

Собственные колебания электронов в гранулах теллура, осажденных на шероховатые поверхности

И. Н. Шкляревский, Ю. Ю. Бондаренко, Н. А. Макаровский

Харьковский государственный университет, Украина, 310077, г. Харьков, пл. Свободы, 4
E-mail: yurij.y.bondarenko@univer.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 28 мая 1999 г.

Осажденные на нагретые до 150 °С шероховатые поверхности монокристаллов NaCl и KCl гранулярные пленки теллура состоят из двух слоев, в каждом из которых одновременно возбуждается по одной резонансной полосе. В изолированных друг от друга гранулах верхнего слоя возбуждается полоса с частотой собственных колебаний электронов ω_0 . По измеренным ω_0 и диэлектрическим постоянным NaCl и KCl рассчитана плазменная частота массивного теллура.

Осажені на нагріті до 150 °С шорсткі поверхні монокристалів NaCl та KCl гранулярні плівки телура складаються з двох шарів, в кожному з яких одночасно збуджується по одній резонансній смузі. В ізолюваних одна від одної гранулах верхнього шара збуджується смуга з частотою власних коливань електронів ω_0 . По виміряним ω_0 та діелектричним сталим NaCl та KCl розраховано плазмову частоту масивного телура.

PACS: 78.20.-e, 78.40.Kc

Статья посвящается памяти академика НАН Украины Б. И. Веркина, который проявлял интерес к исследованиям по этой тематике.

1. Введение

Впервые плазменный резонанс в гранулярных пленках теллура обнаружен в [1]. В сплошных пленках теллура в низкочастотной области спектра наблюдается довольно мощная полоса межзонного поглощения с максимумом в районе $\omega \approx 3,2 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$ [1–3]. После отжига при температуре 150 °С сплошная пленка теллура распадается на мелкие гранулы, а в ближней УФ области спектра возникает полоса резонансного поглощения, оптические свойства которой тождественны свойствам полосы плазменного резонанса в гранулярных пленках благородных металлов и металлов третьей группы.

Резонансная частота плазменных колебаний в гранулярных пленках этих металлов равна [4,5]

$$\omega_s^2 = \frac{\omega_p^2}{\epsilon_m + 2\epsilon_0} - \frac{\omega_p^2}{3\epsilon} \left(\frac{a_0}{a}\right)^3 S = \omega_0^2 - \omega'^2, \quad (1)$$

где ω_p — плазменная частота, равная

$$\omega_p = \frac{4\pi N e^2}{m}, \quad (2)$$

N , e и m — концентрация, заряд и масса электронов; ω_0 — частота собственных колебаний электронов в грануле; ϵ_m — диэлектрическая постоянная, обусловленная межзонными переходами в металле; ϵ_0 — диэлектрическая постоянная среды, окружающей гранулы; $\bar{\epsilon} = q\epsilon_m + (1 - q)\epsilon_0$ — диэлектрическая постоянная гранулярной пленки, q — фактор заполнения, т.е. удельный объем гранул в пленке. Второе слагаемое в (1) получено для модели, в которой сферические гранулы одинакового радиуса a_0 находятся в узлах квадратной решетки с постоянной a [4]. Получающийся в результате суммирования полей гранул-диполей множитель S равен 2–3. Отношение a_0/a может быть выражено через фактор заполнения q :

$$\frac{a_0}{a} = \left(\frac{3q}{2\pi}\right)^{1/2}. \quad (3)$$

Появляющееся вследствие дипольного взаимодействия поле E_d существенно влияет на частоту ω_s плазменного резонанса, который возникает в совокупности гранул-диполей данного металла с диэлектрической постоянной ϵ_m и диэлектрической постоянной ϵ_0 окружающей гранулы среды. Кроме зависимости от диэлектрических постоянных ϵ_m и ϵ_0 частота плазменного резонанса существенно зависит от фактора заполнения q . Устранив дипольное взаимодействие между гранулами, т.е. переходя к совокупности изолированных друг от друга гранул, мы получаем возможность определить частоту собственных колебаний электронов в грануле ω_0 . В осажденных на кварцевые подложки гранулярных пленках благородных металлов и металлов третьей группы всегда возбуждается только одна полоса плазменного резонанса с частотой ω_s . Однако в осажденных на специально приготовленные шероховатые поверхности монокристаллов NaCl и KCl гранулярных пленках золота [6] и индия [7] удалось получить две полосы плазменного резонанса: низкочастотную с частотой ω_s и высокочастотную с частотой ω_0 . Последняя при наклонном падении света на гранулярную пленку не расщепляется на s - и p -компоненты [8], что возможно только при отсутствии дипольного взаимодействия между гранулами.

