

Оптические функции модели Друде: трансформация спектров в широком интервале значений параметров

А. И. Галуза, А. Б. Безносков

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, Харьков, 61164, Украина
E-mail: galuza@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 29 августа 2000 г., после переработки 18 октября 2000 г.

Спектральные особенности оптических функций модели Друде исследованы в широком интервале значений параметров — плазменной частоты носителей тока ω_p , транспортной частоты релаксации g , диэлектрической проницаемости ϵ_∞ , обусловленной высокоэнергетическими электронными переходами в системе. Определены условия а) корневой частотной зависимости для модуля и фазы отражения; б) линейности фазы $\theta = 2\omega/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} + \theta_0$; в) наличия плазменного порога отражения. Получены приближенные соотношения, позволяющие упростить анализ данных по оптическому отражению и характеристическим потерям энергии электронов как в «хороших» металлах, так и в материалах с сильной температурной зависимостью электропроводности (полупроводники, допированные и нестехиометрические оксиды, гранулированные металлические пленки, аморфные сплавы). Определены параметры системы электронов проводимости в Al и U_2Zn_{17} .

Спектральні особливості оптичних функцій моделі Друде досліджено в широкому інтервалі значень параметрів — плазмової частоти носіїв струму ω_p , транспортної частоти їх релаксації g , діелектричної проникності ϵ_∞ , обумовленої високоенергетичними електронними переходами в системі. Визначено умови а) кореневої частотної залежності для модуля і фази відбиття; б) лінійності фази $\theta = 2\omega/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} + \theta_0$; в) присутності плазмового порогу відбиття. Одержано наближені співвідношення, що дозволяють спростити аналіз даних щодо оптичного відбиття і характеристичних утрат енергії електронів як в «добрих» металах, так і в матеріалах із значною температурною залежністю електропровідності (напівпровідники, доповані і нестехіометричні оксиди, гранульовані металічні плівки, аморфні сплави). Визначено параметри системи електронів провідності в Al і U_2Zn_{17} .

PACS: 78.20.Bh, 78.20.-e

С бурным развитием микроэлектроники в последней четверти XX века резко возросла актуальность проблемы управления электрической проводимостью вещества в широком интервале температур. Массовое использование полупроводников, в том числе магнитных, а также открытие высокотемпературных сверхпроводников вызвало повышенный интерес к исследованию их электронной системы оптическими методами.

При интерпретации результатов оптических измерений проводящих тел чаще всего используется так называемая модель Друде (МД), которая, несмотря на внешнюю простоту, требует тем не менее внимательного подхода при анализе отдельных спектральных интервалов. В общем не

малое число параметров (в расширенной модели их три: ω_p — плазменная частота носителей тока, g — транспортная частота их релаксации, ϵ_∞ — диэлектрическая проницаемость, обусловленная поляризацией атомных остовов) и большое число используемых оптических функций (вещественной $\epsilon_1(\omega)$ и мнимой $\epsilon_2(\omega)$ компонент диэлектрической проницаемости, модуля $r(\omega)$ и фазы $\theta(\omega)$ оптического отражения, оптической проводимости $\sigma(\omega)$, функции энергетических потерь $L(\omega)$ и др.), обладающих разной чувствительностью к отдельным параметрам МД и комбинациям их значений, осложняют поиск оптимальной интерпретации данных оптических исследований. Это особенно заметно при сопоставлении результатов, получен-

ных различными авторами с помощью различных методик при большом диапазоне изменения параметров, прежде всего g и ω_p (переходы типа «металл–диэлектрик» в кристаллах [1,2] и аморфных веществах [1,3], системы с гигантским магниторезистивным эффектом [3–7] и т.п.).

Большие изменения электропроводности вещества могут быть следствием качественного изменения механизма проводимости, что радикально отражается как на температурных и полевых эффектах, так и на спектральном поведении оптических функций [3,8]. Знание соответствующих особенностей, порождаемых друдевским механизмом проводимости, способствует проведению корректного разделения различных вкладов в оптические характеристики. Потребность в такого рода анализе и обусловила постановку задачи в настоящей работе — определение основных закономерностей спектрального поведения оптических функций модели Друде и их трансформации при изменении параметров модели в широком интервале значений.

Модель Друде

В 1900 г. были опубликованы две статьи Друде [9] по электронной теории металлов в приближении модели свободных электронов, которые заложили основу для объяснения оптических свойств металлов и других проводящих материалов (эти работы подробно обсуждаются в монографии Лорентца [10]). Минувшие сто лет электронная теория развивалась, стала квантовой [11], пополнилась понятиями многочисленных квазичастиц. Тем не менее до сих пор успешно используется и чисто классическая модель Друде, с помощью которой оказывается возможным объяснение многих новых результатов [12].

С началом широкого изучения физических свойств полупроводников МД становится важным и зачастую основным инструментом исследования их низкочастотного оптического поглощения, связанного с носителями тока [13–15]. При этом сложное взаимодействие совокупности зонных электронов с остовами атомов часто можно учесть всего лишь введением эффективной массы m^* и знака заряда носителей тока. Уместно заметить, что Друде в своей теории [16] предположил также существование двух типов носителей с аддитивными вкладами в величину поглощения, как

бы предвидя открытие полупроводников и значение его модели для изучения последних.

Следующий пик востребования МД связан с открытием высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), при оптических исследованиях которых в ИК области в большинстве работ результаты трактуются с привлечением в той или иной форме МД. Так, в [17] три параметра Друде для YBaCuO определены аппроксимацией кривой отражения в интервале $1 \text{ эВ} < E < 1,9 \text{ эВ}$, в [18,19] диапазон был расширен до 3 эВ , а в [20] — до $5,6 \text{ эВ}$ (при этом в [19,20] исследовалась анизотропия оптических характеристик). Вследствие невысокой концентрации носителей в ИК спектрах ВТСП могут проявляться фоновые пики, а в видимой области — сильные полосы межзонных переходов. В таких случаях адекватность описания наблюдаемых спектров чаще всего достигается добавлением к МД лорентцевских осцилляторов [21–24], хотя в некоторых работах используются модификации МД с увеличенным числом параметров [25–27]; модель Друде для нормального металла органично сопрягается [28] с моделью Маттиса–Бардина для сверхпроводника [29]. Не вызывает сомнения продуктивность привлечения модели Друде при исследовании новых перспективных проводящих материалов, в частности структур с металлическими слоями нанометровой толщины, манганитов [3,4,6,7], систем с коррелированными электронами [30].

