

КРИСТАЛЛООПТИКА ОТРАЖЕНИЯ: ВОЗМОЖНОСТИ И ОГРАНИЧЕНИЯ

Меркулов В. С.

Институт физики твердого тела и полупроводников НАН Беларуси

220072, г. Минск, ул. П. Бровки, 17

Методы кристаллооптики широко используются для измерения наведенной оптической анизотропии за счет электрических и магнитных полей и механических напряжений, а также спонтанной оптической анизотропии, возникающей при фазовых переходах. Однако значительная часть исследований ограничивается изучением прохождения излучения через кристалл. Наблюдение эффектов оптической анизотропии на отраженном свете сталкивается с рядом трудностей. Во-первых, это малые изменения сдвигов фаз и коэффициентов отражения за счет анизотропии. Так при прохождении излучения эффекты возрастают с толщиной пластинки d и оказываются в d/λ раз больше чем при отражении (λ – длина волны света). Во-вторых, наличие поверхностной пленки или переходного слоя, которые необходимо учитывать при проведении эксперимента. В-третьих, сложность теоретической интерпретации при последовательном учете анизотропии. Тем не менее, для поглощающих кристаллов и прозрачных пленок на поглощающих подложках исследование отраженного излучения остается единственным способом для получения информации об оптических константах. Развитию отражательной кристаллооптики способствует высокая чувствительность модуляционных и балансных методов измерения сдвигов фаз и углов поворота плоскости поляризации света, которая достигает на практике 10^{-7} радиан. В условиях нарушенного полного внутреннего отражения эффекты, связанные с анизотропией, также могут значительно возрастать.

При исследовании отражения света от кристаллов низших сингоний, изучении магнито-оптических эффектов отражения при произвольной ориентации вектора намагниченности, а также электрооптических и фотоупругих эффектов на отражении всегда возникает задача отражения света от среды с произвольным тензором диэлектрической проницаемости. Широкое применение для решения данной задачи нашел матричный метод [1-3]. Основные вычислительные трудности данного метода связаны с нахождением четырехмерной матрицы прохождения всей структуры. Однако если рассматривать взаимодействие только на одной границе с анизотропной средой, и если отсутствуют волны в среде распространяющиеся в обратном направлении (например, из-за значительного поглощения), то отпадает необходимость вычисления матрицы прохождения. Методы, разработанные Ф.И. Федоровым и его школой [4, 5], оказываются весьма эффективными для прямого нахождения матрицы отражения от кристалла с произвольным комплексным и неэрмитовым тензором диэлектрической проницаемости.

Рассмотрим отражение плоской монохроматической волны, падающей под углом θ из вакуума на полубесконечную анизотропную среду $z>0$ (плоскость падения $y=0$). Амплитуды электрического \mathbf{E} и магнитного \mathbf{H} полей волны в среде удовлетворяют уравнениям Максвелла в следующем виде:

$$\boldsymbol{\varepsilon}\mathbf{E} = -[\mathbf{m},\mathbf{H}] \quad \mathbf{H} = [\mathbf{m},\mathbf{E}] \quad (1)$$

где $\boldsymbol{\varepsilon}$ – тензор диэлектрической проницаемости среды, на комплексные значения и симметрию компонент которого не накладывается никаких ограничений кроме $\det(\boldsymbol{\varepsilon})\neq 0$, $\mathbf{m}=\mathbf{k}c/\omega$ – волновой вектор, нормированный на его величину в вакууме (вектор рефракции).

Вычисление детерминанта системы (1) дает уравнение Френеля в следующем виде:

$$m^2(\mathbf{m},\tilde{\boldsymbol{\eta}}\mathbf{m})+(\mathbf{m},\boldsymbol{\eta}\mathbf{m})-m^2\eta_{\text{tr}}+1=0 \quad (2)$$

где введен тензор $\boldsymbol{\eta}=\boldsymbol{\varepsilon}^{-1}$ и тензор $\tilde{\boldsymbol{\eta}}=\boldsymbol{\varepsilon}/\det(\boldsymbol{\varepsilon})$ дуальный тензору $\boldsymbol{\eta}$, компоненты которого равны соответствующим минорам тензора $\boldsymbol{\eta}$, η_{tr} – след тензора.

