathbf{P}_{0\mathbf{k}})_x (\mathbf{P}_{0\mathbf{k}})_y, \quad \mathbf{P}_{0\mathbf{k}} = \langle \Psi^0 | \hat{\mathbf{P}} | \Psi_{\mathbf{k}} \rangle \quad (3)$$

Здесь β'_{xy} — постоянные, V — объем области цикличности кристалла, Ψ^0 и $\Psi_{\mathbf{k}}$ — основное и экситонное состояния кристалла, \mathbf{k} — квазиимпульс экситона, совпадающий с волновым вектором света, $\hat{\mathbf{P}}(0)$ — оператор удельного дипольного момента в макроточке $\mathbf{r}=0$. Начало отсчета энергии выбрано так, что в состоянии Ψ энергия равна нулю. Скаляр H^a и тензор α комплексны; они отсутствуют в случае бесконечно большого времени жизни экситона³ и пропорциональны вероятности рассеяния или теплового распада экситона⁹, которая предполагается малой.

Внешнее электрическое поле, возмущающее кристалл, равно

$$\mathbf{E}^{\text{внеш}} = \mathbf{E}_0^{\text{внеш}} e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} + (\mathbf{E}_0^{\text{внеш}})^* e^{-i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)}, \quad (4)$$

где

$$\mathbf{E}_0^{\text{внеш}} \equiv \mathbf{E}_0 - \mathbf{E}'_0, \quad \mathbf{E}'_0 = -4\pi(\mathbf{P}_0 \mathbf{s}) \mathbf{s}, \quad \mathbf{s} \equiv \frac{\mathbf{k}}{|\mathbf{k}|}$$

Здесь \mathbf{E}_0 — амплитуда полного макрополя, а \mathbf{E}'_0 — амплитуда безвихревого поля, порожденного без запаздывания фиктивными зарядами диэлектрической поляризации, возникающими в кристалле при прохождении волны. Если в кристалл не введены посторонние заряды, то $\mathbf{E}_0^{\text{внеш}}$ совпадает с вихревой (поперечной) частью \mathbf{E}_0 .

$$\mathbf{E}_0^{\text{внеш}} = \eta \mathbf{E}_0, \quad \eta_{xy} = \delta_{xy} - \varepsilon_{xys_y}. \quad (5)$$

Если, как обычно, предположить, что электрическое поле, индукция и магнитное поле пропорциональны $e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)}$, где $\mathbf{k} = \frac{\omega n}{c} \mathbf{s}$, а n — показатель преломления волны, то система уравнений Максвелла сводится к соотношениям

$$\mathbf{D}_0 = n^2 \eta \mathbf{E}_0; \quad \mathbf{D}_0 = \gamma \mathbf{E}_0, \quad \text{где } \gamma_{xy}(\omega, \mathbf{k}) = \delta_{xy} + 4\pi[\beta(\omega, \mathbf{k}) \eta]_{xy}. \quad (6)$$

Условие разрешимости (6) имеет вид

$$(s, \gamma s) n^4 + [(s, \gamma^2 s) - (s, \gamma s) \text{sp } \gamma] n^2 + \begin{vmatrix} \gamma_{xx} & \gamma_{xy} & \gamma_{xz} \\ \gamma_{yx} & \gamma_{yy} & \gamma_{yz} \\ \gamma_{zx} & \gamma_{zy} & \gamma_{zz} \end{vmatrix} = 0. \quad (7)$$

Из этого уравнения определяются значения n . Если пренебречь зависимостью γ от \mathbf{k} , (7) превратится в квадратное уравнение относительно n^2 и получатся две волны обычного дупреломления. Если же учесть зависимость γ от \mathbf{k} , т. е. от n , (7) становится уравнением более высокой степени относительно n , и из него определяются не два, а больше значений n и столько же решений уравнений Максвелла, имеющих вид плоской волны. Таким образом, возникают добавочные волны. $\mathcal{E}(\mathbf{k})$, вообще говоря, не может быть разложено по степеням $k_x, k_y, k_z^{7,9}$, не может быть разложено по степеням $|\mathbf{k}|$ для заданного направления \mathbf{s} . Рассмотрим случай кристалла с центром симметрии, когда это разложение содержит только четные степени:

$$\mathcal{E}(\mathbf{k}) = \mathcal{E}_s + \frac{\hbar^2 |\mathbf{k}|^2}{2M_s} + \dots, \quad (8)$$

\mathcal{E}_s и M_s не зависят от $|\mathbf{k}|$, но зависят от направления \mathbf{s} .