Полученные в рамках МД выражения для вещественной части динамической диэлектрической проницаемости $\epsilon_1(\omega)$ и динамической проводимости $\sigma(\omega)$ называют формулами Друде–Зинера [11], Друде–Лорентца* [12], Друде–Кронига [15]:

$$\sigma(\omega) = \frac{Ne^2}{m^*} \frac{g}{\omega^2 + g^2} = \frac{g^2}{\omega^2 + g^2} \sigma_0, \quad (1)$$

$$\epsilon_1(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \frac{1}{\omega^2 + g^2} = \epsilon_\infty - \frac{4\pi g}{\omega^2 + g^2} \sigma_0,$$

где N и e — концентрация и заряд носителей тока; σ_0 — статическая электропроводность; плазменная частота определяется соотношением $\omega_p^2 = 4\pi Ne^2/m^* \epsilon_\infty$. Далее мы будем опускать явное указание на частотную зависимость оптических функций в тех случаях, где она очевидна.

* В литературе на русском языке буква «т» в фамилии Лорентц (H. A. Lorentz) часто пропускается [12,14,15,31], что ведет к некоторой неопределенности ввиду пересечения научных интересов нобелевского лауреата из Голландии и его датского современника Лоренца (L. Lorenz), выразившегося в формуле Лоренц–Лорентца [31].

Соотношения (1) позволяют выразить через параметры МД ϵ_∞ , g и σ_0 (или ϵ_∞ , g и ω_p) частотные зависимости оптических постоянных n и k ($\epsilon_1 = n^2 - k^2$, $4\pi\sigma/\omega = \epsilon_2 = 2nk$) и всех остальных оптических функций. При $\omega < \omega_p$ оптическое пропускание проводников ничтожно мало, поэтому чаще всего экспериментально исследуется энергетический коэффициент отражения $R = |\hat{r}|^2 = r^2$ ($\hat{r} = r e^{-i\theta}$ — комплексный амплитудный коэффициент отражения, θ — изменение фазы световой волны при отражении) [11,13,14], а также характеристические потери энергии электронов при их прохождении через тонкие срезы вещества [32,33] и фотоэлектронные спектры [34]. Функция энергетических потерь электронов связана с динамической диэлектрической проницаемостью системы соотношением $L = \epsilon_2 / (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)$. Ее можно измерить также и чисто оптическими методами, возбуждая плазменные колебания электронов p -компонентой поляризации электромагнитной волны при наклонном падении последней на отражающую поверхность тонкой металлической пленки [35].

Получаемые из (1) выражения для n и k , тем более для R , r и θ , достаточно громоздки и допускают проведение аналитического исследования только после существенных упрощений, обычно связанных с приближением малых (или больших) по отношению к значениям g или ω_p частот. Использование в настоящей работе численных методов для нахождения критериев допустимых упрощений в области промежуточных частот, а также непосредственно для исследования L , R и θ при значениях отношения $\omega = g/\omega_p$ в интервале 0–10 позволило получить ряд приближенных соотношений между параметрами МД и характерными особенностями этих функций, в частности, для верхней границы области корневой частотной зависимости модуля и фазы отражения (области Хагена–Рубенса [36]), для обнаруживаемой при низких частотах области линейности фазы*, при уточнении понятия плазменного порога отражения, для определения характеристик минимума отражения, образующегося (при $\epsilon_\infty > 1$) за плазменным краем.

Основные спектральные интервалы

На рис. 1,а,б,в приведены спектры коэффициента отражения R и его фазы θ , рассчитанные соответственно при $\epsilon_\infty = 4/3$, 4 и 20, и при

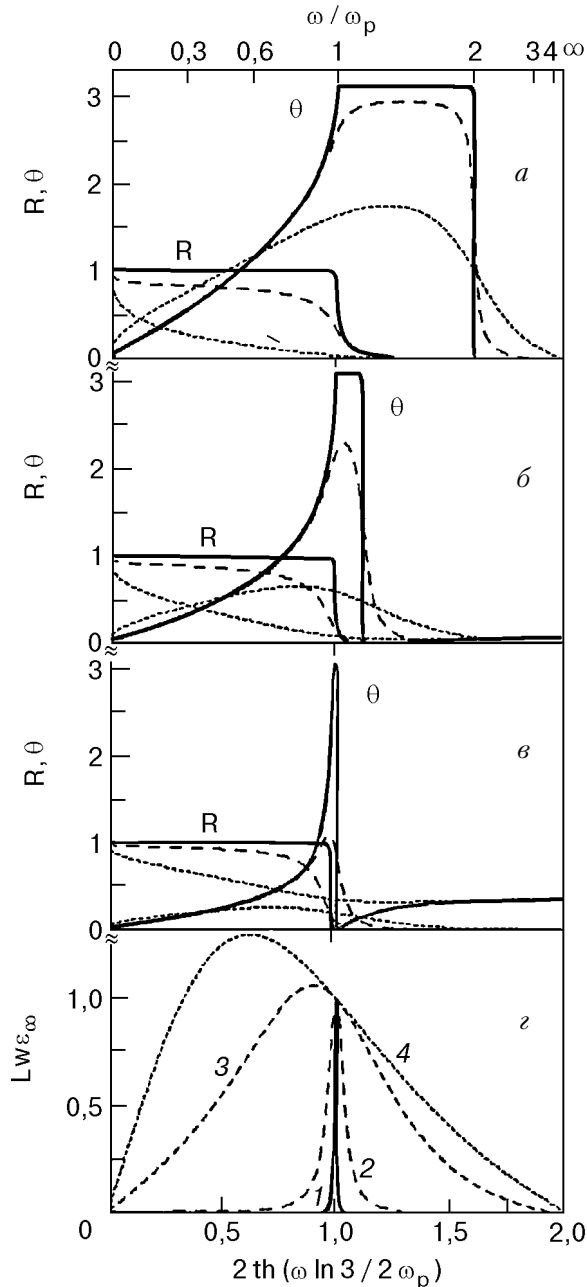


Рис. 1. Спектральные зависимости коэффициента отражения R и фазы θ при различных ω : 0,001 (сплошные кривые); 0,1 (пунктирные кривые); 1 (точки) и $\epsilon_\infty = 4/3$ (а); 4 (б); 20 (в) и величины $LW\epsilon_\infty$ при различных ω : 0,01 (1); 0,1 (2); 1 (3); 2 (4) (з).

