

GaAs 电解液电场调制椭圆偏振光谱

贾 刚

(吉林大学电子科学系)

1982年12月1日收到

提 要

建立了电解液电场调制椭圆偏振光谱实验装置。把硅 p-n 结正向动态电阻作为光电倍增管的负载,实现交、直流信号自动相除。采用 PSA 静态光度型椭圆偏振仪,以便波长连续扫描和原始数据自动记录。对 n 型 GaAs 样品在光子能量 2.70—3.45 电子伏范围内进行测量,采用两相模型计算得到复介电函数的实部 ϵ_1 和虚部 ϵ_2 ,采用均匀体调制模型计算得到调制引起的相应的变化 $\delta\epsilon_1$ 和 $\delta\epsilon_2$ 。计算得到的自然光垂直入射反射率的相对变化 $\delta R/R$ 同实验直接测得的符合得很好。

一、引 言

调制椭圆偏振光谱技术实际上是使用椭圆偏振仪的调制光谱技术^[1]。调制椭圆偏振术使用的是外调制技术。就是通过对样品施加外场,用椭圆偏振仪测量微扰引起的样品表面光学参量的微小变化。根据样品的光谱结构,可以研究它的能带结构。这种技术的显著优点是:仅在感兴趣的光谱范围内测量,便可独立地直接求得样品的复介电函数及其因调制而产生的变化。而不是像一般调制技术那样,必须由其它实验提供复介电函数,并且使用 Kramers-Kronig 关系,才能求出复介电函数的变化。使用 K-K 关系,对于所测量的光谱范围以外的情况要作外推或假设。而调制椭圆偏振术不需要 K-K 关系,也就避免了由此而产生的误差。这种技术是由同一样品获得复介电函数及其因调制而产生的变化,因此也避免了由于样品不同所带来的误差。这种技术是 Buckman 和 Bashara 在 1968 年首先采用的^[2-4]。用这种技术研究过的材料有 Au、Ag 和 Ge^[2-7]。这种技术也被用于电化学科学研究^[8,9]。关于 GaAs 用这种技术的研究到目前还未见报道。

二、理 论

1. 椭圆偏振角 ϕ 和 Δ 及其变化 $\delta\phi$ 和 $\delta\Delta$ 的计算公式

起偏器-样品-检偏器 (PSA) 静态光度型椭圆偏振仪便于波长连续扫描和原始数据曲线自动记录。装置示意地由图 1 给出。设反射表面是各向同性且无旋光性的均匀介质的平面界面。分别用 r_p 和 r_s 表示电矢量平行于和垂直于入射面的光波的复数振幅反射比,用 R_p 和 R_s 表示相应的能量反射率。利用通常的反射椭圆参数定义

$$\tan \phi e^{i\Delta} = \frac{r_p}{r_s} \quad (1)$$

则未给样品施加调制时, 对照在它上面的光通量线性响应的光电探测器 D 输出的静态光电信号 I_D 可表示为^[10]

$$I_D(P, A) = GR_s \sec^2 \phi [1 - \cos 2\phi (\cos 2A + \cos 2P) + \cos 2A \cos 2P + \sin 2\phi \cos \Delta \sin 2A \sin 2P], \quad (2)$$

其中 P 、 A 分别表示起偏器和检偏器的透光轴和入射面的夹角, 取迎着光传播方向看逆时针旋转为正。 G 是和装置有关的实常数。

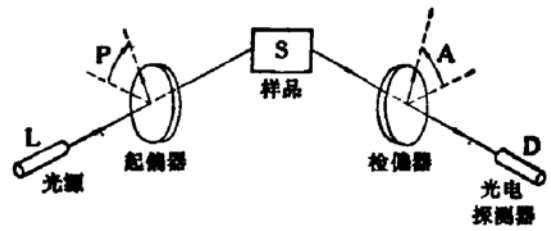


图1 PSA 静态光度型椭圆偏振仪装置示意图

为了测量和数据处理方便, 把起偏器置于 $P = \frac{\pi}{4}$ 固定方位, 而检偏器分别置于 $A = -\frac{\pi}{4}, 0, \frac{\pi}{4}$ 三个方位, 便可由(2)式得到如下方程组

$$I_{D1} = I_D\left(\frac{\pi}{4}, -\frac{\pi}{4}\right) = GR_s \sec^2 \phi (1 - \sin 2\phi \cos \Delta), \quad (3)$$

$$I_{D2} = I_D\left(\frac{\pi}{4}, 0\right) = GR_s \sec^2 \phi (1 - \cos 2\phi), \quad (4)$$

$$I_{D3} = I_D\left(\frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{4}\right) = GR_s \sec^2 \phi (1 + \sin 2\phi \cos \Delta). \quad (5)$$