Если ввести обозначения $\gamma' = I + 4\pi\beta'\eta$, $I_{xy} = \delta_{xy}$:

$$\left. \begin{aligned} \mu_s &= \frac{2M_s c^2}{\hbar\omega} \left(1 - \frac{\mathcal{E}_s + H^a}{\hbar\omega} \right) \cong \frac{2M_s c^2}{\hbar\omega_0^2} \left(\omega - \omega_0 - \frac{H^a}{\hbar} \right), \\ B_s &= \frac{8\pi M_s c^2}{\hbar^2 \omega^2} (Q + a) \cong \frac{8\pi M_s c^2}{\hbar^2 \omega_0^2} (Q + a), \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

то подстановка (2) и (8) в выражение (6) для γ даст

$$\gamma = \gamma' + \frac{B_s \eta}{n^2 - \mu_s}. \quad (10)$$

При этом степень уравнения (7) по отношению к n^2 будет зависеть от симметрии кристалла и направления распространения \mathbf{s} . Это уравнение может быть решено для конкретных случаев.

Ниже рассматриваются экситоны, фотовозбуждение которых разрешено в дипольном приближении $\mathbf{P}_{0\mathbf{k}} \cong \lim_{|\mathbf{k}| \rightarrow 0} \mathbf{P}_{0\mathbf{k}}$. Рассмотрим, для

простоты, случай кристалла с симметрией не ниже ромбической, в котором главные оси тензора ε_{ij} совпадают с кристаллическими осями второго или четвертого порядка. Последние выберем в качестве декартовых координат. Если направление луча \mathbf{s} совпадает с одной из этих координатных осей, то последние остаются главными осями ε_{ij} и при учете зависимости ε_{ij} от \mathbf{k} . В этом случае $\mathbf{P}_{0\mathbf{k}}(|\mathbf{k}| \rightarrow 0)$ может быть направлен лишь вдоль одной из упомянутых главных осей. Предположим, что у светового луча и взаимодействующего с ним экситона $s_x = s_y = 0$, $s_z = 1$. Уравнение (7) в этом случае решается элементарно. Поляризация экситона и световой волны в этом случае может быть либо продольной^{3, 9, 17}:

$$\mathbf{P}_{0\mathbf{k}} \parallel \mathbf{E}_0 = \mathbf{E}'_0 = -4\pi\mathbf{P}_0 \parallel \mathbf{s}, \quad \mathbf{D}_0 = 0, \quad n^2 = \mu_{||s}(\omega), \quad (11)$$

либо поперечной (для определенности, параллельной Ox):

$$\mathbf{P}_{0\mathbf{k}} \parallel Ox, \quad E_{0y} = E_{0z} = 0, \quad E_{0x} = \begin{cases} E_+ & n_+^2 = \frac{1}{2}(\mu_s + \gamma'_{xx}) + \sqrt{\frac{1}{4}(\mu_s - \gamma'_{xx})^2 + B_{sxx}}, \\ E_- & n_-^2 = \frac{1}{2}(\mu_s + \gamma'_{xx}) - \sqrt{\frac{1}{4}(\mu_s - \gamma'_{xx})^2 + B_{sxx}}. \end{cases} \quad (12)$$

Как видим, существует две волны с одинаковой поляризацией и разными показателями преломления. При рассмотренной выше поляризации экситона $\mathbf{P}_{0\mathbf{k}} \equiv \mathbf{P}_{0\mathbf{k}}^{(x)} \parallel Ox$, кроме волн (12), возможна еще обычная поперечная световая волна, совершенно не взаимодействующая с данным экситоном:

$$E_{0x} = E_{0z} = 0, \quad E_{0y} \neq 0, \quad n = \sqrt{\gamma'_{yy}}. \quad (13)$$

Если главные оси тензора ϵ_{ij} — x и y — являются вырожденными, т. е. z является оптической осью кристалла (сингонии ромбоэдрическая, тетрагональная, гексагональная и кубическая), то экситон тоже двукратно вырожден, $P_{0k}^{(x)}$ и $P_{0k}^{(y)}$ взаимно равны и одновременно отличны от нуля.

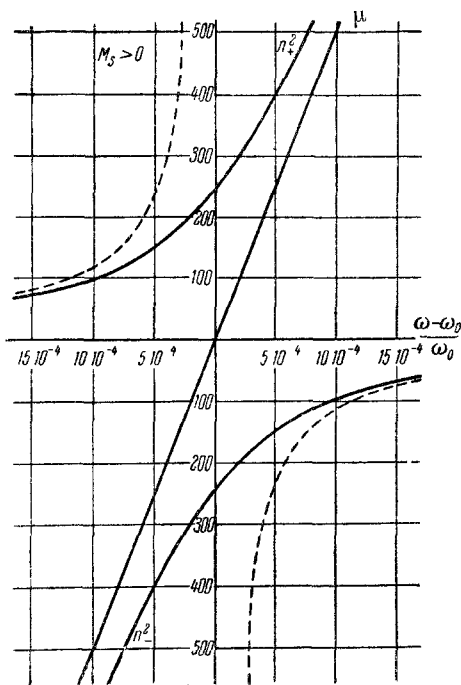


Рис. 1. Зависимость показателей преломления поперечных световых волн от частоты в отсутствие поглощения.