$\omega = g/\omega_p = 0,001$ (сплошные кривые), $\omega = 0,1$ (пунктирные), $\omega = 1$ (точки); кривые на рис. 1,а (при $\omega \leq 0,1$) характерны для типичных металлов, б — для ВТСП материалов, в — полупроводников. Выбранный масштаб абсциссы позволяет представить все частоты от 0 до ∞ , существенно

* Авторам не известны случаи рассмотрения линейной дисперсии фазы в МД другими исследователями.

сжав при этом малоинформативную для МД область ($\sim 3\omega_p, \infty$).

Обычно в модели Друде выделяют три–четыре характерных участка спектра, опуская вопрос о границах между ними: $\omega \ll g$, $g \ll \omega \ll \omega_p$, $\omega \sim \omega_p$ и $\omega > \omega_p$ [11–14,36]. В настоящей работе в общем случае ($\epsilon_\infty > 1$) мы рассматриваем пять характерных спектральных областей, границы которых будут определены ниже: 1) область Хагена–Рубенса, 2) область линейности фазы, 3) окрестность плазменного края отражения, 4) окрестность минимума отражения, 5) частоты, существенно превышающие частоту минимума отражения.

Частотные зависимости $1 - r$ и θ в области Хагена–Рубенса совпадают. В целом же отражение монотонно уменьшается от $R(0) = 1$ до минимального значения $R_{\min} = R(\omega_{\min})$ при $\epsilon_\infty > 1$, увеличиваясь затем до $R(\infty)$, а θ монотонно возрастает с $\theta(0) = 0$ до максимума θ_{\max} (при малых g это, скорее всего, плато), после чего падает до $\theta(\infty) = 0$. При невысокой частоте релаксации (до $\omega \sim 0,01-0,1$) определяемая на уровне $R = 2R_{\min}$ ширина минимума отражения $\Delta\omega_{\min}$ примерно равна g , а ширина плато фазы $\Delta\omega_\theta$, которую находим как разность частот максимальной крутизны ее подъема и спада, неограниченно возрастает при $\epsilon_\infty \rightarrow 1$ и уменьшается до нуля при $\epsilon_\infty \rightarrow \infty$, принимая значение $\Delta\omega_\theta = \omega_p$ при $\epsilon_\infty = 4/3$.

При $g \ll \omega_p$ в МД для различных характеристик оптических функций вблизи и выше плазменной частоты получаем следующие асимптотические выражения:

$$\Delta\omega_\theta = \omega_p \left[\sqrt{\epsilon_\infty / (\epsilon_\infty - 1)} - 1 \right], \quad \theta_{\max} = \pi; \quad (2a)$$

$$\omega_L = \omega_b = \omega_\epsilon = \omega_p, \quad L_{\max} = \omega_p / g\epsilon_\infty, \quad (2б)$$

$$\Delta\omega_L = \Delta\omega_{\min} \approx g,$$

$$R_{\min} \approx \frac{g^2(\epsilon_\infty - 1)^3}{16\omega_p^2\epsilon_\infty}, \quad \omega_{\min} \approx \omega_p \sqrt{\epsilon_\infty / (\epsilon_\infty - 1)}, \quad (2в)$$

$$R(\infty) = \frac{(\epsilon_\infty^{1/2} - 1)^2}{(\epsilon_\infty^{1/2} + 1)^2}. \quad (2г)$$

Здесь ω_b — частота максимальной крутизны спада величины отражения (т.е. точка перегиба $R(\omega)$: $d^2R/d\omega^2 = 0$, $d^3R/d\omega^3 > 0$ для $\omega = \omega_b$), которую естественно называть плазменным краем, или порогом отражения: ω_ϵ — частота

обращения в нуль диэлектрической проницаемости, ω_L , L_{\max} и $\Delta\omega_L$ — соответственно положение максимума функции потерь, его величина и ширина пика L на полувывсоте.

Рассеяние носителей тока

Область корневой частотной зависимости отражения (область Хагена–Рубенса) определяется рассеянием носителей тока при нарушении трансляционной симметрии системы. Этот участок спектра начинается при $\omega = 0$ и простирается (в пределах определенной погрешности) до некоторой граничной частоты ω_{H-R} . Такая зависимость при $\omega \rightarrow 0$ присуща также обратным величинам оптических постоянных $n^{-1} \approx k^{-1} \approx (\omega/2\pi\sigma)^{1/2}$, поглощательной способности $A \approx 1 - R \approx (2\omega/\pi\sigma)^{1/2}$ [11], амплитудному коэффициенту отражения $r \approx 1 - (\omega/2\pi\sigma)^{1/2}$, фазе $\theta \approx (\omega/2\pi\sigma)^{1/2}$; для двух последних выполняются соотношения типа

$$r(\omega) + \theta(\omega) \approx 1, \quad \omega < \omega_{H-R}. \quad (3)$$

Заметим, что в приведенных здесь выражениях в качестве проводимости можно брать ее статический предел σ_0 , поскольку при $\omega \rightarrow 0$ получаем $\sigma \approx \sigma_0(1 - \omega^2/g^2)$, а в области Хагена–Рубенса $\omega^2/g^2 \ll 1$. Подробный анализ ограничим комплексным отражением, учитывая, что R является непосредственно измеряемой оптической функцией (в широкой спектральной области зачастую единственной), а его фаза θ представляет интерес, в частности, в связи с проблемой высокочастотной экстраполяции R при определении оптических функций проводников методом Крамерса–Кронига (МКК).

Рассмотрение спектральных зависимостей $\hat{r}(\omega)$ различных металлов, рассчитанных по известным экспериментальным значениям их оптических постоянных [37], показало, что при низкочастотной границе использованных данных $\omega \approx 0,05-0,10$ эВ область Хагена–Рубенса еще не достигается, а в спектральном ходе θ обнаруживается достаточно протяженный ($0,1$ эВ $< \omega < 1$ эВ) линейный участок с одним — двумя изломами, который обсудим ниже.