记录三组 P 、 A 配置下的光电信号 I_{D1} 、 I_{D2} 和 I_{D3} 并解上述方程组, 便得到用观测量 I_{D1} 、 I_{D2} 和 I_{D3} 表示的椭圆偏振角 ϕ 和 Δ :

$$\phi = \frac{1}{2} \arccos [(I_{D1} - 2I_{D2} + I_{D3}) / (I_{D1} + I_{D3})], \quad (6)$$

$$\Delta = \arccos \{(I_{D3} - I_{D1}) / [(I_{D1} + I_{D3}) \sin 2\phi]\}. \quad (7)$$

考虑给样品施加调制的情形, 取(3)、(4)、(5)式的对数然后微分便有

$$\frac{\delta I_{D1}}{I_{D1}} = \frac{\delta R_s}{R_s} + \frac{2(\tan \phi - \cos \Delta)}{1 - \sin 2\phi \cos \Delta} \delta \phi + \frac{\sin 2\phi \sin \Delta}{1 - \sin 2\phi \cos \Delta} \delta \Delta, \quad (8)$$

$$\frac{\delta I_{D2}}{I_{D2}} = \frac{\delta R_s}{R_s} + \frac{4 \tan \phi}{1 - \cos 2\phi} \delta \phi, \quad (9)$$

$$\frac{\delta I_{D3}}{I_{D3}} = \frac{\delta R_s}{R_s} + \frac{2(\tan \phi + \cos \Delta)}{1 + \sin 2\phi \cos \Delta} \delta \phi - \frac{\sin 2\phi \sin \Delta}{1 + \sin 2\phi \cos \Delta} \delta \Delta. \quad (10)$$

测得交、直流光电信号的比 $\delta I_{D1}/I_{D1}$ 、 $\delta I_{D2}/I_{D2}$ 和 $\delta I_{D3}/I_{D3}$, 解上述方程组就得到 $\delta R_s/R_s$ 、 $\delta \phi$ 和 $\delta \Delta$ 。根据椭圆偏角 ϕ 的定义可以求得

$$\frac{\delta R_p}{R_p} = \frac{\delta R_s}{R_s} + \frac{4\delta \phi}{\sin 2\phi}. \quad (11)$$

2. 样品的光学常数及其变化的计算公式

样品的光学常数及其变化的计算公式依赖于模型的选择。对于未加调制的静态情形, 选择如图2所示的两相模型。于是复介电函数的实部 ϵ_1 和虚部 ϵ_2 可表示为^[1,11]

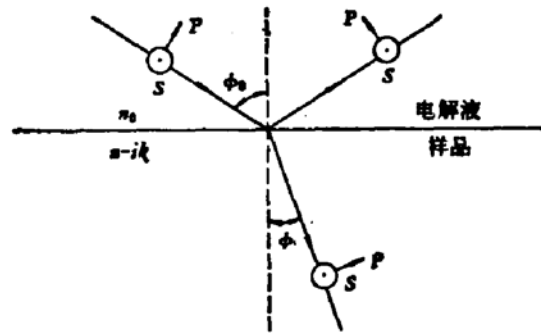


图2 两相模型示意图

$$\epsilon_1 = \left[\frac{\tan^2 \phi_0 (\cos^2 2\phi - \sin^2 2\phi \sin^2 \Delta)}{(1 + \sin 2\phi \cos \Delta)^2} + 1 \right] n_0^2 \sin^2 \phi_0, \quad (12)$$

$$\epsilon_2 = \frac{n_0^2 \sin^2 \phi_0 \tan^2 \phi_0 \sin 4\phi \sin \Delta}{(1 + \sin 2\phi \cos \Delta)^2}. \quad (13)$$

折射率 n 和消光系数 k 可表示为

$$n = \{[(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} + \epsilon_1]/2\}^{1/2}, \quad (14)$$

$$k = \{[(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} - \epsilon_1]/2\}^{1/2} = \epsilon_2/(2n). \quad (15)$$

