

Dispersión de luz por la superficie rugosa de una película excitónica delgada sobre un sustrato metálico

N. Atenco-Analco, F. Pérez-Rodríguez
*Instituto de Física, Universidad Autónoma de Puebla,
 Apdo. Post. J-48, Puebla, Pue. 72570, México*

J. Madrigal-Melchor
*Escuela de Física, Universidad Autónoma de Zacatecas,
 Apdo. Post. C-580, Zacatecas, Zac. 98060, México*

Recibido el 17 de mayo de 2001; aceptado el 31 de enero de 2002

Se investiga teóricamente el efecto de la dispersión espacial en una película semiconductor con rugosidad superficial aleatoria, depositada sobre un sustrato metálico, sobre el coeficiente de reflexión diferencial. La investigación se realiza cerca de la resonancia excitónica donde la no-localidad es fuerte y conduce a la generación de ondas polaritónicas adicionales. Aplicando una teoría de perturbación a primer orden, calculamos las dependencias angular y de frecuencia del coeficiente de reflexión diferencial para el caso de una rugosidad unidimensional. Los espectros de reflexión difusa de CuCl sobre un metal de Al para luz incidente con polarización s presentan resonancias pronunciadas (picos) en las frecuencias que satisfacen las condiciones Fabry-Perot para los modos polaritónicos adicionales. Estas condiciones corresponden también a la cuantización del movimiento translacional del excitón. Nuestros resultados muestran la utilidad del espectro de reflexión difusa para estudiar la excitación de los modos polaritónicos cuantizados en películas no locales.

Descriptores: Excitón; dispersión espacial; reflexión difusa; películas semiconductoras delgadas.

The effect of the spatial dispersion of a semiconductor film, having a rough free surface and overlying a metal, on the differential reflection coefficient is investigated theoretically. The investigation is carried out near exciton resonance where the nonlocality is strong and leads to the generation of additional polaritonic waves. Applying a first-order perturbation theory, we calculate the angular and frequency dependencies of the differential reflection coefficient for the case of one-dimensional roughness. The spectra of diffuse reflection for CuCl on a Al metal for incident light with s -polarization exhibit pronounced resonances (peaks) at frequencies satisfying Fabry-Perot conditions for the additional polaritonic modes. These conditions also correspond to the size quantization of the exciton's translational motion. Our results show the usefulness of the spectra of diffuse reflection for studying the excitation of quantized polaritonic modes in nonlocal films.

Keywords: Exciton; spatial dispersion; diffuse reflection; thin semiconductor films.

PACS: 71.35.-y; 78.66.-w; 78.20.-e

1. Introducción

Desde los primeros estudios sobre la dispersión de una onda monocromática por una superficie rugosa, realizados por Lord Rayleigh [1], se ha publicado una gran cantidad de trabajos referentes a este tema (ver, por ejemplo, Refs. 2-12 y las referencias ahí citadas). No obstante, existen muchos fenómenos debidos a la rugosidad superficial que aún no han sido completamente entendidos, o bien, permanecen inadvertidos. El fenómeno de la dispersión de luz en sistemas semiconductores excitónicos se ve notablemente afectado no sólo por las características del perfil superficial del medio irradiado, sino también por sus propiedades de bulto, tales como la dispersión espacial o no-localidad [13]. La dispersión espacial introduce nuevas propiedades al medio, la más importante es la propagación de modos electromagnéticos adicionales [13, 14]. La existencia de ondas adicionales hace necesario el empleo de condiciones de frontera adicionales (o ABC por las palabras inglesas *Additional Boundary Conditions*), ya que las usuales condiciones de frontera de Maxwell (continuidad de las componentes tangenciales de los campos eléctrico y magnético) no son suficientes para determinar la amplitud de los modos generados. Además de la

no-localidad, la interacción del excitón con la superficie de la muestra juega un papel fundamental en la determinación de las propiedades ópticas de sistemas excitónicos [13]. En múltiples trabajos, [10, 13, 15] esta interacción se ha tomado en cuenta eligiendo una ABC apropiada. Alternativamente la interacción excitón-superficie se puede describir utilizando un potencial superficial. El modelo más simple para un potencial superficial intrínseco supone la existencia de una capa superficial libre de excitones, lo cual es equivalente a tener una barrera de potencial infinita a cierta distancia l (del orden del radio excitónico a_0) de la superficie (modelo de la capa muerta [16]). El efecto de la rugosidad superficial sobre el potencial excitónico y, consecuentemente, sobre los espectros de dispersión de luz se investigó en las Refs. 5-7. Ahí se encontró que los espectros de reflexión difusa de medios semi-infinitos dependen fuertemente de la correlación entre las fluctuaciones del potencial superficial excitónico y el perfil de la superficie de la muestra. Este efecto de las fluctuaciones del potencial superficial es particularmente importante en semiconductores cuyo radio excitónico es de varias decenas de Å , por ejemplo, en GaAs ($a_0 \sim 136\text{Å}$), CdS ($a_0 \sim 28\text{Å}$) y ZnSe ($a_0 \sim 33\text{Å}$). Para semiconductores que tienen un radio de Bohr excitónico muy pequeño, como

el CuCl ($a_0 \sim 7\text{\AA}$) y el ZnO ($a_0 \sim 14\text{\AA}$), en general se puede despreciar el efecto de la capa muerta [17, 18] en sus propiedades ópticas.

En una geometría finita, tal como la de una película delgada, los excitones son confinados en la dirección de crecimiento de la muestra. El problema del confinamiento del excitón y la propagación de los polaritones en sistemas de baja dimensión ha atraído la atención de diversos grupos científicos [19, 20] debido a su gran potencial de aplicación en dispositivos optoelectrónicos. Una película delgada se caracteriza por tener un espesor d menor que la longitud de onda λ del campo electromagnético pero mucho mayor que el radio excitónico a_0 : $a_0 \ll d \lesssim \lambda$. En una película delgada el movimiento del centro de masa del excitón se cuantiza, mientras que su movimiento relativo es esencialmente idéntico a aquel en el bulto, excepto por una posible distorsión cerca de las superficies. La cuantización del movimiento translacional del excitón en películas delgadas produce resonancias en sus espectros ópticos (reflectividad, transmisión y absorción) [17, 21–23]. Estos espectros ópticos también se pueden explicar como el resultado de la reflexión interna múltiple de los polaritones excitónicos en la película [13, 14, 17]. La forma de línea de las resonancias espectrales resulta ser fuertemente alterada por el sustrato de la película, el cual puede ser de un material dieléctrico [17, 20] o metálico [24].