Верхняя граница области Хагена–Рубенса

Верхнюю границу области Хагена–Рубенса ω_{H-R} естественно определить как частоту, при которой относительное отклонение δ кривой $1 - r(\omega)$ от корневой зависимости $(\omega/2\pi\sigma_0)^{1/2}$ достигает некоторого заданного значения (в этой работе полагаем $\delta = 0,01$). Очевидно, что такая

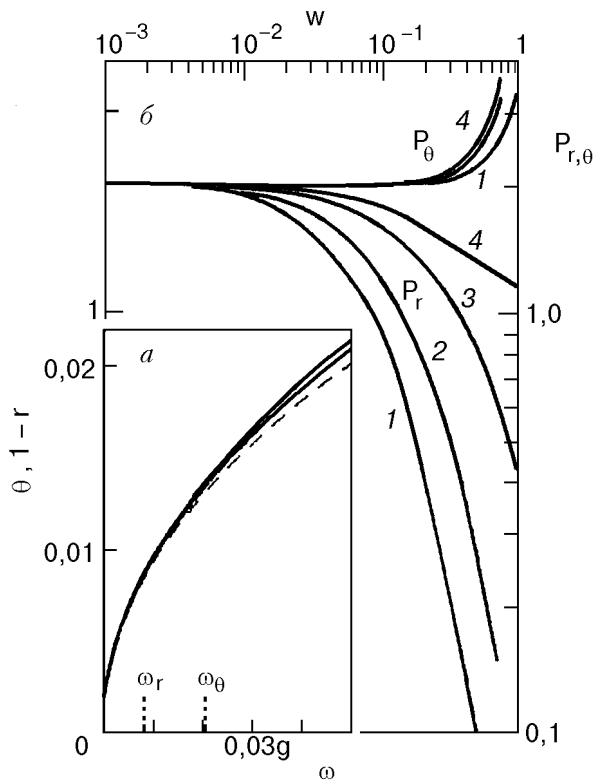


Рис. 2. Спектры величин $(\omega/2\pi\sigma)^{1/2}$ (средняя кривая), $1-r$ (пунктир) и θ (верхняя кривая) в области Хагена–Рубенса при $\omega = 0,17$ и $\epsilon_\infty = 2$ (ω_r и ω_θ — ее границы для r и θ на уровне $\delta = 1\%$) (а); зависимость коэффициентов P_r и P_θ , определяющих значения ω_r и ω_θ в (4а), (4б) от ω и ϵ_∞ (нумерация кривых P_r и P_θ от 1 до 4 соответствует значениям $\epsilon_\infty = 4/3, 4, 20$ и 56) (б).

граница будет зависеть от g и что для других упомянутых выше функций с аналогичным спектральным поведением при $\omega \rightarrow 0$ граничные частоты будут иными. Рассмотрим такие частоты параллельно для r и θ , обозначив их для произвольных значений g как ω_r и ω_θ соответственно (см. рис. 2,а). Проведенный анализ показал, что граничная частота для фазы ω_θ прямо пропорциональна величинам g и δ до значений величины отклонения $\sim 10\%$ и более с коэффициентом пропорциональности $p_\theta(\omega, \epsilon_\infty)$:

$$\omega_\theta = p_\theta(\omega, \epsilon_\infty)g\delta, \quad (4а)$$

тогда как зависимость ω_r от δ остается существенно нелинейной даже при очень малых ($\delta \sim 10^{-4}$) отклонениях, т.е.

$$\omega_r = p_r(\delta, \epsilon_\infty, \omega)g\delta. \quad (4б)$$

Кроме того, по сравнению с p_θ величина p_r намного чувствительнее к изменению ϵ_∞ и $\omega = g/\omega_p$. Это хорошо видно на кривых p_r и p_θ , полученных для $\epsilon_\infty = 4/3, 4, 20$ и 56 (рис. 2,б, кривые

1–4 соответственно); все зависимости рассчитаны для значений отклонений r и θ от корневого поведения на уровне 1% . Вообще верхняя граница области Хагена–Рубенса для r всегда ниже, чем для θ (при $\omega \sim 1$ — на порядок и более), однако при значениях $\omega \leq 0,01$ и $\delta = 0,01$ коэффициенты p_θ и p_r практически совпадают и равны ~ 2 , т.е. в этом случае независимо от величины ϵ_∞ имеем

$$\omega_r = \omega_\theta = \omega_{H-R} = 0,02g (\omega \leq 0,1, \delta = 0,01). \quad (4в)$$

Примем соотношение (4в) в качестве общего определения верхней границы области Хагена–Рубенса для комплексного коэффициента отражения. Оно справедливо, в первую очередь, для различных металлов, в которых при $0,001 \text{ эВ} < g < 0,3 \text{ эВ}$ плазменная частота ω_p изменяется от ~ 3 (Cs) до $\sim 15 \text{ эВ}$ (Al) и, соответственно, ω не превышает $0,1$. Однако оно может выполняться также и в полупроводниках, и в оксидных сверхпроводящих материалах. Использование (4в) приводит в этих случаях к оценкам абсолютного значения ω_r и ω_θ (на принятом уровне отклонения $\delta = 0,01$), равного по порядку 10^{-3} эВ ; это уже область миллиметровых волн, которая относится больше к радиофизике, чем к оптике. В то же время у «плохих» металлов и других проводящих материалов с $\omega > 1$ область Хагена–Рубенса простирается до ближнего ИК и даже видимого диапазона, но при этом соотношение $\omega_r = \omega_\theta$ уже не выполняется.

Область линейности фазы

Частотная зависимость фазы отражения металлов в виде прямых (иногда ломаных) линий обнаруживается в оптическом диапазоне на экспериментальных кривых (рис. 3) и вполне объяснима в рамках модели Друде: зависимость, близкая к линейной, существует и при переходе от выпуклой формы кривой θ при $\omega \rightarrow 0$ к вогнутой вблизи ω_p (см. рис. 1). Интерес представляет протяженность этого участка и наличие изломов. Определим минимальную ω_{L1} и максимальную ω_{L2} границы этой области (ОЛФ) подобно тому, как это было сделано для области Хагена–Рубенса, как частоты, при которых отклонения значений фазы от ее прямолинейной аппроксимации достигают 1% . Для всех рассмотренных металлов ОЛФ содержится внутри области выполнения неравенства

$$k^2(\omega)/n^2(\omega) \gg 1, \quad (5)$$

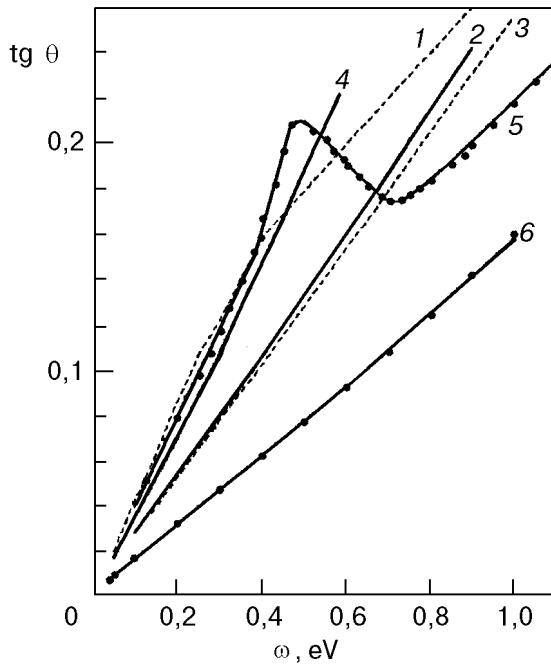


Рис. 3. Области почти линейной дисперсии фазы отражения металлов: Ni (1); Ag (2); Au (3); W (4); Pt (5); Al (6) (фазы θ рассчитаны по данным оптических постоянных [37]).