自然光垂直入射反射率 R 可表示为

$$R = \frac{(n - n_0)^2 + k^2}{(n + n_0)^2 + k^2}. \quad (16)$$

对于施加调制的情形,如果样品的光学常数遍及样品整个体积发生均匀的微小变化,即采用所谓均匀体调制模型,只要微分上述光学常数的表达式就可得到光学常数微小变化的表达式

$$\begin{aligned} \delta \epsilon_1 = & - \frac{2n_0^2 \sin^2 \phi_0 \tan^2 \phi_0}{(1 + \sin 2\phi \cos \Delta)^3} \{ 2 \cos 2\phi [\sin 2\phi (1 + \sin 2\phi \cos \Delta) (1 \\ & + \sin^2 \Delta) + (\cos^2 2\phi - \sin^2 2\phi \sin^2 \Delta) \cos \Delta] \delta \phi \\ & + \sin 2\phi \sin \Delta [\sin 2\phi (1 + \sin 2\phi \cos \Delta) \cos \Delta \\ & - (\cos^2 2\phi - \sin^2 2\phi \sin^2 \Delta)] \delta \Delta \}, \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \delta \epsilon_2 = & \frac{n_0^2 \sin^2 \phi_0 \tan^2 \phi_0}{(1 + \sin 2\phi \cos \Delta)^3} \{ 4 \sin \Delta [\cos 4\phi (1 + \sin 2\phi \cos \Delta) \\ & - \cos 2\phi \sin 4\phi \cos \Delta] \delta \phi + \sin 4\phi [(1 + \sin 2\phi \cos \Delta) \cos \Delta \\ & + 2 \sin 2\phi \sin^2 \Delta] \delta \Delta \}, \end{aligned} \quad (18)$$

$$\delta n = \frac{n \delta \epsilon_1 + k \delta \epsilon_2}{2(n^2 + k^2)}, \quad (19)$$

$$\delta k = \frac{n \delta \epsilon_2 - k \delta \epsilon_1}{2(n^2 + k^2)}, \quad (20)$$

$$\frac{\delta R}{R} = \alpha \delta \epsilon_1 + \beta \delta \epsilon_2, \quad (21)$$

其中 α 和 β 称为 Seraphin 系数,表达式为

$$\alpha = \frac{2n_0 n (n^2 - n_0^2 - 3k^2)}{[(n - n_0)^2 + k^2][(n + n_0)^2 + k^2](n^2 + k^2)}, \quad (22)$$

$$\beta = \frac{2n_0k(3n^2 - n_0^2 - k^2)}{[(n - n_0)^2 + k^2][(n + n_0)^2 + k^2](n^2 + k^2)} \quad (23)$$

三、实 验

测量装置如图 3 所示. 以 500 瓦氙灯作为光源. 氙灯电源是有稳流装置的 SGQ-500-2 型汞氙灯、氙灯电源. 氙灯发出的光被石英透镜会聚到 WDG500-1 型光栅单色仪的入射狭缝. 入射和出射狭缝都开启到 0.3 毫米宽. 出射的单色光经过石英透镜被校成平行光束, 用铝平面镜反射到拆除四分之一波片后稍加改装的 JT75-1 型椭圆偏仪上. 光束经过起偏器及其前后的两个半径为 1 毫米的小孔变成线偏振光, 然后沿着圆柱形石英池的