La mayoría de los estudios teóricos de polaritones excitónicos en películas delgadas se han llevado a cabo considerando que las superficies de estas películas son idealmente planas. Sin embargo, las superficies reales tienen rugosidad inherente y, por lo tanto, la luz puede ser dispersada por ellas. Así pues, los espectros de reflexión difusa podrían ser muy útiles para el estudio de las propiedades ópticas tanto de bulto como de las superficies de películas delgadas. Hasta donde sabemos, este tipo de espectroscopía se ha aplicado a películas locales gruesas ($d \gg \lambda$) con interfaces desordenadas y diferentes tipos de sustratos [4, 9]. En el caso de un sustrato metálico, los espectros de la sección diferencial de dispersión cambian radicalmente dependiendo de la polarización de la luz incidente y dispersada [9]. También se ha investigado la reflexión difusa de películas ultradelgadas con espesor $d \lesssim a_0$ (pozos cuánticos excitónicos) [25]. Para el caso de películas delgadas ($a_0 \ll d \lesssim \lambda$), todavía no existe una teoría sistemática que describa el efecto de la dispersión espacial (no localidad) en los espectros de reflexión difusa de luz por sus superficies rugosas.

En este trabajo desarrollamos una teoría de perturbación a primer orden para investigar el efecto de la dispersión espacial sobre el coeficiente de reflexión diferencial de una película delgada excitónica con rugosidad superficial aleatoria, depositada sobre un sustrato metálico. En la Sec. 2 presentamos el formalismo teórico aplicado en el cálculo del coeficiente de reflexión diferencial y en la Sec. 3 se discuten los resultados numéricos. Finalmente en la Sec. 4 se presentan las conclusiones.

2. Teoría

2.1. Planteamiento del problema

Consideremos un sistema formado por una película semiconductor excitónica, con rugosidad superficial aleatoria unidimensional y localizada en la región $\zeta(x) < z < d$, depositada sobre un sustrato metálico perfecto. La interfaz vacío-semiconductor se caracteriza por la función aleatoria $\zeta(x)$ (se supone que será ligeramente rugosa), la cual representa el perfil de la superficie del semiconductor y tiene una desviación característica δ respecto del plano promedio $z = 0$. La función del perfil superficial $\zeta(x)$ es un proceso gaussiano y estacionario, con valor estadístico medio nulo, y está determinado por las propiedades

$$\langle \zeta(x) \rangle = 0, \quad \langle \zeta(x)\zeta(x') \rangle = \delta^2 \exp[-(x-x')^2/L^2]. \quad (1)$$

Aquí, el paréntesis angular denota el promedio sobre el ensemble de realizaciones de la función $\zeta(x)$, L es la longitud de correlación transversal ($L \gg \delta$).

Sobre la superficie libre de la película incide una onda electromagnética plana, monocromática, cuya polarización puede ser s , o bien, p . El plano de incidencia coincide con el plano xz . Bajo estas consideraciones, para polarización s , el campo eléctrico incidente tiene la forma

$$\mathbf{E}_i^s(x, z, t) = [0, E_i^s, 0] e^{i(q_x x + q_z z) - i\omega t}, \quad (2)$$

donde $q_x = q \sin \theta_i$, $q_z = q \cos \theta_i$, $q = \omega/c$; ω es la frecuencia del campo incidente, c es la velocidad de la luz en el vacío y θ_i es el ángulo de incidencia.

Por otro lado, para luz incidente con polarización p el campo eléctrico puede representarse como [12]

$$\mathbf{E}_i^p(x, z, t) = E_i^p [1, 0, -q_x/q_z] e^{i(q_x x + q_z z) - i\omega t}. \quad (3)$$

Una superficie ligeramente rugosa satisface las condiciones de suavidad $|d\zeta(x)/dx| \ll 1$ y pequeñez $|\zeta(x)/\lambda| \ll 1$, donde λ es la longitud de onda del campo incidente. En tal situación los campos se pueden aproximar hasta primer orden en $\delta/\lambda \ll 1$ y $|d\zeta(x)/dx| \sim \delta/L \ll 1$ pudiendo ser escritos como [6, 7, 9]

$$\mathbf{E}(x, z, t) = \mathbf{E}^0(x, z, t) + \mathbf{E}^1(x, z, t). \quad (4)$$

Debido al desarrollo hasta términos de primer orden la polarización de los campos reflejado \mathbf{E}_r y dispersado \mathbf{E}_{sc} es la misma que la del campo incidente [6, 26]. Por lo tanto, en el caso de polarización s , los campos en el vacío [además del campo incidente (2)] son el campo reflejado

$$\mathbf{E}_r^s(x, z, t) = [0, E_r^s, 0] e^{i(q_x x - q_z z) - i\omega t}, \quad (5)$$

correspondiente a la reflexión especular (campo de orden cero), y el campo dispersado

$$\mathbf{E}_{sc}^s(x, z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x [0, \mathcal{E}_{sc}^s(k_x), 0] e^{i(k_x x - k_z z) - i\omega t}, \quad (6)$$

el cual representa la componente difusa de la reflexión (campo dispersado en direcciones distintas a la especular) y es originado por la rugosidad de la superficie. Aquí, $k_x = q \operatorname{sen} \theta_{sc}$, $k_z = q \operatorname{cos} \theta_{sc}$ y θ_{sc} es el ángulo de dispersión. Para polarización p [12]:

$$\mathbf{E}_r^p(x, z, t) = E_r^p[1, 0, q_x/q_z] e^{i(q_x x - q_z z) - i\omega t}, \quad (7)$$

$$\mathbf{E}_{sc}^p(x, z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \mathcal{E}_{sc}^p(k_x) [1, 0, k_x/k_z] e^{i(k_x x - k_z z) - i\omega t}. \quad (8)$$

