

非完整红外反射光谱中介电
函数推算方法的改进*

0434.33

陆卫 穆耀明 沈学础

(中国科学院上海技术物理研究所, 中国科学院红外物理国家重点实验室, 上海, 200083)

A 摘要 报道了谐振子模型和 Kramers-Kronig 关系相结合在晶体长波光学声子红外反射光谱上的应用, 提出了利用谐振子模型和 Kramers-Kronig 关系之间相互制约的关系改进在非完整红外反射光谱中介电函数推算的方法。

关键词 谐振子模型, K-K 关系, 介电函数.

红外反射光谱

引言

红外反射光谱已成为研究各种极性晶体, 尤其是半导体中光学声子特性及其相关介电函数的一种十分重要和有效的实验手段^[1~4], 但由于反射光谱与介电函数之间的非线性关系, 导致反射谱不能很直接地给出介电函数. 通常广泛应用的分析方法是 Kramers-Kronig 关系(简称 K-K 关系)计算^[1]和谐振子拟合^[2], 这两种方法(尤其是 K-K 关系)需要在较完整的反射光谱条件下才能算出较准确的介电函数值. 如何在反射谱不很完整的条件下推算出较为准确的介电函数谱是一个很有意义的问题, 本文由此提出一种联合使用谐振子模型拟合和 K-K 关系计算的途径, 以有效地改善不完整反射光谱的介电函数推算结果.

1 原理与方法

作为一对宏观物理常数, 反射系数 r 及位相角 ψ 之间存在某种内在联系, 这种联系在本文涉及的晶体长波光学声子诱发的红外反射谱结构中可从微观物理模型和基本物理条件两方面获得, 在微观物理模型方面, 我们可将不同光学声子分解成不同的谐振子, 进而形成谐振子模型, 用谐振子模型算出介电函数后, 结合光电磁波在固体表面的边界条件便可知道 r 与 ψ 的关系. 而 K-K 色散关系不依赖于具体物理模型, 而是从 r 与 ψ 的基本因果关联出发, 运用数学方法推导出 r 与 ψ 的内在联系. 对某一特定的如图 1 实线所示的反射谱, 如果谐振子模型中的某些参量(特别是高频介电常数 ϵ_∞) 不正确导致反射谱外推部分偏差, 那么由 K-K 色散关系根据 r 全谱算出的 ψ 必定会与由谐振子模型给出的 ψ 不一致. 这种不一致亦会导致两种方法给出的介电函数不一致, 如图 2 中虚线和实线所示. 通过数值计算表明这种差异在介电函数部谱上反映得较为明显. 这一现象是容易理解的. r 与 ψ 的 K-K 关系是

$$\psi(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \ln \left| \frac{\omega' - \omega}{\omega' + \omega} \right| \frac{d \ln R(\omega')}{d\omega'} d\omega'$$

* 国家自然科学基金和中国科学院教育局人才基金资助项目
本文 1995 年 11 月 20 日收到, 修改稿 1995 年 12 月 21 日收到

$$= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} \ln \left| \frac{\omega' - \omega}{\omega' + \omega} \right| \frac{d \ln R(\omega')}{d\omega'} d\omega' + \frac{1}{2\pi} \int_{\omega_1}^{\omega} \ln \left| \frac{\omega' - \omega}{\omega' + \omega} \right| \frac{d \ln R(\omega')}{d\omega'} d\omega' + \frac{1}{2\pi} \int_{\omega_2}^{\infty} \ln \left| \frac{\omega' - \omega}{\omega' + \omega} \right| \frac{d \ln R H(\omega')}{d\omega'} d\omega', \quad (1)$$

式(1)中 ω_1 和 ω_2 分别表示实验反射谱的低频限和高频限(图1中箭头所示), ω 是频率, $R = |r|^2$, R_L 和 R_H 分别是低频部分的外推反射谱. 积分计算是由 Quadpack 软件包完成的^[5]. 在单模情况下, 计算表明 ϵ_{∞} 的增大必然导致式(1)中 $0 \approx \omega_1$ 和 $\omega \approx \infty$ 积分增大, 从而使 ψ 值在不同频率有不同程度的增大.

与介电函数实部谱 $\epsilon(\omega)$ 有直接对应关系的折射率谱 $n(\omega)$ 与 $R(\omega)$ 和 $\psi(\omega)$ 关系为

$$n(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega)}\cos\psi}. \quad (2)$$

由式(2)可知, 当 $1 + R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega)}\cos\psi$ 为极小时, $n(\omega)$ 谱会出现极大值. 所以 ψ 的变化必然会影响 $n(\omega)$ 及与之直接相关的介电函数实部谱 $\epsilon'(\omega)$ 的峰位. 计算结果显示高频介电常数 ϵ_{∞} 与两种方法给出的介电函数实部谱的峰位差值 (Δ) 之间存在一种单调变化关系(如图3). 这里 $\Delta = \omega_K - \omega_0$, ω_K 和 ω_0 分别是由 $K-K$ 关系和谐振子模型拟合计算出的介电函数实部谱 $\epsilon'(\omega)$ 的峰相应频率, 这2个峰的频率值在给定 ϵ_{∞} 值后均可独立算出. 具体计算表明根据这一单调 $\Delta\epsilon_{\infty}$ 的取值满足 $\Delta=0$ 时, ϵ_{∞} 值将很接近设定的高频介电常数. 由满足 $\Delta=0$ 条件的高频介电常数 ϵ_{∞} 值拟合反射谱, 能获得较为正确的拟合参量, 进而获得较为正确的介电函数结果.