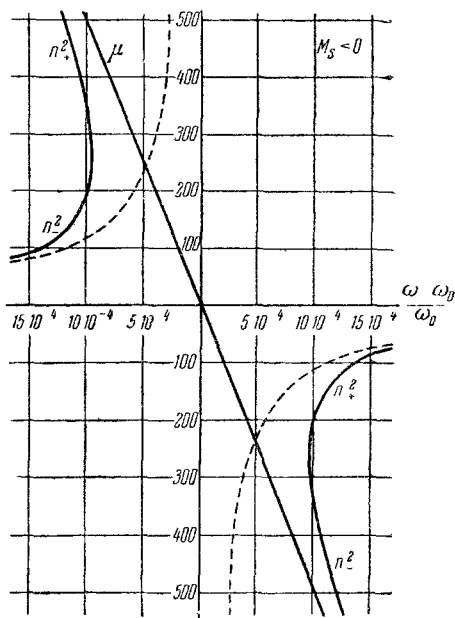


Рис. 2. Зависимость показателей преломления поперечных световых волн от частоты в отсутствие поглощения.

В этом случае в окрестности экситонной полосы существуют поперечные волны только типа (12) (четыре волны, считая волны с разной поляризацией разными), причем их амплитуды E_{\pm} произвольно ориентированы в плоскости x, y . Волн типа (13) не существует.

Если время жизни (рассеяния) экситона бесконечно, то в (2) величины H^a и α равны нулю⁹, следовательно, свет в кристалле совершенно не поглощается, как бы ни была велика сила осциллятора фотоперехода. Для этого случая дисперсионные кривые, отвечающие формулам (12), представлены на рис. 1 и 2 сплошными линиями. Графики соответствуют следующим значениям параметров:

$$\mathcal{E}_s = 2\epsilon\hbar, \quad a = 10a_0 \quad \left(a_0 = \frac{\hbar^2}{me^2} = 0,529 \text{ \AA} \right), \quad \gamma'_{ax} = 2.$$

Сила осциллятора, отнесенная к элементарной ячейке кристалла, $f=0,1$.

Рис. 1 соответствует случаю $M_s = m$, при этом $B_{sxx} = 58400$; рис. 2. соответствует M_s и B_{sxx} таким же по величине, но отрицательным. Этот новый вид частотной зависимости показателей преломления (12) был впервые получен в нашей работе³ (см. также⁴).

В случае конечного, но большого времени жизни экситона по отношению к тепловым переходам, когда H^a и α малы, в (2) можно пренебречь α и вещественной частью H^a , но необходимо сохранить мнимую часть H^a ,

так как в рассматриваемой области $\mathcal{E}(\mathbf{k}) - \hbar\omega \approx 0$ H^a зависит от ω и \mathbf{k} ⁹. Но поскольку \mathbf{k} мало, можно $H^a(\omega, \mathbf{k})$ заменить на $H^a(\omega, 0)$. Частотная зависимость H^a еще не исследована. Если предположить, что она достаточно плавная, и учесть, что член H^a вообще актуален только в небольшом диапазоне частот $\omega \approx \omega_0$, то можно приближенно считать H^a постоянной мнимой величиной. В (9) μ_s становится комплексным: $\mu_s = \mu'_s + i\mu''_s$, где⁹

$$\mu''_s = \frac{2M_s c^2}{\hbar^2 \omega_0^2} iH^a, \quad iH^a > 0. \quad (14)$$

В результате, если показатели преломления представить в виде $n = n' + in''$, их частотная зависимость, определяемая формулой (12), имеет вид, изображенный на рис. 3 и 4. Здесь были приняты те же значения параметров, что и при построении рисунков 1 и 2, но введена мнимая добавка (14) в μ_s : $\mu''_s = 10$, что соответствует $iH^a/\hbar = 6,1 \cdot 10^{10} \text{ сек}^{-1}$. Рис. 3 и 4 отвечают случаям $M_s = m$ и $M_s = -m$ соответственно. На рис. 4 при $-\mu'_s > \gamma'_{xx}$ $n_1 = n_-$, $n_2 = n_+$; при $-\mu'_s < \gamma'_{xx}$ $n_1 = n_-$, $n_2 = n_-$.

Привлекает внимание почти симметричный ход кривых на рис. 3 и 4. Симметрия действительно должна иметь место в области, где $|n_{\pm}^2| \gg \gamma'_{xx}$. Тогда можно приближенно в (12) отбросить член γ'_{xx} ; в результате получается

$$\begin{aligned} n'_-(\omega - \omega_0) &= \pm n''_+(\omega_0 - \omega); \\ n''_-(\omega - \omega_0) &= \pm n'_+(\omega_0 - \omega) \end{aligned} \quad (15)$$

Как видно из рис. 3, коэффициент экспоненциального затухания волны в пространстве n'' у «—»-волны значительно больше, чем у «+»-волны. Зависимость n''_+ от ω изображается кривой с максимумом, а зависимость n''_- от ω — монотонной кривой. Если просвещаемая пластинка кристалла достаточно толста, то сквозь нее пройдет практически только одна менее затухающая «+»-волна. Интенсивность света, прошедшего сквозь пластинку, будет монотонно зависеть от ее толщины l : $J \sim \exp\left(\frac{-2\omega n''_+}{c} l\right)$. Следовательно, при $M_s > 0$ в случае толстых пластинок должен соблюдаться закон Ламберта—Бугера и можно ввести понятие коэффициента поглощения $2\omega n''_+/c$ как удельной характеристики вещества. Форма полосы поглощения дается кривой $n''_+(\omega)$ на рис. 3. Ее максимум лежит с фиолетовой стороны от «дисперсионной частоты» ω_0 .