Dentro del semiconductor, el campo eléctrico \mathbf{E} y la polarización excitónica \mathbf{P} se determinan del sistema de ecuaciones dinámicas para el polaritón-excitón [11, 13, 27]. Suponemos que el medio semiconductor está caracterizado por un excitón de radio pequeño, de modo que podamos despreciar el efecto del potencial superficial intrínseco (capa muerta). De esta manera, el sistema para los campos polaritónicos adquiere la forma [11]

$$[D\nabla^2 + \omega^2 - \omega_T^2 + i\gamma\omega] \mathbf{P}(x, z) = -\frac{\omega_P^2}{4\pi} \mathbf{E}(x, z), \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{E}(x, z) - \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}(x, z)) + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(x, z) \\ = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}(x, z), \end{aligned} \quad (10)$$

donde ω_T es la frecuencia de resonancia del excitón, γ es una frecuencia de amortiguamiento fenomenológica, ω_P es una medida de la fuerza del oscilador, ε_∞ es la constante dieléctrica de fondo o de altas frecuencias. El coeficiente $D = \hbar\omega_T/M$ se conoce como el parámetro de dispersión espacial, M es la masa efectiva total del excitón. La Ec. (9) se obtiene de la ecuación de movimiento para el excitón, despreciando el efecto del potencial superficial, [13]; y la Ec. (10) se obtiene de las ecuaciones de Maxwell para un medio no magnético. El sistema de ecuaciones acopladas (9, 10) se resuelve escribiendo \mathbf{E} y \mathbf{P} en la forma (4). De esta manera se obtienen dos sistemas de ecuaciones. El sistema de orden cero tiene la forma [11, 12]

$$\begin{aligned} \left[D \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + \omega^2 - \omega_T^2 + i\gamma\omega \right] P_j^0(x, z) \\ = -\frac{\omega_P^2}{4\pi} E_j^0(x, z), \end{aligned} \quad (11)$$

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} \right] E_y^0(x, z) = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} P_y^0(x, z), \quad (12)$$

$$\frac{\partial^2 E_z^0}{\partial x \partial z} - \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} \right] E_x^0(x, z) = \frac{4\pi\omega^2}{c^2} P_x^0(x, z), \quad (13)$$

$$\frac{\partial^2 E_x^0}{\partial x \partial z} - \left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} \right] E_z^0(x, z) = \frac{4\pi\omega^2}{c^2} P_z^0(x, z), \quad (14)$$

aquí, $j = x, y, z$. El sistema de primer orden es similar al de cero orden, únicamente se cambian los superíndices 0 por 1 en las ecuaciones (11) – (14). La solución de las ecuaciones de cero y primer orden se presenta en seguida.

2.2. Soluciones de orden cero

Las ecuaciones se pueden resolver por separado para cada geometría. Así, para polarización s la solución del sistema de orden cero está dada por los vectores $\mathbf{E}^0 = [0, E_y^0, 0]$ y $\mathbf{P}^0 = [0, P_y^0, 0]$, donde sus componentes y se pueden escribir como una superposición de los modos que se propagan en el semiconductor [11]:

$$E_y^0(x, z) = \sum_{j=1}^4 A_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}, \quad (15)$$

$$P_y^0(x, z) = \sum_{j=1}^4 \chi(q_x, k_j) A_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}. \quad (16)$$

Para la polarización p los campos \mathbf{E}^0 y \mathbf{P}^0 sólo tienen componentes x y z :

$$E_x^0(x, z) = \sum_{j=1}^6 B_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}, \quad (17)$$

$$E_z^0(x, z) = -\sum_{j=1}^6 \frac{q_x k_j B_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}}{4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \chi(q_x, k_j) + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} - q_x^2}, \quad (18)$$

$$P_x^0(x, z) = \sum_{j=1}^6 \chi(q_x, k_j) B_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}, \quad (19)$$

$$\begin{aligned} P_z^0(x, z) = -\sum_{j=1}^6 \chi(q_x, k_j) \\ \times \frac{q_x k_j B_j^0(q_x) e^{i(q_x x + k_j z)}}{4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \chi(q_x, k_j) + \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} - q_x^2}. \end{aligned} \quad (20)$$

Aquí, A_j^0 y B_j^0 son las amplitudes de los campos y se determinan empleando condiciones de frontera apropiadas,

$$\chi(q_x, k_j) = \frac{\omega_P^2}{4\pi D(k_j^2 - \Gamma_B^2)}, \quad (21)$$

$$\Gamma_B^2 = (\omega^2 - \omega_T^2 - Dq_x^2 + i\gamma\omega)/D; \quad (22)$$

k_j son las componentes z de los vectores de onda para los modos polaritónicos que se propagan en el semiconductor y están dados por

$$k_{1,2}^2 = \frac{1}{2} \left\{ \Gamma_B^2 + \epsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} - q_x^2 \pm \left[\left(\Gamma_B^2 - \epsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} + q_x^2 \right)^2 + \frac{4\omega_P^2 \omega^2}{Dc^2} \right]^{1/2} \right\}, \quad (23)$$

$$k_3 = \left[\Gamma_B^2 - \frac{\omega_P^2}{\epsilon_\infty D} \right]^{1/2}, \quad (24)$$

$k_{1,2}^2$ están asociados a los signos \pm respectivamente; $k_4 = -k_1$, $k_5 = -k_2$ y $k_6 = -k_3$. Las componentes 1, 2, 4, 5 corresponden a modos transversales y las componentes 3 y 6 a modos longitudinales [13].