Подстановка в (2) компонент вектора рефракции для волны возбуждаемой в среде $\mathbf{m}=(\sin\theta, 0, \lambda)$ дает следующее характеристическое уравнение (далее $s=\sin\theta$):

$$a_4\lambda^4+a_3\lambda^3+a_2\lambda^2+a_1\lambda+a_0=0 \quad (3)$$

где
$$a_0=\tilde{\eta}_{xx}s^4-(\eta_{yy}+\eta_{zz})s^2+1, \quad a_1=(\tilde{\eta}_{xz}+\tilde{\eta}_{zx})s^3+(\eta_{xz}+\eta_{zx})s,$$

$$a_2=(\tilde{\eta}_{xx}+\tilde{\eta}_{zz})s^2-(\eta_{xx}+\eta_{yy}), \quad a_3=(\tilde{\eta}_{xz}+\tilde{\eta}_{zx})s, \quad a_4=\tilde{\eta}_{zz}.$$

Для вычисления корней уравнения четвертой степени (3) используют как точные формулы [2], так и численные методы [3]. Пусть λ_1 и λ_2 - два корня, соответствующие двум волнам, распространяющимся в среду (т.е. $\text{Im}(\lambda_i)\geq 0$), причем $\lambda_1\neq\lambda_2$. Решение для вырожденных корней $\lambda_1=\lambda_2$ можно получить предельным переходом.

Из системы (1) получены следующие формулы для компонент безразмерных собственных векторов магнитного поля:

$$\begin{aligned} h_{ix} &= \eta_{yx}\lambda_i^2 - \eta_{yz}s\lambda_i \\ h_{iy} &= \eta_{yy}\lambda_i^2 + \eta_{yz}s^2 - 1 \end{aligned} \quad (4)$$

или равносильные им

$$\begin{aligned} h_{ix} &= \eta_{xx}\lambda_i^3 - (\eta_{xz} + \eta_{zx})s\lambda_i^2 + (\eta_{zz}s^2 - 1)\lambda_i \\ h_{iy} &= \eta_{xy}\lambda_i^3 - \eta_{zy}s\lambda_i^2 + \eta_{xy}s^2\lambda_i - \eta_{zy}s^3 \end{aligned}$$

на тот случай, если формулы (4) дают нулевое значение собственного вектора.

Для соответствующих векторов электрического поля имеем

$$\begin{aligned} e_{ix} &= (\eta_{xx}\lambda_i - \eta_{xz}s)h_{iy} + \eta_{xy}(\lambda_i^2 + s^2) e_{iy} \\ e_{iy} &= -h_{ix}/\lambda_i \end{aligned} \quad (5)$$

Из граничных условий непрерывности компонент электрического и магнитного полей в плоскости $z=0$, получается следующая связь матрицы отражения \mathbf{R} с собственными векторами (далее $c=\cos\theta$):

$$\mathbf{R} = \begin{vmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{vmatrix} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} r_{pp} &= [(ch_{1y} - e_{1x})(ce_{2y} - h_{2x}) - (ce_{1y} - h_{1x})(ch_{2y} - e_{2x})]/\Delta \\ r_{ss} &= [(ch_{1y} + e_{1x})(ce_{2y} + h_{2x}) - (ce_{1y} + h_{1x})(ch_{2y} + e_{2x})]/\Delta \\ r_{ps} &= 2c(e_{1x}h_{2y} - e_{2x}h_{1y})/\Delta \\ r_{sp} &= 2c(e_{2y}h_{1x} - e_{1y}h_{2x})/\Delta \\ \Delta &= (ch_{1y} + e_{1x})(ce_{2y} - h_{2x}) - (ce_{1y} - h_{1x})(ch_{2y} + e_{2x}). \end{aligned}$$

Описанная процедура, позволяет решить задачу отражения света от произвольной анизотропной поглощающей среды. Однако формулы становятся более обозримыми, если выбрать в качестве малого параметра в данной задаче саму величину оптической анизотропии. Этому способствует тот факт, что анизотропные добавки в тензор диэлектрической проницаемости значительно меньше симметричной изотропной части.