использование которого совместно с формулами Друде—Зинера (1) дает правильное выражение для наклона линейного участка фазы. Более детальный анализ при условии $g^2 \ll \omega^2 \ll \omega_p^2$ позволяет получить также начальную ординату θ_0 искомой прямой:

$$\theta = 2\omega/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} + \theta_0. \quad (6)$$

Определяемая параметрами Друде константа θ_0 положительна и по малости величины (порядка 10^{-3} рад) выходит за пределы точности экспериментального определения фазы; в то же время она весьма чувствительна к низкочастотным полосам поглощения, так что полученные экспериментально значения $\theta_0 > \sim 10^{-2}$ (как и $\theta_0 < 0$) могут свидетельствовать о наличии последних.

Реальная область практически линейной дисперсии фазы (даже для $\delta \sim 1\%$) оказывается довольно широкой. Анализ показывает, что при значениях ω до $\sim 0,01$ (т.е. для большинства металлов) ω_{L1} прямо пропорциональна частоте столкновений g , а ω_{L2} — плазменной частоте (см. рис. 4):

$$\begin{aligned} \omega_{L1} &\approx l_1 g, \quad l_1 = \text{const} = 3,40, \quad \omega_{L2} \approx l_2 \omega_p, \\ l_2 &= l_2(\epsilon_\infty) = (\epsilon_\infty + 0,68)/12,5\epsilon_\infty. \end{aligned} \quad (7)$$

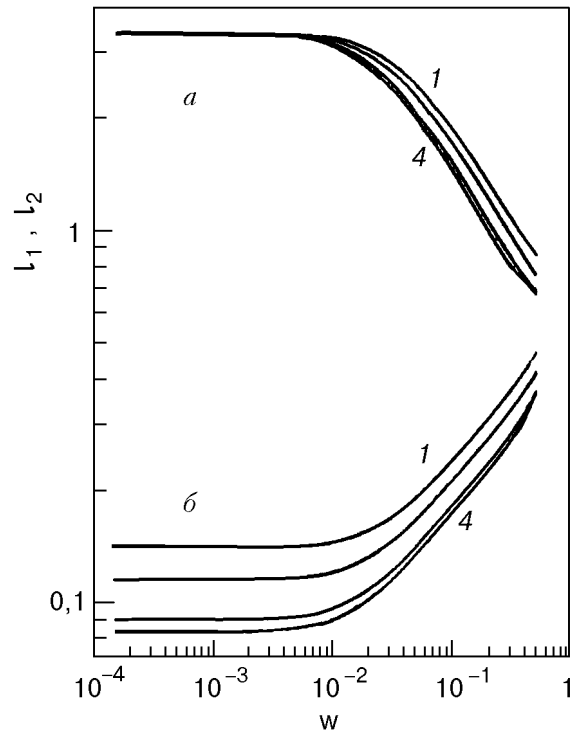


Рис. 4. Зависимость от ω коэффициентов l_1 (а) и l_2 (б), определяющих границы ОЛФ (7); нумерация кривых от 1 до 4 соответствует значениям $\epsilon_\infty = 1, 4/3, 4$ и 20.

При увеличении ω от $\sim 0,01$ до $\sim 0,1$ величина ОЛФ уменьшается почти в три раза, коэффициент же наклона изменяется незначительно.

Выражение (6) может оказаться полезным, в частности, при анализе методом Крамерса—Кронига спектров отражения металлов, позволяя получать опорные значения фазы для расчета коэффициентов высокочастотной экстраполяции R ; при этом используются известные значения проводимости и электронной плотности.

В спектральной области $0,05 \text{ эВ} < \omega < 0,5 \text{ эВ}$ верев кривых $\theta(\omega)$ на рис. 3 можно условно разделить по количеству валентных электронов и значениям плазменных частот на три не пересекающихся между собой узких пучка. Разброс значений фазы в каждом из пучков относительно его оси не превышает $\sim 0,01$ рад (т.е. порядка погрешности определения фазы в МКК), что дает возможность непосредственно использовать их при отсутствии для исследуемого объекта данных по проводимости. В еще более узком диапазоне частот ($\sim 0,05 \text{ эВ} < \omega < \sim 0,1 \text{ эВ}$) с точностью до 0,01 рад для любого металла с $g \leq 0,01$ выполняется приближенное соотношение

$$\theta [\text{рад}] \sim 0,3\omega [\text{эВ}], \quad \sim 0,05 \text{ эВ} < \omega < \sim 0,1 \text{ эВ}. \quad (8)$$

Отметим также, что отражение в ОЛФ уменьшается с частотой по параболическому закону, а крутизна спада растет с увеличением g ; при достаточно малых g отражение можно считать постоянным: $r \approx 1 - \omega/\sqrt{\epsilon_\infty}$, $R \approx 1 - 2\omega/\sqrt{\epsilon_\infty}$. В точке ω_w , определяемой условием $R''(\omega_w) = 0$, различие между $(1 - R)\sqrt{\epsilon_\infty}/2$ и ω не превышает 0,01% при $\omega \leq 0,01$ и составляет $\sim 1\%$ при $\omega = 0,1$.