2.3. Soluciones de primer orden

Las soluciones del sistema de ecuaciones de primer orden, es decir el campo eléctrico y la polarización excitónica de primer orden, se representan en la forma de una integral de Fourier,

$$E_y^1(x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \sum_{j=1}^4 \mathcal{A}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}, \quad (25)$$

$$P_y^1(x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \sum_{j=1}^4 \chi(k_x, k_{1j}) \mathcal{A}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}, \quad (26)$$

$$E_x^1(x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \sum_{j=1}^6 \mathcal{B}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}, \quad (27)$$

$$E_z^1(x, z) = -\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \times \sum_{j=1}^6 \frac{k_x k_{1j} \mathcal{B}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}}{4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \chi(k_x, k_{1j}) + \epsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2}, \quad (28)$$

$$P_x^1(x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \times \sum_{j=1}^6 \chi(k_x, k_{1j}) \mathcal{B}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}, \quad (29)$$

$$P_z^1(x, z) = -\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x e^{ik_x x} \times \sum_{j=1}^6 \chi(k_x, k_{1j}) \frac{k_x k_{1j} \mathcal{B}_j^1(k_x) e^{ik_{1j} z}}{4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \chi(k_x, k_{1j}) + \epsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2}. \quad (30)$$

Aquí, las dos primeras fórmulas describen los campos polaritónicos de primer orden (E_y^1 y P_y^1) en el caso de polarización s y las fórmulas restantes los campos (E_x^1 , E_z^1 , P_x^1 , P_z^1) dispersados en la geometría de polarización p . Al sustituir (25 – 30) en el sistema de ecuaciones de primer orden se observa que Γ_{1B}^2 y k_{1j} están dados por las Ecs. (22 – 24), si se cambia q_x por k_x . Para calcular las amplitudes de primer orden es conveniente representarlas en la forma [6, 11]

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{sc}^{s,p}(k_x) &= E_{sc}^{s,p} \zeta(k_x - q_x), \\ \mathcal{A}_j^1(k_x) &= A_j^1 \zeta(k_x - q_x), \\ \mathcal{B}_j^1(k_x) &= B_j^1 \zeta(k_x - q_x), \end{aligned} \quad (31)$$

donde $\zeta(k_x - q_x)$ es la transformada de Fourier del perfil superficial $\zeta(x)$,

$$\zeta(k_x - q_x) = \int_{-\infty}^{\infty} dx \zeta(x) e^{-i(k_x - q_x)x}. \quad (32)$$

E_{sc}^s , E_{sc}^p , A_j^1 y B_j^1 se obtienen a partir de las condiciones de frontera.

2.4. Condiciones de frontera

Para calcular la amplitud de los campos empleamos las condiciones de frontera siguientes:

a) Continuidad de las componentes tangenciales de los campos \mathbf{E} y \mathbf{H} en la interfaz $z = \zeta(x)$,

$$\hat{\mathbf{n}} \times \mathbf{E}^{(-)}(x, z) |_{z=\zeta(x)} = \hat{\mathbf{n}} \times \mathbf{E}^{(+)}(x, z) |_{z=\zeta(x)}, \quad (33)$$

$$\hat{\mathbf{n}} \times \mathbf{H}^{(-)}(x, z) |_{z=\zeta(x)} = \hat{\mathbf{n}} \times \mathbf{H}^{(+)}(x, z) |_{z=\zeta(x)}. \quad (34)$$

Aquí, (-) y (+) se asocian a la región del vacío y del semiconductor respectivamente, $\hat{\mathbf{n}}$ es un vector unitario normal a la superficie $z = \zeta(x)$. En la aproximación a primer orden

$$\hat{\mathbf{n}} \approx \left(-\frac{\partial \zeta(x)}{\partial x}, 0, 1 \right).$$

b) Continuidad de \mathbf{E} en la interfaz semiconductor-metal [9],

$$\mathbf{E}^{(+)}(x, z) |_{z=d} = 0. \quad (35)$$

Esta condición corresponde al caso de un conductor perfecto [28] y resulta ser una buena aproximación para el caso de un conductor con frecuencia de plasma ($\tilde{\omega}_P$) mayor que la frecuencia de resonancia excitónica ω_T ($\tilde{\omega}_P^2 \gg \omega_T^2$).

c) Además, es necesario emplear las condiciones de frontera para la polarización excitónica. Aquí emplearemos el ABC de Pekar en las interfaces vacío-semiconductor y semiconductor-metal:

$$\mathbf{P}(x, z) |_{z=\zeta(x)} = 0, \quad (36)$$

$$\mathbf{P}(x, z) |_{z=d} = 0. \quad (37)$$

Desarrollando estas condiciones de frontera (33-37) hasta primer orden en $\delta/\lambda \ll 1$ y $|d\zeta(x)/dx| \ll 1$, se determinan las amplitudes de todos los campos ($E_r^{s,p}$, A_j^0 , B_j^0 , $E_{sc}^{s,p}$, A_j^1 , B_j^1). Las amplitudes $E_r^{s,p}$ determinan directamente los espectros de reflectividad especular de orden cero: $R_s = |E_r^s/E_i^s|^2$; $R_p = |E_r^p/E_i^p|^2$.

2.5. Coeficiente de reflexión diferencial

Con el fin de determinar el coeficiente de reflexión diferencial debemos primero promediar temporal y estadísticamente el vector de Poynting complejo [8]

$$\mathbf{S}_{sc} = \frac{c}{8\pi} \mathbf{E}_{sc}^*(x, z, t) \times \mathbf{H}_{sc}(x, z, t), \quad (38)$$

$\mathbf{E}_{sc}^*(x, z, t)$ representa el complejo conjugado del campo eléctrico dispersado. Para el caso de un perfil superficial con función de correlación gaussiana (1), el promedio temporal y estadístico del vector de Poynting para polarización s será

$$\langle \mathbf{S}_{sc}^s \rangle = \frac{c^2 \delta^2 L}{16\pi^{3/2} \omega} \int_{<} dk_x \mathbf{K} |E_{sc}^s|^2 e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4}. \quad (39)$$

Aquí, $\mathbf{K} = k_x \hat{x} - k_z \hat{z}$, el símbolo \langle añadido a la integral indica la región $k_x < \omega/c$, donde k_z es real y, entonces, los campos se propagan alejándose de la superficie de la muestra. En este caso el flujo de energía dispersada, normal a la interfaz promedio ($z = 0$) y asociado al elemento diferencial comprendido entre k_x y $k_x + dk_x$, es

$$d\langle \mathbf{S}_{sc}^s \cdot \hat{\mathbf{z}} \rangle = \frac{\delta^2 L \omega}{16\pi^{3/2}} |E_{sc}^s|^2 \times e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4} \cos^2 \theta_{sc} d\theta_{sc}. \quad (40)$$