Если же пластинка тонка, то обе волны (12) после выхода из пластинки могут иметь сравнимые амплитуды. Поскольку эти волны когерентны и одинаково поляризованы, они будут интерферировать после выхода из пластинки. Разность фаз этих волн $\frac{\omega}{c}(n'_+ - n'_-)l$ зависит от толщины пластинки l . В результате интенсивность света, прошедшего сквозь пластинку, будет не монотонной, а осциллирующей функцией l ²³ (это подробнее рассмотрено в следующем параграфе). Поэтому невозможно сохранить понятие коэффициента поглощения как удельной характеристики вещества.

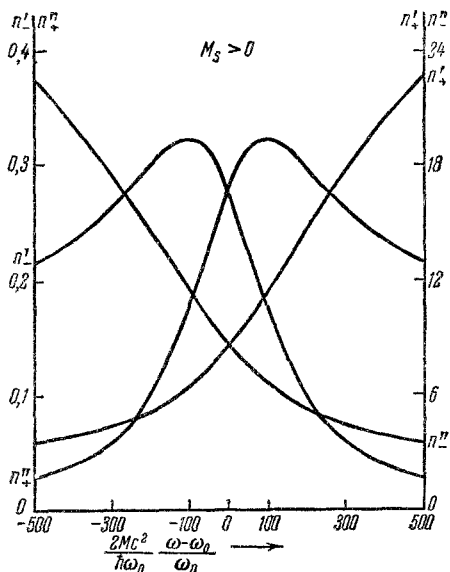


Рис. 3. Зависимость вещественной (n') и мнимой (n'') частей показателей преломления поперечных световых волн от частоты при учете поглощения.

В случае $M_s < 0$, как видно из рис. 4, только с фиолетовой стороны от максимума полосы поглощения $n_1' > n_2''$. Поэтому только в этой области частот в случае толстой пластинки проходить будет лишь волна «2», $\frac{2\omega n_2''}{c}$ приобретает смысл удельного коэффициента поглощения света. С красной

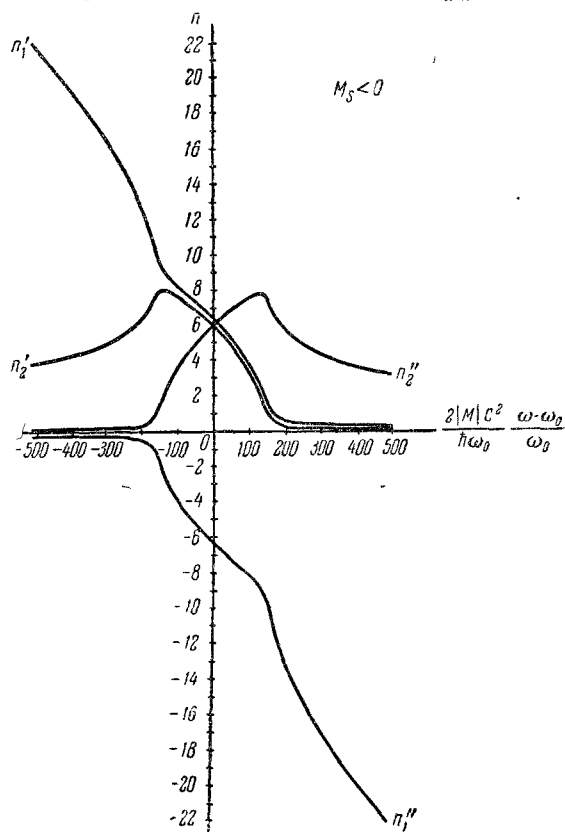


Рис. 4 Зависимость вещественной (n') и мнимой (n'') частей показателей преломления поперечных световых волн от частоты при учете поглощения.

$= n_1' + in_1''$ должен быть выбран так¹, чтобы волна $e^{i(\frac{\omega}{c}n_1z - \omega t)}$ затухала, углубляясь в кристалл. Пусть z возрастает в глубину кристалла, тогда должно быть $n_1'' > 0$, $n_1' < 0$. Интересно, что при этом фазовая скорость волны направлена из глубины кристалла к его поверхности, т. е. навстречу падающей волне. Групповая же скорость волны направлена в глубину кристалла.

Если в разложении (8) сохранить члены с более высокими степенями $|k|$, то и в (10) в знаменателе появятся более высокие степени n . При этом степень уравнения (7) по отношению к n возрастает и появляются добавочные корни. Означает ли это дальнейшее появление добавочных волн сверх тех, что рассмотрены выше? Исследование показывает, что новые корни n не имеют физического смысла, так как они отвечают настолько большим $|k|$, при которых разложение (8) расходится (получается $\lambda < a$).