Роль осцилляторного вклада: дисперсия фазы отражения Al

В реальных кристаллах ОЛФ сужается также при наложении на непрерывное поглощение свободных носителей локальных полос межзонных переходов, под влиянием которых спектральная зависимость фазы может претерпевать искажения, наблюдаемые на рис. 3. В этом плане характерно поведение фазы алюминия, наиболее подробно исследованного в оптическом диапазоне металла, у которого при высокой плазменной частоте ($\omega_p \sim 15$ эВ) условие (5) выполняется до $\sim 0,97\omega_p$ [37], тогда как линейный ход фазы прерывается при ~ 1 эВ $\leq \omega \leq \sim 2$ эВ, т.е. в области интенсивной полосы межзонного поглощения с максимумом вблизи 1,5 эВ [38, 39] (рис. 5); существенно более слабую полосу вблизи 0,5 эВ, проявляющуюся в виде легкого излома $\theta(\omega)$ в этой

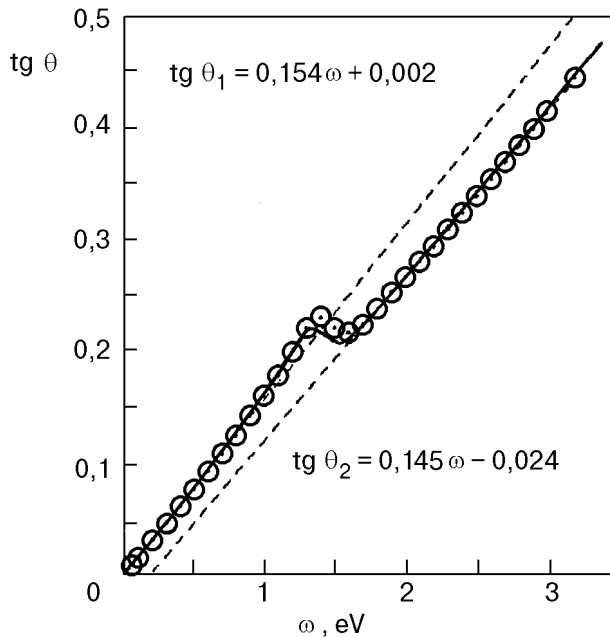


Рис. 5. Влияние межзонных переходов на спектральное поведение фазы отражения алюминия: экспериментальные значения фазы (\circ); линейная аппроксимация последней ($- - -$); модельная, включающая лорентцевский осциллятор и поправку на эффективную массу после межзонного перехода ($—$).

точке, можно наблюдать при соответствующем масштабе рисунка.

Рассчитанная по наклону к линейного участка зависимости $\theta(\omega)$ величина N/m^* (отношение концентрации валентных электронов N к электронной эффективной массе m^* , выраженной в единицах массы свободного электрона) для алюминия составляет $12,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, что согласуется с $N = 18,1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, определенной другими методами, с учетом известных данных по m^* (в [40] приводятся значения от 1,15 до 1,5). Значение $2/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} = \kappa$ дает $\kappa_1 \approx 0,154$ на участке до излома экспериментальной кривой $\theta(\omega)$, и $\kappa_2 \approx 0,145$ после него (рис. 5). Различие в величинах κ до и после полосы межзонного поглощения можно связать с различием эффективных масс в зонах проводимости алюминия $3s$ и $3p$, при переходе между которыми следует делать поправку в коэффициенте наклона прямой, описывающей дисперсию фазы. Полученные значения κ_1 и κ_2 дают соотношение масс для первой и второй прямой $m_1^*/m_2^* \approx 1,13$, так что в единицах массы свободного электрона $m_1^* \approx 1,45$ и $m_2^* \approx 1,28$, если принять $N = 18,1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$.

Анализ других кривых на рис. 3 подтверждает полученный для Al вывод: наблюдаемые в ОЛФ металлов локальные нарушения линейного хода $\theta(\omega)$ связаны с квантовыми переходами электронов между подзонами в пределах зоны проводимости. При этом слабые переходы приводят только к изломам $\theta(\omega)$ без нарушения монотонного возрастания фазы с частотой, а при более сильном поглощении может возникать область ее аномального уменьшения (протяженность которой примерно равна полуширине полосы поглощения), особенно большая в Pt. Моделирование полосы оптического поглощения алюминия лорентцевским осциллятором силой $A = 4\pi n e^2/m^* \approx 22 \text{ эВ}^2$ с частотой $\omega_0 = 1,53$ эВ и затуханием $g \approx 0,37$ эВ хорошо согласуется с экспериментом (рис. 5) с учетом поправки на нелорентцевскую форму межзонных переходов (последнее приводит к необходимости использовать после перехода другую эффективную массу).

Плазменный край отражения

Рассмотрим оставшиеся три спектральные области из пяти, перечисленных выше. В области 5 отражение описывается формулой (2г), содержащей только один параметр МД, ϵ_∞ , и это вся информация, которую в данном случае можно извлечь. Фаза отражения на пересечении областей 3 и 4 характеризуется формулами (2а), содержащими ω_p и ϵ_∞ , что также может быть исполь-

зовано для нахождения параметров МД. Обычно же в области 3 — в окрестности частоты плазменных колебаний носителей тока — исследуется форма кривых отражения [13,14]) и характеристических потерь энергии [32,41], которые хорошо описываются в рамках модели Друде, особенно при малых (полупроводники с $\omega_p \sim g$ и $\epsilon_\infty \sim 5-30$) или, напротив, больших концентрациях носителей (металлы, $\epsilon_\infty \sim 1$). Выше для них были получены выражения (2б) и (2в), описывающие рассматриваемые здесь величины в пределе идеального металла (т.е. для $w = g/\omega_p \rightarrow 0$) — максимум функции потерь L (2б) и минимум отражения R (2в), а также положение плазменного порога ω_b и частоты обращения в нуль диэлектрической проницаемости ω_ϵ (2б).

Частотные производные отражения

Для частот ω_b и ω_ϵ выражения (2б) выполняются с погрешностью меньше 1% вплоть до значений $w \sim 0,15$, а при дальнейшем увеличении g обе частоты быстро уменьшаются; впрочем, этим сходство их зависимости от w и ограничивается. Отношение $\omega_\epsilon(w)/\omega_p$ при $w \rightarrow 0$ стремится к единице и, независимо от значений ω_p и ϵ_∞ , монотонно уменьшается до 0 при $w \rightarrow 1$, описывая правильную окружность:

$$\omega_\epsilon(w)/\omega_p = (1 - w^2)^{1/2}, \quad 0 \leq w \leq 1. \quad (9)$$

Положение частоты ω_b (на рис. 6 представлено ее отношение к ω_p для значений $\epsilon_\infty = 1, 4$ и 25) зависит от w более сложным образом и, кроме того, неодинаково при различных ϵ_∞ , совпадая с плазменной частотой только при $g = 0$. С увеличением g значение ω_b/ω_p (см. рис. 6, вставка) вначале растет, проходит через небольшой максимум (высота и положение которого обратно пропорциональны величине ϵ_∞), затем монотонно уменьшается и при $w = w_{\text{lim}}$ теряет смысл (вследствие трансформации формы кривой отражения точка перегиба исчезает). В общем связь между ω_b/ω_p и w слабо зависит от ϵ_∞ и с точностью до $\sim 5\%$ аппроксимируется квадратичной зависимостью:

$$\omega_b/\omega_p \approx 1 - w^2/2, \quad 0 < w < \sim 0,7. \quad (10a)$$

В свою очередь, представленная на рис. 7 зависимость w_{lim} от ϵ_∞ нетривиальна: в области «хороших» металлов ($\epsilon_\infty \sim 1$) w_{lim} падает от $\approx 0,734$ при $\epsilon_\infty = 1$ до минимального значения $\approx 0,724$ вблизи $\epsilon_\infty = 1,25$, затем монотонно возрастает при дальнейшем увеличении ϵ_∞ . Начиная с $\epsilon_\infty \sim 2-3$