El cociente de la expresión anterior y la componente z del flujo de energía incidente con polarización s [8]

$$\mathbf{S}_i^s \cdot \hat{\mathbf{z}} = \frac{c}{8\pi} |E_i^s|^2 \cos \theta_i, \quad (41)$$

determina el coeficiente de reflexión diferencial CRD_s para luz con polarización s [4, 8]

$$CRD_s \equiv \frac{d\mathcal{R}_s}{d\theta_{sc}} = \frac{\delta^2 L \omega}{2\pi^{1/2} c} \left| \frac{E_{sc}^s}{E_i^s} \right|^2 \times \frac{\cos^2 \theta_{sc}}{\cos \theta_i} e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4}. \quad (42)$$

Por otro lado, si la luz incidente tiene polarización p (vea, por ejemplo, [12]), se tiene para el vector de Poynting promediado

$$\langle \mathbf{S}_{sc}^p \rangle = \frac{c^2 \delta^2 L}{16\pi^{3/2} \omega} \int_{<} dk_x \mathbf{K} \left| \frac{E_{sc}^p}{\cos^2 \theta_{sc}} \right|^2 e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4}. \quad (43)$$

Luego, el diferencial de flujo, normal a la superficie promedio, de la energía dispersada es

$$d\langle \mathbf{S}_{sc}^p \cdot \hat{\mathbf{z}} \rangle = \frac{\delta^2 L \omega}{16\pi^{3/2}} |E_{sc}^p|^2 e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4} d\theta_{sc}. \quad (44)$$

Para la componente z del flujo de energía incidente se obtiene

$$\mathbf{S}_i^p \cdot \hat{\mathbf{z}} = \frac{c}{8\pi} \frac{1}{\cos \theta_i} |E_i^p|^2. \quad (45)$$

Finalmente, el coeficiente de reflexión diferencial para polarización p es

$$CRD_p \equiv \frac{d\mathcal{R}_p}{d\theta_{sc}} = \frac{\delta^2 L \omega}{2\pi^{1/2} c} \left| \frac{E_{sc}^p}{E_i^p} \right|^2 \cos \theta_i e^{-(k_x - q_x)^2 L^2/4}. \quad (46)$$

3. Resultados numéricos

En esta sección calcularemos y analizaremos espectros de reflectividad R y del coeficiente de reflexión diferencial $d\mathcal{R}/d\theta_{sc}$ para un semiconductor de CuCl sobre un substrato metálico de Al en la geometría de polarización s . En el cálculo hemos empleado los parámetros conocidos para el excitón Z_3 del CuCl [29]: $\hbar\omega_T = 3.2022$ eV, $\hbar\omega_L = 3.2079$ eV, $\epsilon_\infty = 5.59$, $M = 2.3m_e$ (m_e es la masa del electrón libre). Otros parámetros usados son el espesor de la película $d = 800\text{\AA}$, el ángulo de incidencia $\theta_i = 20^\circ$ y una constante de amortiguamiento $\gamma = 0.2$ meV. La frecuencia de plasma del Al es $\hbar\tilde{\omega}_P \approx 15\text{eV} > \hbar\omega_T$ ($\tilde{\omega}_P^2 \gg \omega_T^2$) por lo que la condición de frontera (35) es buena en este caso.

En la Fig. 1 mostramos el espectro de reflectividad R_s , el cual presenta una estructura compleja de resonancias (mínimos profundos) que resultan de la interferencia de los polaritones excitónicos en la película delgada. Las frecuencias de las resonancias espectrales (particularmente aquellas que son mayores que ω_T) satisfacen la condición de interferencia Fabry-Perot para el modo polaritónico inferior: $(d/\pi)\text{Re}k_1 = n$, donde n es un número entero [ver los puntos indicados en la curva (a) de la Fig. 2]. En el rango de frecuencias $\omega > \omega_T$ esta condición coincide, de hecho, con la condición de cuantización del movimiento translacional del excitón mecánico en una película delgada. Es decir las frecuencias $\hbar\omega_n$ donde se satisfacen las relaciones de Fabry-Perot prácticamente coinciden con los autovalores $E_n = \hbar\omega_T + (\hbar n\pi/d)^2/2M$ de estados cuantizados del excitón en la película delgada ($a_0 \ll d$). Por esta razón, la estructura resonante del espectro de reflectividad puede también interpretarse como una manifestación óptica de la cuantización del movimiento del centro de masa del excitón [13, 17, 22]. Nótese que el espesor elegido $d = 800\text{\AA}$ es relativamente pequeño en comparación con la longitud de onda de la luz λ ($d < \lambda$) por lo que no se observan, cerca de la resonancia excitónica, efectos de interferencia relacionados con el modo polaritónico superior.

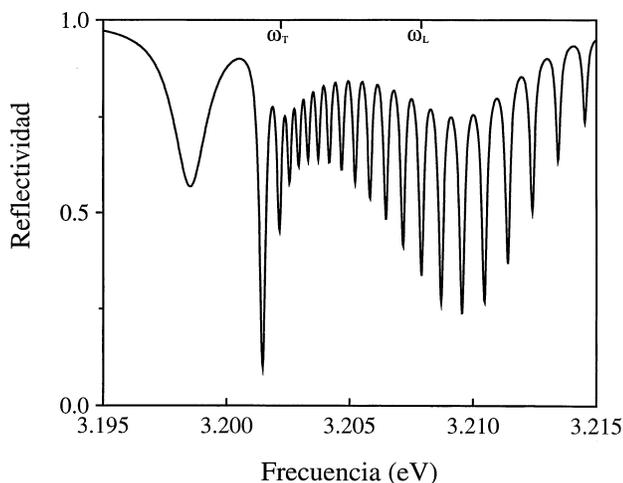


FIGURA 1 Reflectividad de polarización s para una película de CuCl sobre Al. $d = 800\text{Å}$, $\theta_i = 20^\circ$, $\gamma = 0.2\text{ meV}$.