Рассмотрим случай слабоанизотропной среды более подробно. Введем обозначения: $\varepsilon_{ij} = \varepsilon\delta_{ij} + \Delta\varepsilon_{ij}$, где $|\varepsilon| \gg |\Delta\varepsilon_{ij}|$ (очевидно $\varepsilon_{ij} = \Delta\varepsilon_{ij}$ при $i \neq j$). Из предположения аналитической зависимости матрицы отражения от компонент ε рассмотрим разложение в ряд по анизотропным добавкам $\Delta\varepsilon_{ij}$:

$$r_{\alpha\beta} = r_{\alpha\beta}^{(0)} + r_{\alpha\beta ij} \Delta\varepsilon_{ij} + r_{\alpha\beta ijkl} \Delta\varepsilon_{ij} \Delta\varepsilon_{kl} + \dots \quad (7)$$

где индексы α, β принимают значения p, s , индексы i, j, k, l - значения x, y, z .

Вычисления дают следующее разложение матрицы отражения по анизотропным добавкам в первом приближении (далее $\lambda = (\varepsilon - s^2)^{1/2}$):

$$\mathbf{R} = \begin{vmatrix} r_{pp}^{(o)} + r_{xx}\Delta\epsilon_{xx} + r_{zz}\Delta\epsilon_{zz} + r_{xz}(\epsilon_{xz} - \epsilon_{zx}) & r_{yz}\epsilon_{zy} + r_{xy}\epsilon_{xy} \\ r_{yz}\epsilon_{yz} - r_{xy}\epsilon_{yx} & r_{ss}^{(o)} + r_{yy}\Delta\epsilon_{yy} \end{vmatrix} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} r_{pp}^{(o)} &= (\epsilon c - \lambda) / (\epsilon c + \lambda) & r_{ss}^{(o)} &= (c - \lambda) / (c + \lambda) \\ r_{xx} &= c\lambda / (\epsilon c + \lambda)^2 & r_{xy} &= c / (\epsilon c + \lambda)(c + \lambda) \\ r_{yy} &= -c / (c + \lambda)^2 \lambda & r_{yz} &= cs / (\epsilon c + \lambda)(c + \lambda) \\ r_{xz} &= -cs^2 / (\epsilon c + \lambda)^2 \epsilon \lambda & r_{zx} &= -cs / 2(\epsilon c + \lambda)^2 \end{aligned}$$

Следует отметить, что в отличие от точных формул приближенные формулы остаются в силе в случае вырожденных корней, тем самым отпадает необходимость в предельном переходе. Однако формулы для r_{yy} , r_{zz} и r_{yz} перестают работать в окрестности $\lambda=0$ (полное внутреннее отражение) в связи с тем, что не выполняется предположение об аналитической зависимости матрицы отражения от ϵ . Это может приводить к возникновению корневых зависимостей от соответствующих анизотропных добавок.

Универсальным методом определения компонент матрицы \mathbf{R} является обобщенная эллипсометрия [6]. На эксперименте обычно используется нулевая схема эллипсометрии PCSA на прохождение, где P – поляризатор, C – компенсатор (четвертьволновая пластинка), S – образец, A – анализатор. Такими же буквами будут обозначаться азимуты элементов относительно оси x, а жирные буквы будут обозначать матрицы соответствующих элементов не зависимо от того в формализме матриц Джонса или Мюллера проводятся вычисления.