Не следует думать, что введение пространственной дисперсии в тензор диэлектрической проницаемости должно вообще приводить к добавочным электромагнитным волнам. Дело в том, что добавочные корни n

же стороны от максимума полосы может быть $n_1'' \approx n_2''$ и сквозь пластинку любой толщины в равной мере проходят обе волны. В результате невозможно сохранить понятие удельного коэффициента поглощения света вследствие вышеупомянутой неустранимой интерференции двух волн, выходящих из пластинки.

Если, игнорируя эту интерференцию, экспериментатор будет традиционно определять частотную зависимость коэффициента поглощения, предполагая, что интенсивность прошедшего света монотонно экспоненциально убывает с l , то это должно привести к невоспроизводимости формы полосы, экспериментально полученной при различных l . На такую невоспроизводимость было обращено внимание в³⁵.

Согласно рис. 4, n_1' и n_1'' противоположны по знаку. В случае падения света из вакуума на полубесконечный кристалл знак перед комплексным $n_1 =$

в преобладающем большинстве случаев не возникают или не имеют физического смысла. Экситон, по-видимому, является пока единственным исключением из этого правила. В кристалле, например, вблизи неэкситонных полос поглощения учет пространственной дисперсии не приводит к добавочным волнам. Другим примером является плазма (ионосфера), в которой учет пространственной дисперсии диэлектрического тензора существенно деформирует частотную зависимость показателей преломления (дискретный спектр частот продольных волн превращается в зонный, в магнитной плазме появляются дисперсионные кривые типа изображенных на рис. 1 и 2), но добавочные волны не возникают: как при игнорировании, так и после учета пространственной дисперсии в плазме существуют три волны. В магнитной плазме существует также три волны *)[‡]

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОБНАРУЖЕНИЕ ДОБАВОЧНЫХ ВОЛН

В наших работах ^{4, 23} был предложен ряд экспериментов, позволяющих проверить изложенную выше теорию и, в частности, обнаружить добавочные волны. Часть из этих экспериментов уже проведены и действительно подтвердили существование предсказанных теорией ³ добавочных световых волн. Ниже кратко излагаются результаты этих опытов.

Предположим, что из вакуума на плоскопараллельную пластинку кристалла нормально падает монохроматическая световая волна, порождающая в пластинке две волны с комплексными волновыми векторами $k_+ = k'_+ + ik''_+$ и $k_- = k'_- + ik''_-$. Выйдя из пластинки, эти две волны интерферируют, и в результате интенсивность прошедшего света J должна быть осциллирующей функцией толщины пластинки l ²³:

$$J \sim |E|^2 = |a_+|^2 e^{-2k''_+ l} + |a_-|^2 e^{-2k''_- l} + 2|(a_+, a_-)| \cos[(k'_+ - k'_-)l + \alpha_0]. \quad (16)$$

Здесь a_+ и a_- — амплитуды электрического поля волн по выходе из пластинки, с учетом отражения света от входной и выходной поверхностей пластинки, но без учета затухания в толще пластинки (многократно отраженными волнами пренебрегаем). α_0 определяется равенством $(a_+, a_-^*) = |(a_+, a_-^*)| e^{i\alpha_0}$. Зависимость (16) представлена на рис. 5.

Подобные осциллирующие кривые были экспериментально получены для антрацена при 20° К у экситонной полосы поглощения, максимум которой лежит при 25 200 см^{-1} . Предварительные результаты эксперимента опубликованы в ²³, а более точные результаты повторного, весьма тщательно выполненного эксперимента, с использованием более совершенной методики опубликованы в ²⁴. На рис. 6 приведена одна из кривых, полученных в ²⁴. Она отвечает частоте света 25 108 см^{-1} . Экспериментальные точки нанесены с их вероятными ошибками по абсциссе и ординате. Свет пропускаться через два параллельно ориентированных поляризатора. Один из них (призма Глана) располагался до кристалла, второй (шпат) — после кристалла. Моноклинная ось кристалла антрацена, совпадающая с главной осью тензора ϵ_{11} , ориентировалась строго параллельно вектору электрического поля поляризованной световой волны. Поэтому из двух волн обычного двупреломления возникала в кристалле только одна. Изображенная на рис. 6 интерференция означает появление в кристалле второй волны той же поляризации, т. е. добавочной волны.

*) Не этим ли объясняется тот факт, что теоретики, много лет занимавшиеся электромагнитными волнами в средах, обладающих пространственной дисперсией, но не рассматривавшие специально случай экситона, не поднимали вопроса о добавочных волнах вплоть до 1957 г.