En la Fig. 3 presentamos el espectro del CRD_s para la película de CuCl sobre Al cerca de la resonancia del excitón Z_3 . Este espectro, al igual que la reflectividad, exhibe una estructura de resonancias muy rica. Las posiciones de estas singularidades (picos) coinciden exactamente con las de las resonancias observadas en los espectros de reflectividad, excepto por la resonancia de menor frecuencia y que está por debajo de ω_T . Por lo tanto, podemos afirmar que los picos espectrales del CRD_s en $\omega = \omega_n > \omega_T$ se deben atribuir a la cuantización del movimiento translacional del excitón en la película delgada.

En la Fig. 4 mostramos el efecto de los parámetros estadísticos de la superficie (longitud de correlación L y altura de la raíz cuadrática media de la rugosidad δ) sobre la dependencia angular del CRD_s de la película de CuCl con una frecuencia fija del haz incidente, $\hbar\omega = \hbar\omega_T = 3.2022\text{ eV}$. Comparando las curvas (a) y (b) de la Fig. 4 calculadas con

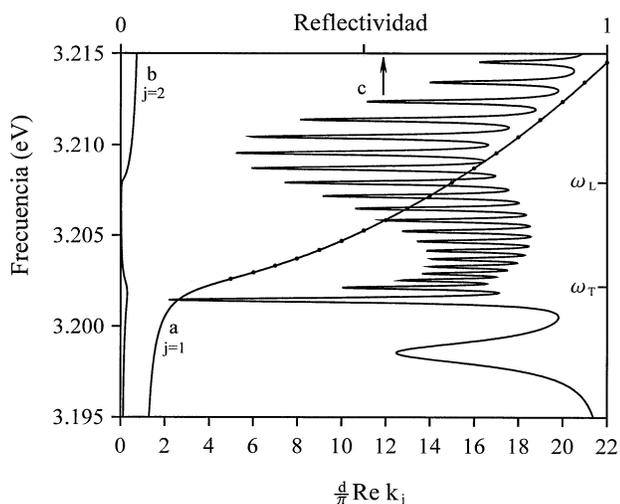


FIGURA 2 Relaciones de dispersión para los modos polaritónicos $j = 1$ y 2 (curvas (a) y (b)); (c) es la reflectividad de polarización s como en la Fig. 1.

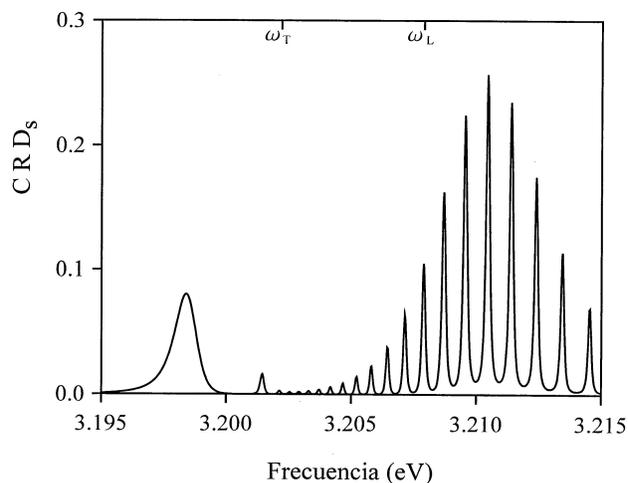


FIGURA 3 Espectro de CRD_s para una película de CuCl sobre Al. $L = 5000\text{Å}$, $\delta = 6\text{Å}$, $\theta_{sc} = 25^\circ$; los parámetros d , θ_i y γ son como los de la Fig. 1.

la misma altura de rugosidad, $\delta = 6\text{Å}$, pero con diferente longitud de correlación [$L = 7000\text{Å}$ y 5000Å en (a) y (b), respectivamente], podemos ver claramente que la distribución angular del CRD_s es más estrecha, con un valor máximo mayor y cerca del ángulo correspondiente a la dirección especular, en el caso de longitud de correlación L mayor (curva (a)). Esto se debe a que al incrementar la longitud de correlación, la superficie rugosa se vuelve más suave (casi plana) y la luz se esparce prácticamente sólo en direcciones muy cercanas a la dirección especular. Por otra parte, en las curvas (b) y (c) empleamos la misma longitud de correlación L , pero diferente altura δ [en (b) $\delta = 6\text{Å}$ y en (c) $\delta = 5\text{Å}$]. Como era esperado, observamos que al aumentar el parámetro δ , el coeficiente $dR_s/d\theta_{sc}$ se incrementa en todas las direcciones (compare las curvas (b) y (c)). Este resultado no es más que una consecuencia directa de la fórmula (42), de acuerdo con la cual el CRD_s es proporcional a δ^2 . Debemos enfatizar que los efectos de L y δ sobre la distribución angular del CRD_s son independientes de la frecuencia ω del haz incidente (vea la fórmula (42)).

Estudiemos ahora el efecto de la constante de amortiguamiento γ en los espectros de reflexión difusa. Como se ve de la Fig. 5, al aumentar γ las resonancias en el espectro de CRD_s se ensanchan y los picos disminuyen su altura rápidamente (compare las curvas (a) y (b)). Nótese que en estos cálculos hemos utilizado un coeficiente de amortiguamiento γ independiente de la frecuencia y por lo tanto todas las resonancias se ven disminuidas en la misma proporción. Sin embargo, en investigaciones anteriores [29, 30] a la nuestra, para lograr un buen ajuste con espectros de reflectividad de películas delgadas de CuCl fue necesario utilizar una constante de amortiguamiento γ creciente en el rango de frecuencias ω mayores que ω_T :

$$\gamma = \gamma_0 + \alpha(\omega - \omega_T) \cdot \theta(\omega - \omega_T), \quad (47)$$