2. Экспериментальные результаты

В настоящей работе излагаются результаты исследования одновременного возбуждения двух полос плазменного резонанса гранулярных пленок теллура, осажденных на шероховатые поверхности монокристаллов NaCl и KCl, измерения собственной частоты ω_0 колебаний электронов в грануле теллура и расчет плазменной частоты ω_p массивного теллура.

Методика приготовления шероховатых поверхностей монокристаллов NaCl и KCl описана в [6,7]. В высоком вакууме на нагретые до 150 °С шероховатые поверхности этих монокристаллов осаждались гранулярные пленки теллура различной толщины и выдерживались в этом вакууме 30–40 минут. После измерения на спектрофотометре СФ-26 спектральной зависимости пропускания T на полученные пленки в высоком вакууме при комнатной температуре подложки наносились соответственно довольно толстые слои хлористого натрия и хлористого калия. Пленки выдерживались в вакууме в течение одного часа, после чего снова измерялись спектральные

зависимости пропускания T и строились спектральные зависимости оптической плотности $D(\omega) = -\lg T(\omega)$. Для каждой пленки были получены две спектральные зависимости D : осажденной на шероховатую поверхность монокристалла NaCl (KCl) исходной гранулярной пленки теллура и той же

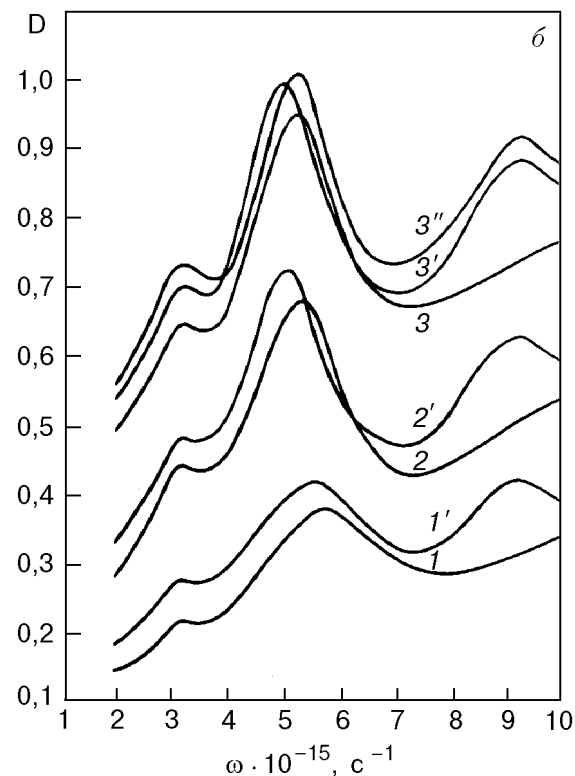
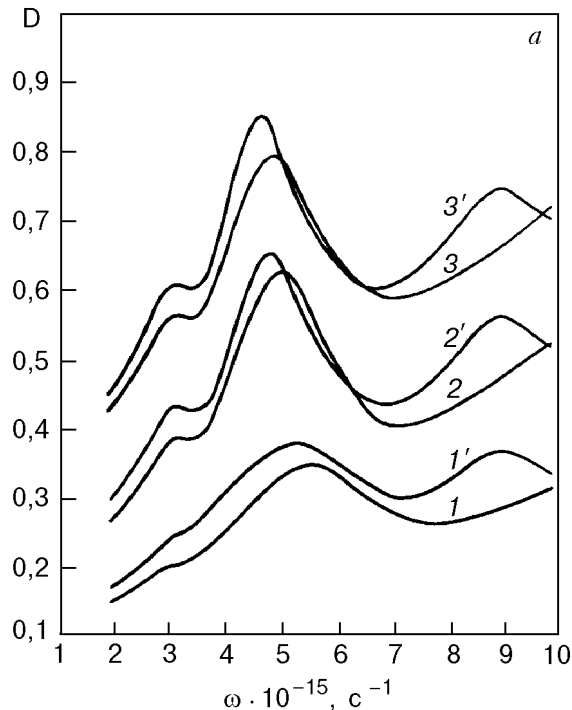


Рис. 1. Спектральная зависимость оптической плотности D гранулярных пленок Te, осажденных на NaCl (а) и KCl (б).

гранулярной пленки, гранулы которой были окружены диэлектриком.