Необходимо подчеркнуть, что в условиях описываемого опыта совершенно исключалась интерференция волн, многократно отраженных от

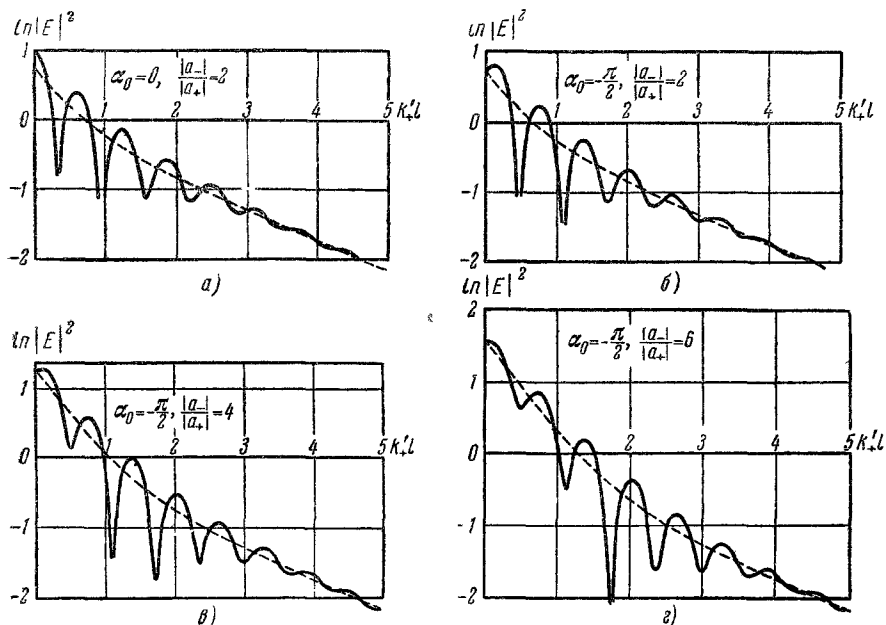


Рис. 5. Теоретическая зависимость квадрата модуля амплитуды электрического поля прошедшей волны от толщины кристаллической пластинки $(k'_+ - k''_-)/k'_+ = 10$, $k''_-/k'_+ = 3$

поверхностей пластинки, так как интенсивность луча, трижды прошедшего сквозь пластинку, на 2—3 порядка меньше интенсивности луча, однократно прошедшего сквозь пластинку, тогда как на рис. 6 J при осцилляции изменяется в 30 раз. Кроме этого, чтобы объяснить наблюдающийся период осцилляций J с ростом l , пришлось бы приписать антрацену показатель преломления 3,45. В действительности же при этой частоте и температуре он больше пяти³⁶.

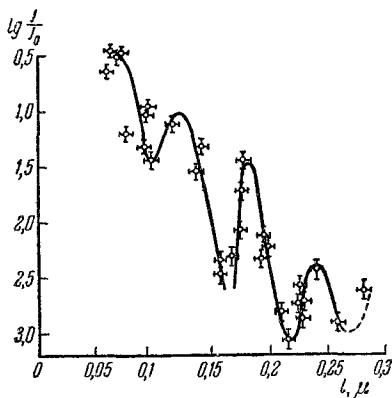


Рис. 6. Экспериментально полученная зависимость интенсивности прошедшего света от толщины пластинки.

Антрацен, 20° К (толщина в микронах)

мые эксперименты (разделенные иногда большим интервалом времени). Поэтому близко лежащие точки, встречающиеся в ряде мест на кривой, иллюстрируют воспроизводимость экспериментальных результатов.

На рис. 6 довольно хорошо соблюдается периодичность следования максимумов и минимумов: расстояния между максимумами $\Delta l = 0,056$; $0,060$; $0,057 \mu$. Расстояния между минимумами: $\Delta l = 0,063$; $0,055 \mu$. Такая периодичность не свойственна простому разбросу точек.

Необходимо подчеркнуть, что каждая из тридцати экспериментально измеренных точек на рис. 6 получена на своем, независимо выращенном кристалле. Разные точки представляют разные независимые эксперименты (разделенные иногда большим интервалом времени).

Из среднего периода осцилляций кривой, равного $0,058\mu$, можно по формуле (16) вычислить $k'_+ - k'_-$. Получается $n'_+ - n'_- = 6,9$. Экспериментальная кривая рис. 6 сходна с теоретическими кривыми рис. 5. Помимо теории добавочных световых волн, мы не видим никакого другого объяснения наблюдавшихся двух волн с одинаковой поляризацией.

Другим кристаллом, в котором удалось экспериментально наблюдать предсказанные теорией добавочные световые волны, является закись меди. Здесь исследовалась первая (самая длинноволновая) полоса поглощения желтой экситонной серии. Эта полоса запрещена в дипольно приближении, поэтому для нее неприменима формула (12). Теория добавочных волн в случае дипольно запрещенной линии подробно развита для кубических кристаллов в ^{20, 21}. Там показано, что если свет распространяется, в частности, вдоль направления $(1, 1, 0)$, он распадается на волны, могущие иметь только две поляризации: 1) с электрическим полем, параллельным направлению $(0, 0, 1)$ и 2) с электрическим полем, параллельным направлению $(1, -1, 0)$. При одной из этих поляризаций световая волна совершенно игнорирует рассматриваемый экситон — не взаимодействует с экситоном, не поглощается, на дисперсионной кривой не получается всплеска в соответствующей области частот. Добавочные волны тоже не возникают. Если декартову ось y ориентировать вдоль направления этой поляризации, то для такой волны получаются соотношения типа (13):

$$E_{0x} = E_{0z} = 0, \quad E_{0y} \neq 0, \quad n = \sqrt{\gamma'}. \quad (17)$$

В кубическом кристалле γ' — постоянная.