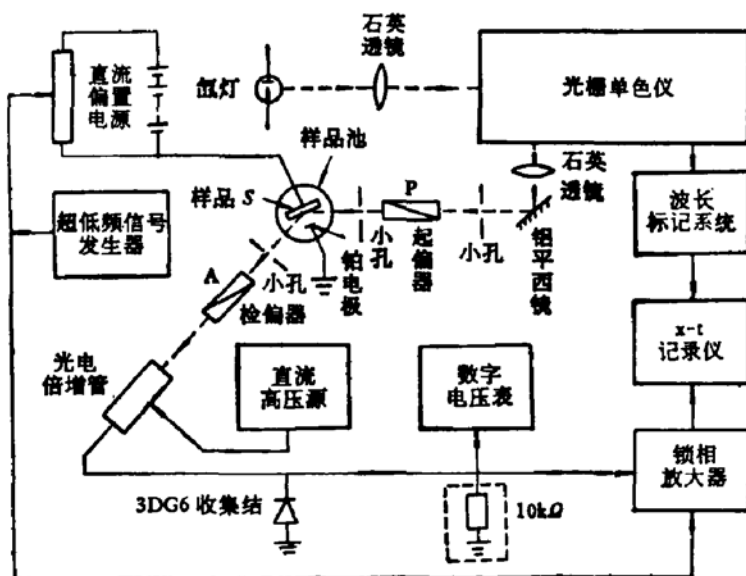


图 3 实验装置示意图

半径投射到样品表面. 样品池内盛有 1M 的 KCl 水溶液. 样品装在一个特制的样品架上, 以保证样品的反射表面位于通过圆柱轴线的纵截面内. 样品池壁只有入射角和反射角范围内的柱面透光, 其余部分被遮蔽, 以保证入射光和反射光均沿圆柱半径方向行进. 样品和插在电解液里与其相对的铂丝各为一个电极. 由于电池直流电源和 XFD-8 型超低频信号发生器确定工作点和施加调制. 这个调制电压同时也作为参考信号送给锁相放大器. 反射光束经过一个半径为 1 毫米的小孔和检偏器变成线偏振光, 最后被 R300 光电倍增管接收. 由 FH-426B 3KV 高压电源向光电倍增管提供直流高压. 光电倍增管采用阳极输出线路. 晶体管 3DG6 的收集结的正向动态电阻作为光电倍增管的负载. 在适当条件下, p-n 结正向动态电阻上输出的交流信号 δV 同交、直流光电信号之比 $\delta I_D / I_D$ 成正比.^[12,13] 这个条件是否满足可以用数字电压表测量 p-n 结两端的直流电压来监视. 交流信号 δV 被 FS-1 型锁相放大器放大. 然后由 XWT-16 型台式自动平衡记录仪描出 $\delta I_D / I_D$ 随波长变化的谱线. 应用经过仔细校正的以光控继电器为主体的波长记录系统, 适当选择单色仪波长扫描和记录仪走纸速率, 可使波长谱的测量偏差不超过 0.008 电子伏. 在测未加调制的静态值时, 用 10 千欧金属膜电阻作负载, 而不用 p-n 结作

负载。直流光电信号直接由 XWT-16 型台式自动平衡记录仪记录, 描出 I_D - λ 曲线, 不用锁相放大器。系统的光路完全屏蔽, 不必在暗室中测量。

测量的 n 型 GaAs 单晶样品掺碲 (Te) 的浓度是 4.2×10^{18} [厘米] $^{-3}$ 。反射面是用白刚玉粉抛光后经过用新配制的 $H_2SO_4:H_2O_2:H_2O = 8:1:1$ 腐蚀液趁热腐蚀三分之一的 (100) 面。直流偏压选 -0.6 伏, 调制选峰—峰值为 1.8 伏的方波, 频率为 160 赫兹。入射角 ϕ_0 为 70 度。测量是在光子能量 2.70—3.45 电子伏范围内进行的。测量时的室温是 298°K。未加调制电场之前, 把 P 固定于 $\frac{\pi}{4}$, 把 A 分别置于 $-\frac{\pi}{4}$ 、0 和 $\frac{\pi}{4}$, 用 10 千欧金属膜电阻作光电倍增管的负载, 测得直流光电信号 I_{D1} 、 I_{D2} 和 I_{D3} 的波长依赖曲线。然后加上调制电场, 在 P、A 的上述配置下, 用 3DG6 的收集结作光电倍增管的负载, 测得交、直流光电信号的比 $\delta I_{D1}/I_{D1}$ 、 $\delta I_{D2}/I_{D2}$ 和 $\delta I_{D3}/I_{D3}$ 的波长依赖曲线。这两组原始曲线都用记录仪自动记录下来。

四、结果和讨论

KCl 水溶液和 GaAs 的界面可以看作各向同性且无旋光性的界面。对原始数据每隔光波长 10 埃取一个点, 应用理论部分给出的公式进行计算, 结果得到了 ϕ 、 Δ 、 $\delta\phi$ 、 $\delta\Delta$ 、 $\delta R_s/R_s$ 和 $\delta R_p/R_p$ 的光子能量依赖曲线, 分别如图 4、5、6 所示。