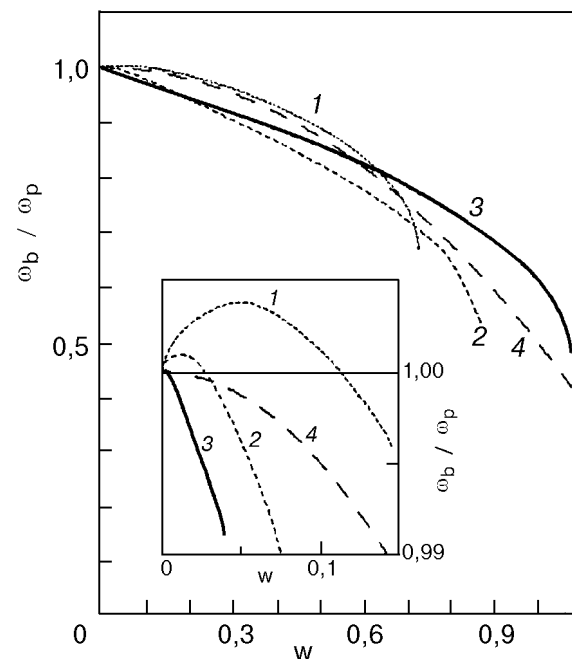


Рис. 6. Зависимость от w частотного положения плазменного порога отражения ω_b . Нумерация кривых от 1 до 3 соответствует значениям $\epsilon_\infty = 1, 4$ и 25, кривая 4 — аппроксимация $\omega_b/\omega_p = 1 - (w^2/2)$.

и выше $w_{\text{lim}}(\epsilon_\infty)$ удовлетворительно следует логарифмическому закону (см. рис. 7):

$$w_{\text{lim}}(\epsilon_\infty) \approx 0,108 \ln \epsilon_\infty + 0,734. \quad (10б)$$

Заметим, что при $w = w_{\text{lim}}$ возникает спектральный участок линейной зависимости $R(\omega)$, протяженность которого может достигать $2\omega_p/3$ и

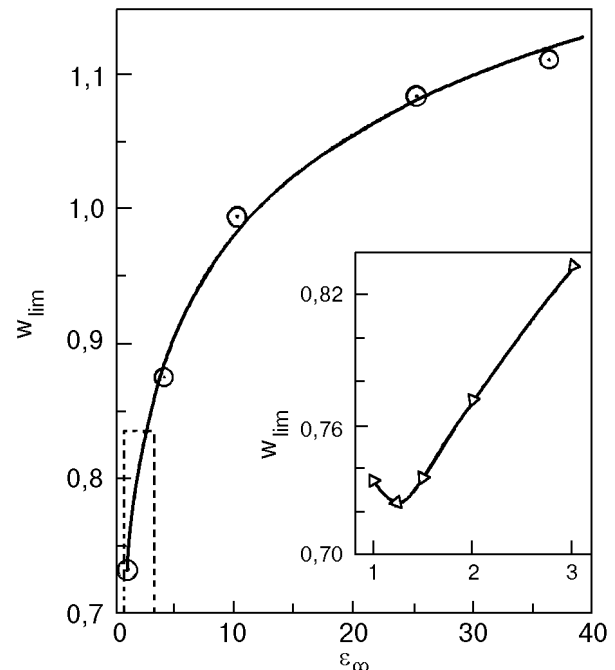


Рис. 7. Зависимость от ϵ_∞ предельного значения w_{lim} существования плазменного порога отражения.

более (на уровне $\pm 1\%$), а экстраполяция R к нулевому значению (в точке $\omega = \omega^*$) позволяет определить плазменную частоту (при $\epsilon_\infty < \sim 4$ с точностью $\sim 1\%$) как

$$\omega_p \approx 0,9\omega^* . \quad (10в)$$

Более удобной в практическом использовании оказалась обнаруженная при анализе спектрального хода второй производной $d^2R/d\omega^2$ близость частоты ω_{d2R} ее максимума к плазменной частоте:

$$\omega_p \approx \omega_{d2R} ; \delta_{\max} \sim 5\% , \quad 0 < \omega < \sim 0,7 . \quad (10г)$$

Таким образом, используя выражения (10а), (10в) и (10г), можно по измерениям отражения вблизи его плазменного края определить параметры ω_p и g с приемлемой максимальной погрешностью $\sim 5\%$.

Функция энергетических потерь

Для функции энергетических потерь $L(\omega)$ отличие частоты максимума ω_L от ω_p не превышает одного процента ниже $\omega \sim 0,3$ (и не превышает 13% при $\omega \sim 1$). Еще меньше зависят от ω полуширина и особенно максимальная величина L : для них (26) выполняется с точностью до процента ниже $\omega \sim 0,4$ и даже при $\omega = 1$ отклонение составляет менее 11% для $\Delta\omega_L$ и 7% для L_{\max} . Таким образом, выражения (26), с высокой точностью описывающие параметры функции потерь для «хороших» металлов (у которых $\omega \sim 0,01$ [11]), при обработке спектров некоторых сплавов и других «плохих» металлов, а также полупроводников могут использоваться только для предварительных оценок. Существенно (на порядки) повышает в таких случаях точность учет зависимости ω_L , $\Delta\omega_L$ и L_{\max} от ω даже в простом параболическом приближении вида

$$F(\omega) = F(0)(1 + \omega^2/a) , \quad (11)$$

где a для ω_L , $\Delta\omega_L$ и L_{\max} принимает значения -8 , -24 и 15 соответственно; с точностью $\sim 0,1\%$ они выполняются (рис. 8) для ω_L и L_{\max} в диапазоне ω от 0 до 1 и выше, а для $\Delta\omega_L$ — только до $\omega \sim 0,3$. Последнее связано с тем, что при увеличении ω плазменный пик смещается к нулю частоты, который и ограничивает уширение его низкочастотного крыла, вследствие чего пик становится асимметричным (ширина $\Delta\omega_L$ рассматривается как сумма низкочастотной Δ^- и высокочастотной $\Delta^+ > \Delta^-$ его частей на полувысоте). При этом оказывается, что для $2\Delta^+(\omega)$ выражение вида (11) с $a \approx -24$ выполняется с точностью 0,1% уже