Решая уравнение для идеальных поляризационных элементов

$$\mathbf{ASCP}\mathbf{I}=0 \quad (9)$$

где \mathbf{I} – вектор циркулярно-поляризованного света, получим следующие значения для P и A при $C=\pi/4$:

$$P = (\Delta_o + \Delta_{ij}\Delta\epsilon_{ij}) / 2 + \pi/4 \quad (10)$$

$$A = \Psi_o + \Psi_{ij}\Delta\epsilon_{ij}$$

где $\text{tg}\Psi_o \exp(i\Delta_o) = r_{pp}^{(o)} / r_{ss}^{(o)}$, а коэффициенты Δ_{ij} и Ψ_{ij} определенным образом выражаются через коэффициенты $r_{\alpha\beta ij}$.

Практически важным случаем является ориентация поляризации падающего света в плоскости падения, т.е. $C=P=0$. Тогда угол поворота плоскости поляризации и эллиптичность отраженного света в радианах будут соответственно:

$$\Psi_{sp} = \text{Re}(r_{sp}/r_{pp}) = \Psi'_{yx}\epsilon_{yx} + \Psi'_{yz}\epsilon_{yz}, \quad \Delta_{sp} = \text{Im}(r_{sp}/r_{pp}) = \Delta'_{yx}\epsilon_{yx} + \Delta'_{yz}\epsilon_{yz} \quad (11)$$

Если $C=0$, $P=\pi/2$, то угол поворота плоскости поляризации и эллиптичность будут следующими:

$$\Psi_{ps} = \text{Re}(r_{ps}/r_{ss}) = \Psi''_{xy}\epsilon_{xy} + \Psi''_{zy}\epsilon_{zy}, \quad \Delta_{ps} = \text{Im}(r_{ps}/r_{ss}) = \Delta''_{xy}\epsilon_{xy} + \Delta''_{zy}\epsilon_{zy} \quad (12)$$

Анализ выражений (11) - (12) позволяет сделать вывод о принципиальной возможности разделения вкладов от недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости ϵ_{xy} , ϵ_{zy} , ϵ_{yx} и ϵ_{yz} при проведении измерений при различных ориентациях кристалла, вращая его вокруг нормали к поверхности раздела. Что касается вопроса разделения вкладов от диагональных компонент тензора $\Delta\epsilon_{xx}$, $\Delta\epsilon_{yy}$ и $\Delta\epsilon_{zz}$ с помощью формул (10), то он остается открытым при измерениях на одном срезе кристалла, даже при существующей достигнутой точности измерений, и необходимо проведение дополнительных измерений на другом срезе кристалла.

Для иллюстрации на рис. 1 и 2 приведены результаты расчетов Ψ_{sp} и Δ_{sp} при отражении света с длиной волны 0,63 мкм от поверхности монокристаллов Co и CuInSe₂ (угол падения $\theta=45^\circ$). В Co намагниченность (или ось гирации) ориентирована в плоскости падения под углом α к нормали. В CuInSe₂ оптическая ось ориентирована в плоскости среза и составляет угол ϕ с осью x. Для расчетов использованы следующие ненулевые компоненты

для Co: $\varepsilon_{xx}=\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}=2,6764+10,6253i$, $\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{yx}=q\cos\alpha$, $\varepsilon_{xz}=-\varepsilon_{zx}=-q\sin\alpha$, $q=-0,4114+0,1001i$. Для CuInSe₂: $\varepsilon_{xx}=\varepsilon_0+d\cos^2\varphi$, $\varepsilon_{yy}=\varepsilon_0+d\sin^2\varphi$, $\varepsilon_{zz}=\varepsilon_0$, $\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{yx}=d\sin\varphi\cos\varphi$, $d=\varepsilon_e-\varepsilon_0$, $\varepsilon_0=8,2614+3,4868i$, $\varepsilon_e=8,2060+3,3054i$. Исходные данные для расчетов взяты из работ [7,8].