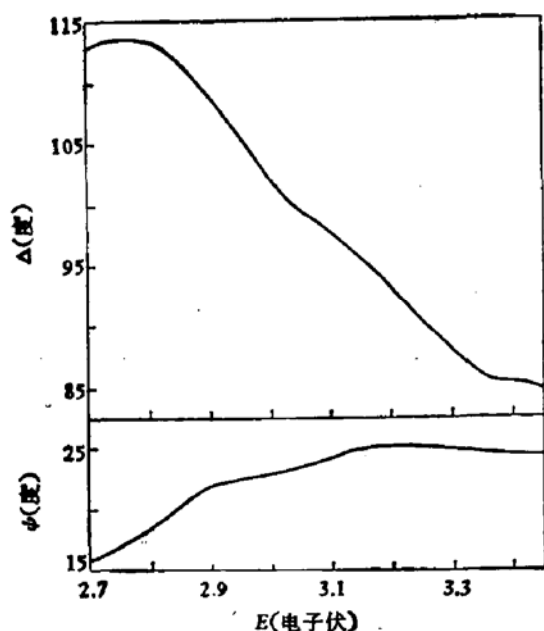


图 4 椭圆角 ϕ 和 Δ 的谱

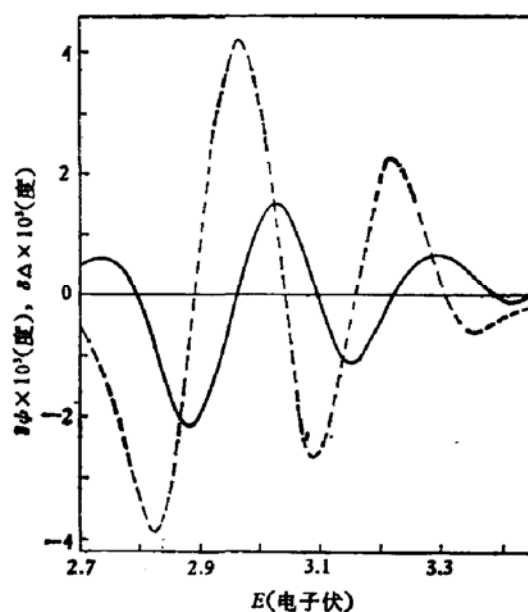


图 5 椭圆角的变化—— $\delta\phi$ 和 $-\delta\Delta$ 的谱

对于未加调制的静态情形, 虽然测量前对样品的氧化膜进行了仔细的清除, 但是 GaAs 浸在 KCl 水溶液里还会形成氧化膜。然而在测量的光谱范围内, 这层氧化膜可以看成折射率不变的透明膜。^[14] 预计氧化膜的影响不会严重地改变光学常数谱的结构^[15,16]。由于这里关心的主要是光谱的结构, 所以为了数据处理简单, 忽略氧化膜, 采用 GaAs-KCl 水溶液两相模型, 计算 GaAs 光学常数的表观值。认为 KCl 水溶液完全透明, 取 $n_0 =$

1.333. 结果得到的光学常数 ϵ_1 、 ϵ_2 、 n 、 k 和 R 的谱基本上反映出了结构特征。 R 谱可以同 Ehrenreich 等^[17]以及 Philipp 和 Ehrenreich^[18] 直接测得的真空-GaAs 界面的反射率 R 谱定性地比较。由于实验条件不一样,不可能进行定量的比较。 ϵ_1 、 ϵ_2 、 n 和 k 的谱同 Philipp 和 Ehrenreich^[18] 以及 Соболев^[19] 利用真空-GaAs 界面反射率 R 谱通过 K-K 关系得到的 ϵ_1 、 ϵ_2 、 n 和 k 谱。 Aspnes^[20] 用高分辨率光谱椭圆仪得到的 ϵ_2 谱比较,定性地一致,数值偏差较大。但偏差的方向和忽略氧化膜引起的偏差方向一致, ϵ_1 、 ϵ_2 和 n 都偏小, k 偏大^[15,16]。所以,在计算模型中忽略氧化膜可能是引起较大偏差的主要原因。由于实验中度量绝对光强,偏振器的不完善性也会引起误差。样品的差异、KCl 水溶液的色散和双电层所引起的偏差可能是次要的。