На рис. 1 приведены спектральные зависимости оптической плотности D гранулярных пленок теллура различной эффективной толщины, осажденных на шероховатые поверхности монокристаллов NaCl (рис. 1,а) и KCl (рис. 1,б). Кривые 1–3 соответствуют исходным гранулярным пленкам, а кривые 1'–3' – тем же гранулярным пленкам, на которые в высоком вакууме были осаждены хлористый натрий и хлористый калий. Кривая 3'' – зависимость $D(\omega)$, снятая для p -компоненты при наклонном (под углом $\varphi = 45^\circ$) падении света на гранулярную пленку. При нормальном и наклонном падении света на гранулярную пленку максимумы высокочастотных резонансных полос совпадают. На зависимостях $D(\omega)$ исходных гранулярных пленок теллура, осажденных на шероховатые поверхности монокристаллов NaCl и KCl, в отличие от [6,7] обнаружена только одна полоса с частотой ω_s . С ростом эффективной толщины гранулярных пленок теллура интенсивность резонансных полос резко возрастает, а их частота ω_s уменьшается. Последнее связано с ростом частоты ω' , т.е. с ростом создаваемого гранулами-диполями поля. Вторая – высокочастотная полоса плазменного резонанса появилась после осаждения на исходные гранулярные пленки теллура соответствующего диэлектрика. Независимость максимумов этих полос от эффективной толщины гранулярных пленок теллура, т.е. от размеров гранул (кривые 1'–3') и от угла падения света на пленку (рис. 1,б, кривая 3'') свидетельствует об отсутствии дипольного взаимодействия между соответствующими гранулами.

Одновременное появление низкочастотной полосы плазменного резонанса, зависящей от дипольного взаимодействия между гранулами, и высокочастотной резонансной полосы, возбуждающейся в изолированных друг от друга гранулах, возможно только в том случае, когда гранулярная пленка состоит из двух слоев. Большая часть гранул, проникших внутрь шероховатости, образует нижний слой, гранулы которого окружены соответствующим диэлектриком. Небольшая часть гранул оседает на вершинах шероховатости, образуя верхний слой не взаимодействующих друг с другом гранул. В этих гранулах и возбуждаются колебания электронов с частотой ω_0 .

В исходных гранулярных пленках теллура осевшие на вершинах шероховатостей гранулы теллура окружены средой с малым значением диэлектрической постоянной ϵ_0 . После

осаждения диэлектрика диэлектрическая постоянная окружающей гранулы среды резко возрастает, а лежащие при недоступных измерениям на спектрофотометре СФ-26 частотах высокочастотные резонансные полосы смещаются в УФ область спектра (кривые 1'–3').

После осаждения диэлектрика на гранулярные пленки теллура спектральные зависимости D низкочастотных полос плазменного резонанса незначительно отличаются от $D(\omega)$ исходных гранулярных пленок, так как в этом случае диэлектрическая постоянная ϵ_0 среды, окружающей проникшие внутрь шероховатости гранулы, увеличивается на небольшую величину. Увеличение эффективной толщины гранулярных пленок теллура приводит к увеличению оптической плотности полос плазменного резонанса. При прочих равных условиях резонансные полосы гранулярных пленок теллура, гранулы которых окружены хлористым натрием (рис. 1,а), из-за больших значений диэлектрической постоянной ϵ_0 окружающей их среды смещены в низкочастотную область спектра по сравнению с полосами пленок теллура, гранулы которых окружены хлористым калием (рис. 1,б).

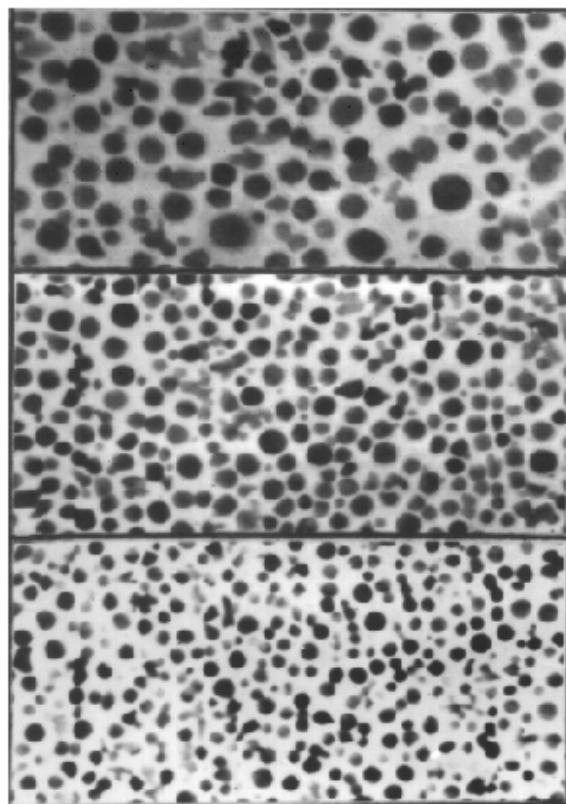


Рис. 2. Электронно-микроскопические снимки гранулярных пленок Te, осажденных на KCl. Увеличение 100 000.