При второй из поляризаций световая волна взаимодействует с экситоном, поглощается, хотя и слабо (дипольно запрещенная полоса), на дисперсионной кривой должен наблюдаться слабый всплеск. Вместо (12) получается формула

$$E_{0y} = E_{0z} = 0, \quad E_{0x} = E_{\pm} \neq 0, \quad n_{\pm}^2 = \\ = \frac{1}{2} (\gamma' + b_s + \mu_s) \pm \sqrt{\frac{1}{4} (\gamma' + b_s - \mu_s)^2 + b_s \mu_s}. \quad (18)$$

Следовательно, должны существовать две волны с этой поляризацией — появляется добавочная волна; b_s — постоянная, значительно меньшая, чем B_s (входящая в формулу (12) для дипольно разрешенных полос). μ_s по-прежнему определяется формулой (11).

В кубическом кристалле могут существовать также такие экситонные зоны, для которых в обеих поляризациях существуют волны только типа (17) или только типа (18). Но к ним не относится вышеупомянутая исследуемая экситонная зона в закиси меди.

Экспериментальное исследование самой длинноволновой полосы желтой экситонной серии в закиси меди полностью подтвердило предсказания теории. Так, независимо от развивавшейся теории, в работе ²², а затем и в работе ²⁵ было обнаружено, что волна с поляризацией 1) поглощается, а с поляризацией 2) совсем не поглощается. Этот факт, вполне согласующийся с нашей теорией, позволяет заключить, что экситонная зона по своей симметрии в теоретико-групповой классификации принадлежит к типу F_2 , B' или E' ^{20, 27}. Во всех трех случаях теория предсказывает, что при поляризации 1) должны наблюдаться две волны типа (18), а при поляризации 2) одна волна типа (17). Для проверки этого был поставлен специальный эксперимент ²⁶, аналогичный осуществленному с антраценом. Существование двух волн одинаковой поляризации доказывалось

осцилляциями в зависимости от интенсивности прошедшего света и от толщины пластинки закиси меди. Результаты эксперимента представлены на рис. 7. По оси ординат отложены значения коэффициента поглощения в линии K_{λ} за вычетом коэффициента поглощения фона; $K_{\lambda} \equiv \frac{1}{l} \ln \frac{J_0}{J(\lambda)} \text{ см}^{-1}$ (J_0 — интенсивность прошедшего света при частоте, расположенной рядом с линией, J — интенсивность прошедшего света с частотой, попадающей внутрь линии).

По оси абсцисс отложена толщина пластинки кристалла. Каждая пикобразная кривая изображает форму линии $K(\lambda)$ при толщине, отвечающей абсциссе максимума пика. На рис. 7 приведен также масштаб для

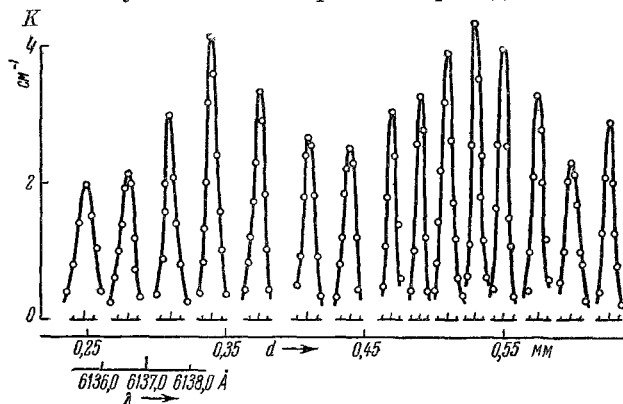


Рис. 7. Экспериментально полученная зависимость

$$K = \frac{1}{l} \ln \frac{J_0}{J(\lambda)} \text{ от толщины пластинки.}$$

Закись меди, 93° К.

длин волн, в пределах которых измерялся контур полосы. Рис. 7 иллюстрирует осцилляции J в зависимости от толщины пластинки, доказывающие присутствие двух волн с поляризацией 1). При поляризации 2) такие осцилляции не обнаружены, что указывает на существование только одной волны, в согласии с теорией.

Наблюдаемый период осцилляций $\approx 0,2 \text{ мм}$ нельзя объяснить интерференцией волн, многократно отраженных от поверхностей пластинки. Последняя привела бы к периоду осцилляций порядка $0,6 \cdot 10^3 \text{ мм}$.