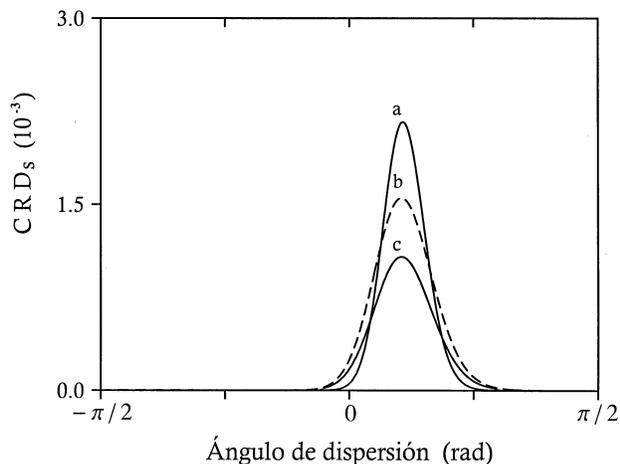


FIGURA 4 Dependencia angular de CRD_s para una película de CuCl sobre Al. La curva (a) corresponde a $L = 7000\text{\AA}$ y $\delta = 6\text{\AA}$; la curva (b) se calculó con $L = 5000\text{\AA}$ y $\delta = 6\text{\AA}$; y la (c) con $L = 5000\text{\AA}$ y $\delta = 5\text{\AA}$. Otros parámetros son como los de la Fig. 1.

donde $\theta(x)$ es la función de Heaviside, y las cantidades γ_0 y α son parámetros de ajuste. En películas delgadas el amortiguamiento γ es relativamente grande y su dependencia en función de la frecuencia se debe a la dispersión de los excitones con fonones acústicos así como con la superficie desordenada [17]. A consecuencia de este aumento de γ con la frecuencia, las resonancias correspondientes a estados de cuantización del centro de masa del excitón con $n \gg 1$ se debilitan en los espectros (vea la Fig. 6). Otro factor que puede influir en el incremento de γ , e incluso modificar el valor de la frecuencia de resonancia ω_T especialmente en la región cercana al substrato metálico, es la presencia de un campo eléctrico [31] generado por encorvamiento de las bandas energéticas cerca del contacto semiconductor-metal [32]. Por tal razón, al comparar espectros de CRD teóricos con el experimento se deberá tomar en cuenta tanto la dependencia de frecuencia de γ como su inhomogeneidad dentro de la película.

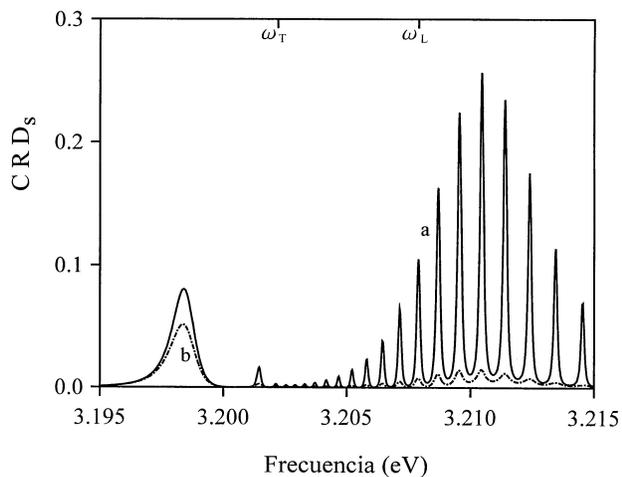


FIGURA 5 CRD_s para una película de CuCl sobre Al. La curva (a) se asocia a $\gamma=0.2$ meV, para (b) $\gamma=0.4$ meV; otros datos son $L = 5000\text{\AA}$, $\delta = 6\text{\AA}$, $\theta_{sc} = 25^\circ$; d y θ_i son como en la Fig. 1.

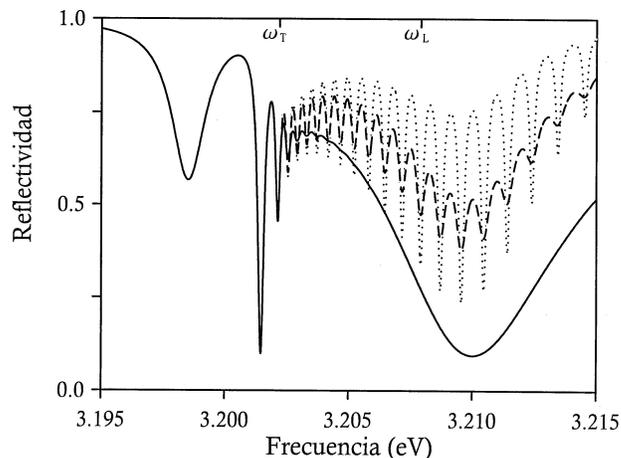


FIGURA 6 Espectros de reflectividad de polarización s para una película de CuCl sobre metal como en la Fig. 1, pero con diferentes $\gamma(\omega)$ [vea Eq. (47)]. Los espectros se calcularon con los parámetros $\gamma_0=0.2$ meV; $\alpha = 0$ (línea punteada), 0.04 (línea a trazos), 0.29 (línea sólida).

Finalmente, comentemos que los resultados numéricos (Figs. 1-6) fueron obtenidos para el caso de geometría de polarización s . Si incidiera luz con polarización p sobre la película delgada, sus espectros tanto de reflectividad R_p como de CRD_p , que pueden calcularse con la teoría desarrollada en la sección anterior, presentarían resonancias asociadas a modos longitudinales en frecuencias $\omega > \omega_L \approx \omega_T + \omega_p^2 / 2 \omega_T \epsilon_\infty$ [13, 24, 33] además de las resonancias transversales observadas en la geometría de polarización s . Esta sería la diferencia principal entre los espectros para polarizaciones s y p . En todos estos casos, las resonancias espectrales con frecuencias mayores que ω_T , debidas a la rama polaritónica inferior (rama excitónica), pueden explicarse como una manifestación de la cuantización del movimiento del centro de masa del excitón en películas delgadas ($a_0 \ll d < \lambda$).

4. Conclusiones

Hemos desarrollado una teoría de perturbación a primer orden para investigar el efecto de la dispersión espacial en una película semiconductor delgada con rugosidad superficial aleatoria unidimensional, depositada sobre un substrato metálico. A partir de los espectros para una película de CuCl sobre Al, en la geometría de polarización s , mostramos que cerca de la frecuencia de la resonancia excitónica es importante considerar los efectos de la no-localidad. Las resonancias tipo Fabry-Perot se asocian a máximos en el CRD_s y mínimos en la reflectividad R_s . En el caso de películas con espesor menor que la longitud de onda incidente, en la interferencia sólo participan los polaritones excitónicos de la rama inferior. En este régimen de película delgada las resonancias en la reflectividad R_s y en el CRD_s se deben exclusivamente a la cuantización del movimiento translacional del excitón. También, se analizó el efecto de los parámetros

estadísticos de la superficie rugosa sobre el coeficiente de reflexión diferencial. Nuestros resultados muestran la utilidad de los espectros de *CRD* para estudiar la excitación de los modos polaritónicos cuantizados en películas no-locales. Este tipo de espectros puede ser un buen complemento para las mediciones de reflectividad especular.