2 方法的应用

作为本文方法实用性的一种简单数值检验, 我们取类似 GaAs 光学声子的红外反射谱为应用对象, 参量见表1设定值. 假定实验上仅获得如图1实线所示的非完整反射谱, 且信噪比较差. 这一模拟的实验反射谱是由式(3)算出的理论谱上叠加一个随机噪声而产生的, 本文称它为实验光谱. 叠加一个随机噪声的目的是模拟在实验光谱中有限的信噪比. 由于谐振子模型中各参量的相互影响, 尤其是振子强度与高频介电常数之间的强关联性, 使简单地对应图1实线所示有较大噪声的反射谱用谐振子拟合较困难. 例如, 我们从初始值 ($S=1.0$, $\omega_{T0}=270\text{cm}^{-1}$, $\gamma=4\text{cm}^{-1}$ 和 $\epsilon_{\infty}=14$) 出发, 求 $\sigma = \sum_i (R_1 - R_2)^2$ 的全域极小值, 其中

$$R_i = \left| \frac{\sqrt{\epsilon(\omega)} - 1}{\sqrt{\epsilon(\omega)} + 1} \right|^2, \quad (3)$$

介电函数 $\epsilon(\omega)$ 在谐振子模型中的表达式为

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{S\omega_{T0}^2}{\omega_{T0}^2 - \omega^2 - i\gamma\omega_{T0}}, \quad (4)$$

拟合得到的参量及其误差如表1, 其结果与设定的差别较大. 其中误差以高频介电常数为最大. 这是因为高频介电常数信息主要是在高频反射率趋于平坦的那段反射谱中, 而本文的实验谱中不包含这部分反射谱. 但如果只看拟合的情况, 从图1可见理论曲线(虚线)与实验谱

(实线)在实验谱波段吻合得很好。

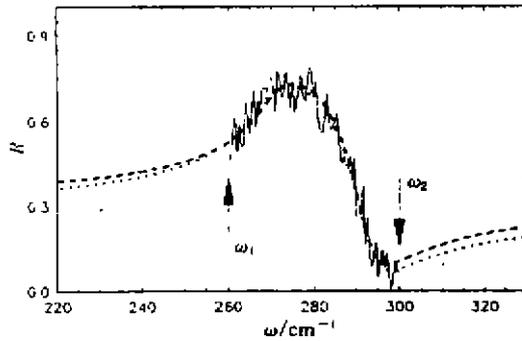


图1 实线为单模反射光谱,虚线为普通方法拟合曲线,点线为本文方法拟合曲线(曲线对应的谐振子参量见表1, ω_1 和 ω_2 频率位置为式(1)中的 ω_1 和 ω_2 值

Fig. 1 The solid line is one-mode reflection spectrum, the dashed line is the best fit curve by normal method, the dotted line is the best fit curve by the method described in the text (the parameters used for the three curves are listed in Table 1, the arrows indicate the frequency position of ω_1 and ω_2 in Eq. (1))

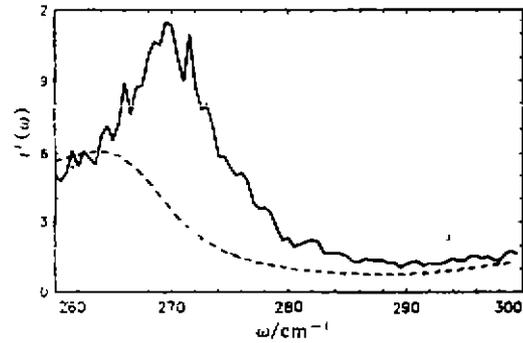


图2 $\epsilon_\infty = 8.0$ 时由 K-K 关系计算(实线)和最佳拟合谐振子模型参量(虚线)给出的介电函数实部谱 $\epsilon'(\omega)$

Fig. 2 The curve $\epsilon'(\omega)$ of the real part spectrum of the dielectric function calculated by the K-K relation (solid line) and best fit parameters of the oscillator model (dashed line) for $\epsilon_\infty = 8.0$

采用本文提出的方法,我们选定 $\epsilon_\infty = 5.0, 8.0, 9.0, 10.0, 11.0, 11.5, 12.0, 13.0$. 拟合反射谱获得相应的声子参量,用这套参量给出实验反射谱的低频与高频侧的外延反射谱