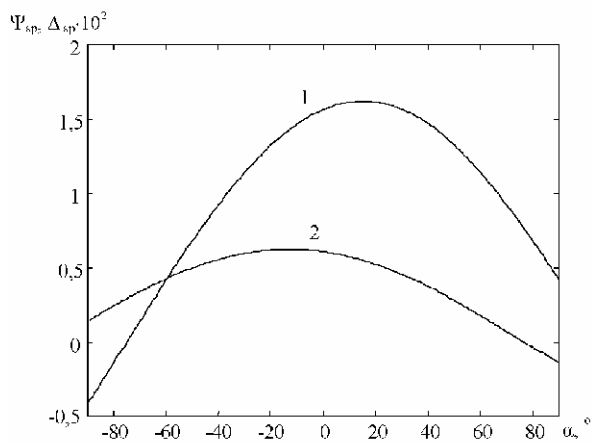


Рис. 1. Зависимости Ψ_{sp} (1) и Δ_{sp} (2) от угла поворота α намагниченности кристалла Co в плоскости падения.

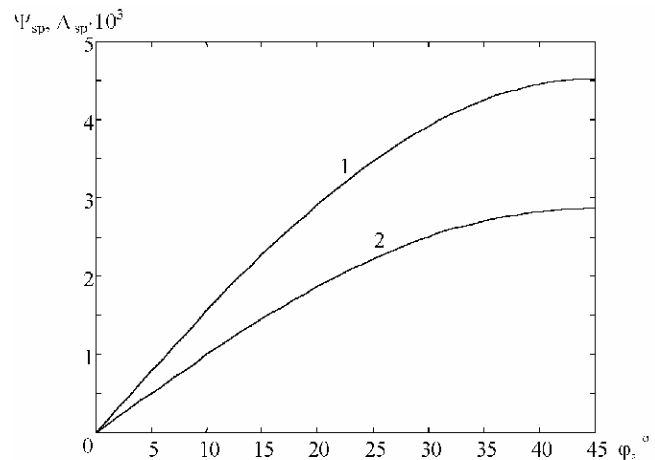


Рис. 2. Зависимости Ψ_{sp} (1) и Δ_{sp} (2) от угла поворота φ кристалла CuInSe₂ (оптическая ось лежит в плоскости раздела).

Полученные точные выражения (3)-(6) позволяют вычислить матрицу отражения от среды с произвольным тензором диэлектрической проницаемости, причем значительно уменьшить вычислительные затраты по сравнению с матричным методом. Проведенные расчеты по точным и приближенным формулам совпали с относительной погрешностью 10^{-4} для Co и 10^{-3} для CuInSe₂ (линии на рисунках совпадают), т.е. разность находится на пределе чувствительности существующих методик эллипсометрических измерений. Однако приближенные формулы теряют смысл при $r_{pp}^{(o)}=1$, $r_{ss}^{(o)}=1$ и в окрестности $\lambda=0$ (полное отражение) в связи с тем, что не выполняется предположение об аналитической зависимости матрицы отражения от ε , что может приводить к возникновению корневых зависимостей от соответствующих анизотропных добавок при нарушенном полном внутреннем отражении. Приближенные формулы позволяют значительно упростить решение обратной задачи – нахождение компонент тензора диэлектрической проницаемости по данным эллипсометрических измерений.

Литература

- [1] D.W.Berreman. J. Opt. Soc. Am. **62**, 502 (1972).
- [2] M.Schubert, T.E.Tiwald, J.A.Woollam. Applied Optics **38**, 177 (1999).
- [3] С.П.Палто. ЖЭТФ **119**, 638 (2001).
- [4] Ф.И.Федоров. Теория гиротропии, Минск, «Наука и техника», 1976.
- [5] Ф.И.Федоров, В.В.Филиппов. Отражение и преломление света прозрачными кристаллами, Минск, «Наука и техника», 1976.
- [6] Р.Аззам, Н.Башара. Эллипсометрия и поляризованный свет. «Мир», М. 1981, 583 с.
- [7] X.Gao, D.W.Glenn, S.Heckens, D.W.Thompson, J.A.Wollam. J. Appl. Phys. **82**, 4525 (1997).
- [8] M.I.Alonso, K.Wakita, J.Pascual, M.Garriga, N.Yamamoto. Phys. Rev. **B 63**, 075203-1 (2001).