Заметим, что наблюдающаяся полная поляризация полосы поглощения, а также присутствие добавочной волны в поляризации 1) и ее отсутствие в поляризации 2) противоречат варианту теории⁶, в котором пространственная дисперсия произвольно вводится путем представления $\epsilon_{ij}^{-1}(\omega, \mathbf{k})$ в виде полинома от степеней k_x , k_y и k_z . Причина этого противоречия заключается в том, что в большинстве случаев ни ϵ_{ij} , ни ϵ_{ij}^{-1} не являются аналитическими функциями k_x , k_y и k_z (подробнее см.³⁷) и не могут быть представлены в виде полиномов.

Учет пространственной дисперсии, помимо добавочных волн, приводит также к обычному двупреломлению в кубических кристаллах. Последнее было теоретически рассмотрено в^{1, 38-40, 6, 18} и других работах. Это двупреломление тоже должно быть более резко выражено вблизи экситонных полос поглощения. Но, по-видимому, его будет легче обнаружить экспериментально у дипольно разрешенных полос. Возможности и условия, благоприятные для экспериментального обнаружения двупреломления кубических кристаллов, рассмотрены в работе¹⁸.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Г. А. Лоренц, *Verh. d. K. Akad. v. Wet. Amsterdam* 18 (1879).
 2. Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М., Гостехиздат, 1957, § 83 (см. также стр. 9, последний абзац предисловия).
 3. С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 33, 1022 (1957).
 4. С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 34, 1176 (1958).
 5. J. J. Hopfield, *Phys. Rev.* 112, 1555 (1958).
 6. В. Л. Гинзбург, *ЖЭТФ* 34, 1593 (1958).
 7. С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 35, 522 (1958).
 8. В. М. Агранович и А. А. Рухадзе, *ЖЭТФ* 35, 982 (1958).
 9. С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 36, 451 (1959).
 10. И. М. Дыкман и С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 37, 510 (1959).
 11. В. М. Агранович, *ЖЭТФ* 37, 430 (1959).
 12. В. М. Агранович и А. А. Рухадзе, *Физ. тв. тела*, Сб. II, 235 (1959).
 13. О. В. Константинов и В. И. Перель, *ЖЭТФ* 37, 786 (1959).
 14. Ю. А. Цвирко, *Укр. физ. ж.* 4, 654 (1959).
 15. Ю. А. Цвирко, *ЖЭТФ* 38, 1615 (1960).
 16. Ю. А. Цвирко и М. А. Толмазина, *Физ. тв. тела* 3, 1393 (1961).
 17. С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 38, 1786 (1960).
 18. С. И. Пекар и Б. Е. Цеквава, *Физ. тв. тела* 2, 261 (1960).
 19. Б. Е. Цеквава, *Физ. тв. тела* 4, 482 (1960).
 20. Б. Е. Цеквава, *Физ. тв. тела* 3, 1164 (1961).
 21. Б. Е. Цеквава, *Физ. тв. тела* 4 (2), 501 (1962).
 22. Е. Ф. Гросси и А. А. Канлянский, *Физ. тв. тела* 2, 379 (1960).
 23. М. С. Бродин и С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 38, 74 (1960).
 24. М. С. Бродин и С. И. Пекар, *ЖЭТФ* 38, 1910 (1960).
 25. И. С. Горбань и В. Б. Тимофеев, *Физ. тв. тела* 2, 2077 (1960).
 26. И. С. Горбань и В. Б. Тимофеев, *ДАН СССР* 140, 791 (1961).
 27. С. И. Пекар, М. С. Бродин и Б. Е. Цеквава, IV Совещание по теории полупроводников (17—22 октября 1960 г., Тбилиси), Тезисы докладов, Изд-во АН Груз. ССР, 1960.
 28. С. И. Пекар и В. Л. Стрижевский, *Физ. тв. тела* 2, 894 (1960); *Укр. физ. ж.* 5, 277 (1960).
 29. В. Л. Стрижевский, *Опт. и спектр.* 8, 623 (1960); *Укр. физ. ж.* 5, 120 (1960).
 30. В. С. Машкевич, *ЖЭТФ* 38, 906 (1960).
 31. В. С. Машкевич, *ЖЭТФ* 40, 1803 (1960).
 32. А. А. Демиденко, *Физ. тв. тела* 3, 1195 (1961).
 33. В. Л. Гинзбург, А. А. Рухадзе и В. П. Силин, *Физ. тв. тела* 3, 1835 (1961).
 34. А. А. Рухадзе и В. П. Силин, *Электромагнитные свойства плазмы и плазмоподобных сред*, М., Атомиздат, 1961.
 35. М. С. Бродин и А. Ф. Прихотько, *Опт. и спектр.* 7, 132 (1959).
 36. М. С. Бродин и А. Ф. Прихотько, *Опт. и спектр.* 2, 448 (1957).
 37. С. И. Пекар, *Физ. тв. тела* 5, 1301 (1962).
 38. К. Б. Толпыго, *Тр. Ин-та физики АН УССР*, вып. 6, 102 (1955).
 39. М. Борн и Хуан Кунь, *Динамическая теория кристаллических решеток*, М., ИЛ, 1958.
 40. В. С. Машкевич, *ЖЭТФ* 32, 866 (1957).
-