(R_H 和 R_L),作 K-K 关系算得介电函数实部, $\epsilon'(\omega)$,与由谐振子模型算出的 $\epsilon'(\omega)$ 比较,进而获得两种 $\epsilon'(\omega)$ 谱的峰位差 Δ . 图 2 给出 $\epsilon_\infty = 8.0$ 时由 K-K 关系算得的介电函数实部 $\epsilon'(\omega)$ (实线)和由谐振子模型算得的 $\epsilon'(\omega)$ (虚线),两者的峰位差别是明显的 ($\Delta = 5.98 \text{ cm}^{-1}$). Δ 相对 ϵ_∞ 的关系如图 3,图中实线为数值内插曲线,该曲线上 $\Delta = 0$ 处的 ϵ_∞ 是使两种 $\epsilon'(\omega)$ 谱的峰位相重合之值, $\epsilon_\infty = 10.29$,与设定值 10.24 已相当接近.再以 $S = 1.0$, $\omega_{TO} = 270.0 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma = 4.0 \text{ cm}^{-1}$ 和 $\epsilon_\infty = 10.29$ 为初始值并固定 ϵ_∞ 值不变,通过拟合计算很快就获得了非常接近设定值的数值,如表 1,与设定值的差别大大减小.由这套参量给出的理论拟合曲线见图 1 中的点线,比较 2 条理论曲线(虚

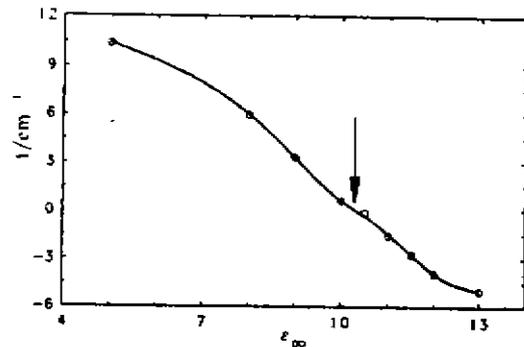


图3 由 K-K 关系计算和谐振子模型拟合给出的介电函数实部谱 $\epsilon'(\omega)$ 峰位差值 Δ 与 ϵ_∞ 的相互关系(圆圈表示计算结果,实线为内插曲线,箭头表示 $\Delta = 0$ 的位置)

Fig. 3 The dependence of Δ on the ϵ_∞ (circles are the calculated points, solid line is the interpolating line, the arrow indicates the zero point of Δ)

线和点线)可见,它们在实验光谱波段都与实验谱吻合很好,但在高频与低频外延波段却相差甚大.这说明根据谐振子模型和 K-K 关系之间的相互制约关系,应用本文提出的方法可以有效地改善不完整反射光谱的介电函数推算结果.

对于双模行为或多模行为的反射谱而言,计算表明对最高频声子模反射带仍有类似于单模的 $\Delta-\epsilon_{\infty}$ 关系,所以本文所提出的方法亦适应于双模和多模的情况.

表 1 谐振子模型中各参量及其相对误差
Table 1 The parameters and their relative errors in the oscillator model

	S	$\frac{\delta S}{S}$	ω_{TO} (cm^{-1})	$\frac{\delta\omega_{TO}}{\omega_{TO}}$	$\gamma(\text{cm}^{-1})$	$\frac{\delta\gamma}{\gamma}$	ϵ_{∞}	$\frac{\delta\epsilon_{\infty}}{\epsilon_{\infty}}$
设定值	2.0	—	268.7	—	10.0	—	10.24	—
简单拟合法	2.1	5%	269.9	0.4%	9.08	9.2%	12.01	17%
本文方法	1.98	1%	268.5	0.07%	9.34	6.6%	10.29	0.5%

参考文献

- 1 陆卫,叶红娟,陶凤翔,等. *红外研究*, 1986, 5(1): 33
- 2 陆卫,叶红娟,陶凤翔,等. *物理学报*, 1987, 36: 965
- 3 Werneke C H, Salje E. *Infrared Phys.* 1980, 20: 59
- 4 Chandrasekhar H R, Ramdas A K. *Phys. Rev.*, 1980, B21: 1511; Werneke C H, Salje E. *Infrared Phys.*, 1980, 20: 59
- 5 Piessens R, De Doncker-Kapenga, Uberhuber C W, et al. *Springer Series in Computational Mathematics*, New York: Springer-Verlag, 1983.

A METHOD IMPROVED TO RECKON THE DIELECTRIC FUNCTION FROM THE INCOMPLETE FAR-INFRARED REFLECTION SPECTRUM*

Lu Wei Mu Yaoming Shen Xuechu

(National Laboratory for Infrared Physics, Chinese Academy of Sciences,
Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract The synthetical application of the oscillator model and Kramers-Kronig relation to the far-infrared reflection spectrum of the long wavelength optical phonon in crystals was reported. By using the restriction condition between the oscillator model and the Kramers-Kronig relation, a method was proposed to reckon the dielectric function from the incomplete far-infrared reflection spectrum.

Key words oscillator model, Kramers-Kronig relation, dielectric function.

* The project supported by the National Natural Science Foundation and the Foundation of the Education Bureau of Chinese Academy of Sciences