对于施加调制的情形,由于 1M 的 KCl 水溶液离子浓度足够高,致使溶液中的双电层 (Helmholtz 层和 Gouy 层)很薄,并且通过的电流很小,所以降落在上面的电压可以忽略,认为电压全部降落在 GaAs 的空间电荷区上。在测量的光谱范围内,溶液中的双电层和 GaAs 的天然氧化膜的光学性质随波长的变化,同 GaAs 的光学性质随波长的变化比较,是非常缓慢的,即没有明显的结构。所以它们对计算 GaAs 的光学常数及其变化的影响主要是改变谱值的大小,而谱线的形状不会发生本质的变化^[5,6]。因此忽略电解液中双电层和天然氧化膜的影响。n 型 GaAs 和 KCl 水溶液接触形成的 GaAs 一侧的空间电荷区足够厚,而光的穿透深度又较小,所以在耗尽层近似下,考虑不均匀电场的平均效果,可以近似地认为是均匀体调制。采用均匀体调制模型,计算得到复介电函数的变化 $\delta\epsilon_1$ 和 $\delta\epsilon_2$ (图 7)、折射率的变化 δn 和消光系数的变化 δk (图 8)、Seraphin 系数 α 和 β 以及自然光垂直入射反射率的相对变化 $\delta R/R$ 。计算得到的 $\delta R/R$ 谱同用同一样品由实验测得的 $\delta R/R$ 谱符合得很好,如图 9 所示。说明实验可靠、模型合理。

施加调制后测得的信号主要是由 Franz-Keldysh 效应产生的。Pockels 效应可以忽略。因为在本实验条件下估算的 Pockels 效应对折射率数值的影响要比测得的信号小得多,即使有影响也不会产生如此强烈的结构。所以对施加调制测得的信号全都按 Franz-Keldysh 效应分析。

$\delta R/R$ 谱负峰对应的能量分别在 $E_1 = 2.86$ 电子伏, $E_1 + \Delta_1 = 3.12$ 电子伏,而峰之间的距离 $\Delta_1 = 0.26$ 电子伏,对应于价带的自旋-轨道劈裂。两正峰分别为 3.01 电子伏和 3.25 电子伏,两峰之间的距离为 0.24 电子伏。这里是根据 Cardona 等人的讨论^[21],把负峰取为主峰。这个结果可以同报道的 n 型 GaAs 电解液电反射谱比较^[21,22]。把它同