Как следует из рис. 1, на низкочастотный край низкочастотной полосы плазменного резонанса накладывается полоса межзонного поглощения теллура. При независимой, естественно, от диэлектрической постоянной ϵ_0 частоте $\omega \approx 3,2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ хорошо виден максимум поглощения этой полосы. Асимметрия полос плазменного резонанса была обнаружена и в [1] для гранулярных пленок теллура, осажденных на кварцевые подложки.

На рис. 2 приведены электронно-микроскопические снимки осажденных на шероховатые поверхности монокристаллов KCl гранулярных пленок теллура, спектральные зависимости D которых приведены на рис. 1, б. Чем крупнее гранулы, тем интенсивнее полосы плазменного резонанса. В отличие от исследованных в [1] гранулы теллура правильной сферической формы, часть гранул образует хорошо различимые цепочки — результат декорирования ступеней монокристаллов, образовавшихся при отжиге [7]. Выделить гранулы, в которых возбуждаются высокочастотные полосы, невозможно. Электронно-микроскопические снимки гранулярных пленок теллура, осажденных на шероховатые поверхности монокристаллов NaCl, подобны приведенным на рис. 2.

3. Плазменная частота теллура

При отсутствии дипольного взаимодействия между гранулами теллура в тех областях спектра, где в теллуре нет межзонного поглощения, частота собственных колебаний электронов в грануле равна

$$\omega_0 = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + 2\epsilon_0}}. \quad (4)$$

Для окруженных хлористым натрием гранул теллура частота собственных колебаний электронов $\omega_0 = 9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, а для гранул теллура, окруженных хлористым калием, $\omega_0 = 9,2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Для этих частот диэлектрическая постоянная для хлористого натрия $\epsilon_0 = 3,2$, а для хлористого калия $\epsilon_0 = 2,88$ [9,10]. В гранулах теллура в области частот собственных колебаний электронов межзонное поглощение отсутствует, это позволяет рассчитать по (4) его плазменную частоту. Для изолированных гранул теллура, окруженных хлористым натрием, плазменная частота $\omega_p = 24,5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, а для окруженных хлористым калием $\omega_p = 23,9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. В пределах ошибок

измерений эти величины совпадают друг с другом и достаточно хорошо согласуются с плазменной частотой $\omega_p = 25,5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ [11], полученной путем измерений энергетических потерь электронов в тонких пленках теллура, и с плазменной частотой $\omega_p = 23,4 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ [2], рассчитанной для свободных шести валентных электронов на атом.

4. Заключение

В гранулярных пленках теллура кроме полосы межзонного поглощения возбуждается полоса плазменного резонанса, оптические свойства которой подобны свойствам полос плазменного резонанса благородных металлов и металлов третьей группы. Устранение дипольного взаимодействия между гранулами приводит к возбуждению резонансной полосы с частотой ω_0 собственных колебаний электронов в грануле теллура. По измеренной частоте ω_0 и известной диэлектрической постоянной среды, окружающей гранулу, рассчитана плазменная частота теллура. Полученные результаты свидетельствуют о том, что в гранулированном состоянии у теллура доминируют свойства металла.

1. Р. Б. Аль-Абделла, В. П. Костюк, И. Н. Шкляревский, *Опт. и спектр.* **48**, 1143 (1980).
2. J. N. Hodgson, *J. Phys. Chem. Solids* **23**, 1737 (1962).
3. J. Stuke and H. Keller, *Phys. Status Solidi* **7**, 189 (1964).
4. И. Н. Шкляревский, П. Л. Пахомов, Т. И. Корнеева, *Опт. и спектр.* **34**, 729 (1973).
5. Л. А. Агеев, В. К. Милославский, И. Н. Шкляревский, *УФЖ* **21**, 1681 (1976).
6. Н. А. Макаровский, И. Н. Шкляревский, *Опт. и спектр.* **81**, 248 (1996).
7. Ю. Ю. Бондаренко, Н. А. Макаровский, И. Н. Шкляревский, *Журн. прикл. спектр.* **65**, 799 (1998).
8. И. Н. Шкляревский, Г. С. Бляшенко, *Опт. и спектр.* **44**, 545 (1978).
9. *Сборник физических величин*, ОНТИ, Ленинград (1937).
10. *Таблицы физических величин*, Атомиздат, Москва (1976).
11. J. J. Robins, *Proc. Phys. Soc. London* **79**, 119 (1962).

Natural electron oscillations in Te granules deposited onto rough surfaces

I. N. Shklyarevsky, Yu. Yu. Bondarenko, and N. A. Makarovsky

The granular tellurium films deposited on heated to 150 °C rough surfaces of NaCl and KCl single crystals consist of two layers, one resonance band being excited in each of the layers. These bands are excited simultaneously. A band of natural electron oscillation frequency ω_0 is excited in the upper layer granules isolated from each other. The plasma frequency of bulk tellurium is calculated by the mea-

sured ω_0 and the known dielectric constants of NaCl and KCl.