Agradecimientos

Este trabajo fue apoyado parcialmente por CONACyT a través del proyecto 26184-E.

1. Lord Rayleigh, *Proc. Roy. Soc. A* **79** (1907) 399; Lord Rayleigh, *The Theory of Sound* (Dover, New York, 1945) (first edition: Macmillan, New York, 1877).
2. F.G. Bass and I.M. Fuks, *Wave Scattering from Statistically Rough Surfaces* (Pergamon, New York, 1979).
3. J.A. Ogilvy, *Theory of Wave Scattering from Random Rough Surfaces* (Adam Hilger, Bristol, 1991).
4. A.A. Maradudin, J. Q. Lu, P. Tran, R.F. Wallis, V. Celli, Zuhuan Gu, A.R. McGurn, E.R. Méndez, T. Michel, M. Nieto-Vesperinas, J.C. Dainty, and A.J. Sant, *Rev. Mex. Fís.* **38** (1992) 343.
5. J. Madrigal-Melchor, F. Pérez-Rodríguez, A. Silva-Castillo, and H. Azucena-Coyotécatl, *Fiz. Tverd. Tela* (St. Petersburg) **40** (1998) 865 [*Phys. Solid State* **40** (1998) 796].
6. J. Madrigal-Melchor, H. Azucena-Coyotécatl, A. Silva-Castillo, and F. Pérez-Rodríguez, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 15993.
7. V.A. Kosobukin and A.V. Sel'kin, *Solid State Commun.* **66** (1988) 313.
8. A.A. Maradudin and D.L. Mills, *Phys. Rev. B* **11** (1975) 1392.
9. V. Freilikher, M. Pustilnik, I. Yurkevich, and V.I. Tatarskii, *Optics Lett.* **19** (1994) 1382.
10. G.H. Coccoletzi and S. Wang, *Phys. Rev. B* **48** (1993) 17413.
11. N. Atenco-Analco, Tesis de Licenciatura en Física, Universidad Autónoma de Puebla, Puebla (1999).
12. A. Silva-Castillo, Tesis de Maestría en Física, Universidad Autónoma de Puebla, Puebla (1995).
13. P. Halevi, in *Spatial Dispersion in Solids and Plasmas*, editado por P. Halevi, *Electromagnetic Waves-Recent Developments in Research Vol. 1* (Elsevier, Amsterdam, 1992), Chap. 6.
14. L.C. Andreani, in *Confined Electrons and Photons: New Physics and Devices*, editado por E. Burstein and C. Weisbuch (Plenum Press, New York, 1994), Chap. 2.
15. P. Halevi and G. Hernández-Coccoletzi, *Phys. Rev. Lett.* **48** (1982) 1500.
16. J.J. Hopfield and D.G. Thomas, *Phys. Rev.* **132** (1963) 563.
17. Z.K. Tang, A. Yanase, Y. Segawa, N. Matsuura, and K. Cho, *Phys. Rev. B* **52** (1995) 2640; Z.K. Tang, A. Yanase, T. Yasui, Y. Segawa, and K. Cho, *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993) 1431.
18. J. Lagois and K. Hümmer, *Phys. Stat. Sol. (b)* **72** (1975) 393.
19. P. Halevi, G. Hernández-Coccoletzi, and J.A. Gaspar-Armenta, *Thin Solid Films* **89** (1982) 271; J.A. Gaspar-Armenta and P. Halevi, *Rev. Mex. Fís.* **33** (1988) 599.
20. G. Czajkowski and A. Tredicucci, *IL Nuovo Cimento* **14** (1992) 1203; Y. Chen, F. Bassani, J. Massies, C. Deparis, and G. Neu, *Europhys. Lett.* **14** (1991) 483; A. Tredicucci, Y. Chen, G. Czajkowski, and F. Bassani, *Journal de Physique IV* (Colloque C5, supplément au Journal de Physique II, **3** (1993) 389).
21. B. Flores-Desirena, F. Pérez-Rodríguez, and P. Halevi, *Phys. Rev. B* **50** (1994) 5404.
22. A. D'Andrea, R. Del Sole, and K. Cho, *Europhys. Lett.* **11** (1990) 169; A. Tredicucci, Y. Chen, F. Bassani, J. Massies, C. Deparis, and G. Neu, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 10348.
23. H.C. Schneider, F. Jahnke, S.W. Koch, J. Tignon, T. Hasche, D.S. Chemla, *Phys. Rev. B* **045202** (2001).
24. V.M. Agranovich, V.E. Kravtsov, T.A. Leskova, A.G. Mal'shukov, G.H. Coccoletzi, and A.A. Maradudin, *Phys. Rev. B* **29** (1984) 976; G.H. Coccoletzi and C.P. López, *Solid State Commun.* **71** (1989) 453.
25. V.A. Kosobukin, *Phys. Status Solidi B* **208** (1998) 271.
26. J.M. Elson, *Phys. Rev. B* **30** (1984) 5460.
27. J.M. Melchor, F. Pérez-Rodríguez, J.A. Maytorena, and W.L. Mochán, *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 69.
28. J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (John Wiley, New York, 1975) (Second Edition).
29. T. Mita and N. Nagasawa, *Solid State Commun.* **44** (1982) 1003.
30. H. Suzuura, T. Tsujikawa, and T. Tokihiro, *Phys. Rev. B* **53** (1996) 1294.
31. L. Schultheis and J. Lagois, *Phys. Rev. B* **29** (1984) 6784.
32. K.V. Shalimova, *Física de los Semiconductores* (Mir, Moscú, 1975).
33. A. Silva-Castillo and F. Pérez-Rodríguez, *J. Appl. Phys.* **90** (2001) 3662.