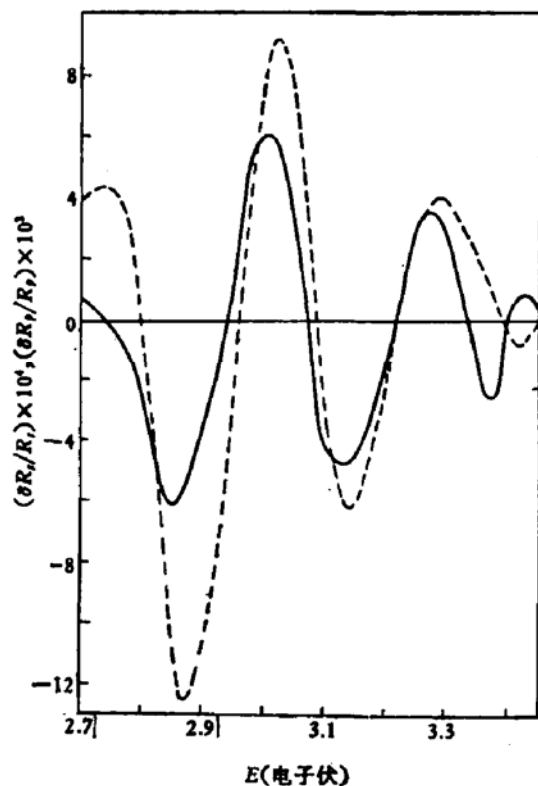


图 6 S 波和 P 波反射率的相对变化
—— $\delta R_s/R_s$ 和 --- $\delta R_p/R_p$ 的谱

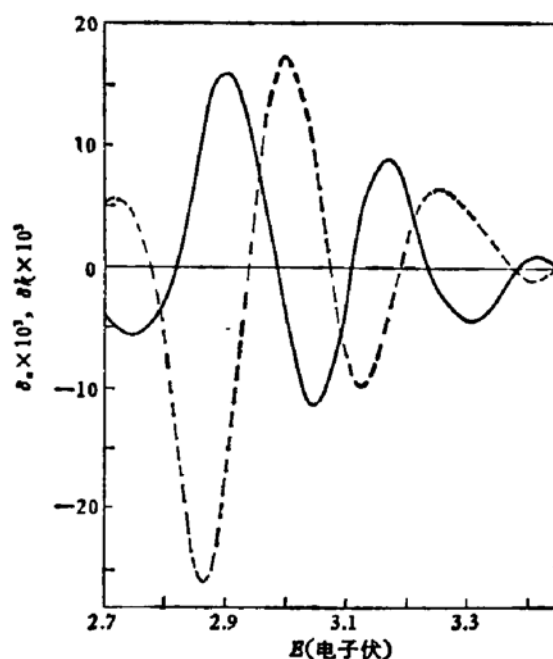
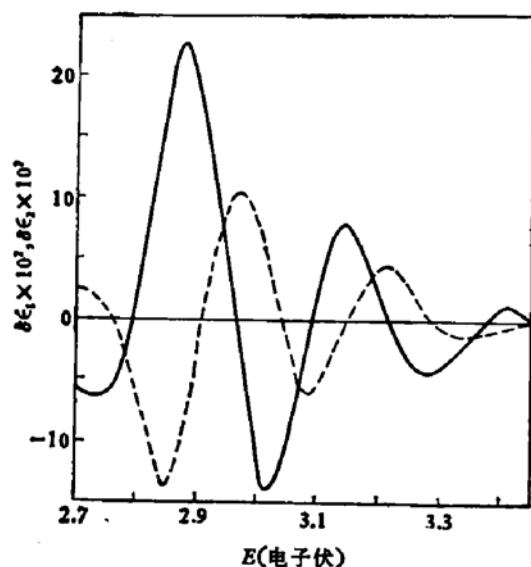


图7 复介电函数的变化—— $\delta\epsilon_1$ 和 $\delta\epsilon_2$ 的谱 图8 折射率的变化—— δn 和消光系数的变化—— δk 的谱

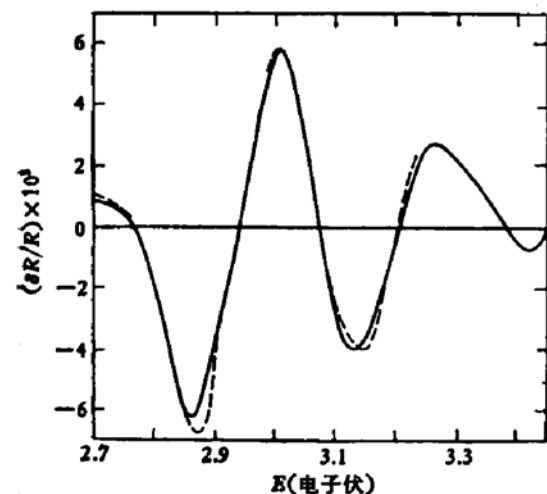


图9 $E_1 - (E_1 + \Delta_1)$ 峰附近的 n 型 GaAs 的电反射谱
——间接计算值, ----直接测量值

$\Lambda_3 - \Lambda_1$ 间的跃迁。

把测得的 $\delta\epsilon_1$ 和 $\delta\epsilon_2$ 谱同根据不同类型临界点计算出的 $\delta\epsilon_1$ 和 $\delta\epsilon_2$ 谱比较^[24], 并且考虑到寿命增宽效应,^[25]可以判定临界点是 M_1 型的。这个结论同根据改变平均电场引起的信号峰值移动的方向判断临界点的类型得到的结论一致^[26,27]。另外, 测得的 δn 谱同根据 M_0 型临界点计算得到的 δn 谱不同^[28], 也从反面证明不是 M_0 型临界点引起的跃迁。

如果采用表面薄层调制模型, 利用 $\delta R_s/R_s$ 和 $\delta R_p/R_p$ 谱可以直接求出薄层厚度。这比拟合法优越得多^[3,4], 并且可以引入有效厚度的概念, 在不同波长下使用不同厚度。虽然

建立了方程, 但没有具体求解验证, 目前只是一个设想。

总之, 尽管采用的模型比较简单, 但是调制谱的特点基本保持, 结构上的特征是明显的。结果能够同已有的实验资料比较, 并且在某种程度上同理论值对比。

本工作是在刘文明和胡德宝老师指导下完成的。得到了孙长河和张丽云老师以及刘晓敏同志的大力帮助。蔡敏、王松江、王朝晖和陈信琦同学参加了大量的实验和数据处理工作。在此表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- [1] D. E. Aspnes, Optical Properties of Solids: New Developments, Ed. B. O. Seraphin, North-

- Holland, Amsterdam (1976), p. 790.
- [2] A. B. Buckman and N. M. Bashara, *J. Opt. Soc. Am.* **58**, 700 (1968).
 - [3] A. B. Buckman and N. M. Bashara, *Phys. Rev.* **174**, 719 (1968).
 - [4] A. B. Buckman, *Surface Sci.*, **16**, 193 (1969).
 - [5] E. Schmidt and W. H. Knausenberger, *J. Opt. Soc. Am.*, **59**, 857 (1969).
 - [6] A. B. Buckman, *J. Opt. Soc. Am.*, **60**, 416 (1970).
 - [7] E. Yang and A. B. Buckman, *Phys. Rev.*, **B5**, 2242 (1972).
 - [8] B. D. Cahan et al., *Surface Sci.*, **37**, 559 (1973).
 - [9] S. Gottesfold and B. Reichman, *Surface Sci.*, **44**, 377 (1974).
 - [10] R. M. Azzam and N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light*, North-Holland, Amsterdam (1977), p. 256.
 - [11] W. -K. Paik, *Electrochemistry*, Ed. J. O'M. Bockris, Butterworths, London (1973), p. 239.
 - [12] B. A. Тягай, В. Н. Бондаренко, *ПТЭ*, **2**, 236 (1970).
 - [13] 胡德宝、孙长河和张丽云, 电调制反射谱的测量, 全国第三次半导体物理学术会议资料无锡(1981).
 - [14] D. E. Aspnes and B. Schwartz, cited in ref. [1], p. 815.
 - [15] R. J. Archer, cited in ref. [10], p. 423.
 - [16] D. E. Aspnes, cited in ref. [1], p. 830.
 - [17] H. Ehrenreich et al., *Phys. Rev. Letters* **8**, 59 (1962).
 - [18] H. R. Philipp and H. Ehrenreich, *Phys. Rev.*, **129**, 1550 (1963).
 - [19] В. В. Соболев, Оптические фундаментальные спектры соединений группы $A^{III}B^V$, Кишинев "Штиинца" (1979), С.133.
 - [20] D. E. Aspnes, cited in ref. [1], p. 826.
 - [21] M. Cardona et al., *Phys. Rev.*, **154**, 696 (1966).
 - [22] A. G. Thompson et al., *Phys. Rev.*, **146**, 601 (1966).
 - [23] F. H. Pollak et al., *J. Phys. Soc. Japan Suppl.* **21**, 20 (1966).
 - [24] Y. Hamakawa et al., *Phys. Rev.*, **169**, 709 (1967).
 - [25] D. E. Aspnes and M. Cardona, *Phys. Rev.*, **173**, 714 (1968).
 - [26] B. O. Seraphin, *Proc. Phys. Soc. London*, **87**, 239 (1966).
 - [27] B. O. Seraphin and N. Bottka, *Phys. Rev.*, **145**, 628 (1966).
 - [28] B. O. Seraphin and N. Bottka, *Appl. Phys. Letters*, **6**, 134 (1965).

Electrolyte Electric Field Modulated Ellipsometric Spectrum of GaAs

Jia Gang

(Department of Electronic Science, Jilin University)

Abstract

An experimental set-up for electrolyte electric field modulated ellipsometry has been built up. The dynamic resistance of a forward biased silicon p-n junction is used as the load of the photomultiplier so that division of a. c. signals by d. c. signals is automatically performed. The PSA static photometric ellipsometer is adopted so as to realize the continuous wavelength scan and the record of original data. An n type GaAs sample is measured in the photon energy range of 2.70—3.45 eV. The real part ϵ_1 and the imaginary part ϵ_2 of the complex dielectric function are calculated with the two-phase system model. The modulation-induced changes, $\delta\epsilon_1$ and $\delta\epsilon_2$, in ϵ_1 and ϵ_2 , are also calculated with the uniform bulk modulation model. The relative change in normal incidence reflectance of natural light, $\delta R/R$, obtained by the calculation agrees very well with that obtained by the experiment.