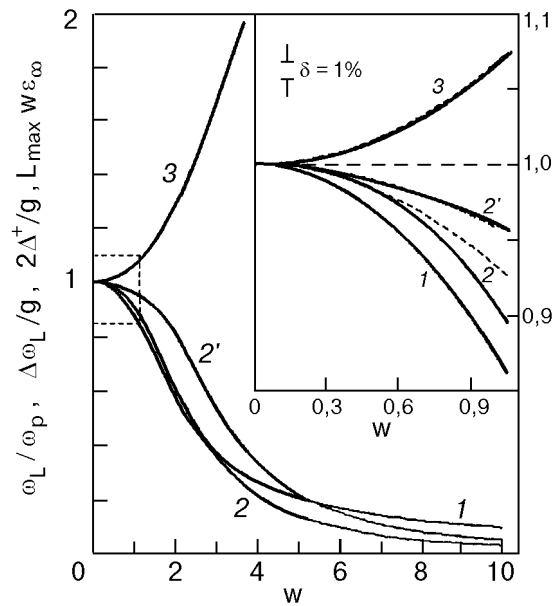


Рис. 8. Зависимость от ω параметров функции потерь ω_L , $\Delta\omega_L$, $2\Delta^+$ и L_{\max} (кривые 1, 2, 2', 3 соответственно) для интервала $0,1 \leq \omega \leq 10$; приведены отношения этих величин к их значениям из (26). Сплошные кривые рассчитаны по формулам Друде, а пунктирные — аппроксимация согласно (11а).

до значения $\omega \sim 1$, т.е. не хуже, чем для ω_L и L_{\max} . В результате получаем систему уравнений, связывающих параметры Друде и форму экспериментальной кривой $L(\omega)$ с достаточно высокой (при $\omega \leq 1$ порядка 0,1%) точностью:

$$\omega_L(\omega) \cong \omega_p(1 - \omega^2/8) ,$$

$$L_{\max}(\omega) \cong (1 + \omega^2/15)/\omega\epsilon_\infty , \quad (11а)$$

$$2\Delta^+(\omega) \cong g(1 - \omega^2/24) , \quad 0 < \omega < 1 .$$

Первое и последнее из уравнений (11а) содержат из неизвестных только ω_p и g , что позволяет исключить g , а оставшиеся уравнения решить численно.

При $\omega > 1$ точность простых выражений (11а) уменьшается, хотя и остается лучше 1% вплоть до $\omega \sim 1,5$. На рис. 1 видно, что в отличие от кривых R и θ , форма которых расплывается при $\omega \sim 1$ (особенно в случае $\epsilon_\infty > 2$), пик $L(\omega)$ остается хорошо выраженным. Это позволяет извлекать из него информацию и выше $\omega = 1$, хотя он и претерпевает там уширение, красное смещение, становится все более асимметричным. Методика получения параметров электронной системы проводников с использованием данных измерений ω_L , L_{\max} и Δ^+ при $\omega > 1$ содержится в Приложении I (см. также рис. 9).

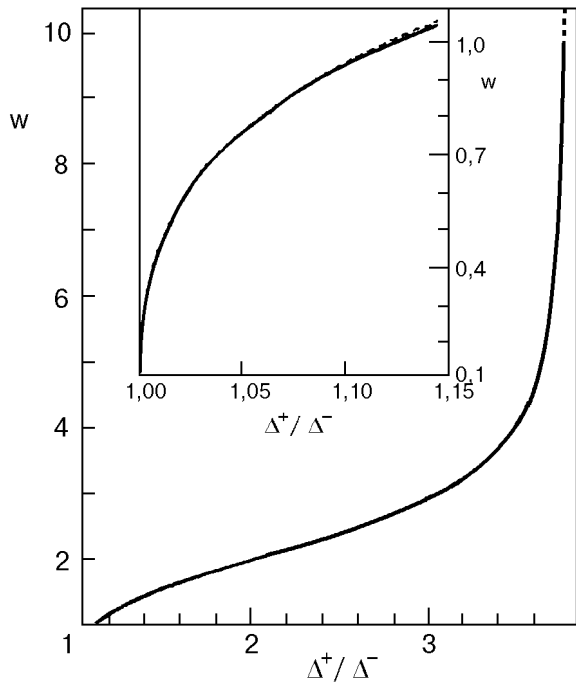


Рис. 9. Взаимосвязь параметра асимметрии Δ^+/Δ^- пика функции характеристических потерь $L(\omega)$ и величины $w = g/\omega_p$ (сплошные линии) и ее аппроксимация выражениями (П.2) (пунктир, практически совпадающий со сплошными линиями в избранном на рисунке масштабе).

Минимум отражения

Для определения параметров МД представляет интерес использовать в первую очередь характеристики минимума отражения выше плазменного края ω_{\min} , R_{\min} и $\Delta\omega_{\min}$ вследствие относительной доступности их измерения. Однако они, как оказалось, остаются равными (в пределах $\sim 1\%$) значениям из выражений (2в), (2б) только до $w \sim 0,01$, а с дальнейшим увеличением g существенно зависят как от w , так и от ϵ_∞ ; последнее заметно усложняет задачу и снижает (по сравнению с анализом пика потерь) точность расчетов. На рис. 10, где показано поведение отношений $\omega_{\min}/\omega_{\min}(0)$ и $\Delta\omega_{\min}/g$, а также минимального отражения R_{\min} с увеличением w для значений ϵ_∞ от 1,05 до 36, видно, что все они возрастают как с w , так и с ϵ_∞ : R_{\min} стремится к R_∞ , а ω_{\min} и $\Delta\omega_{\min}$ увеличиваются неограниченно ($\Delta\omega_{\min}(w)$ имеет вертикальные асимптоты $w = W(\epsilon_\infty)$). В отличие от функции потерь форма кривой $R(w)$ уже при $w \sim 1$ оказывается слишком размытой для экспериментальной обработки (см. также рис. 1), что дает основание при анализе последней ограничиться значением $w = 1$. В этом случае для металлов, ВТСП и других проводников с ϵ_∞ до ~ 4 зависимость от ϵ_∞ можно практически полностью исключить построением $\Delta\omega_{\min}/g$ и $R_{\min}(w)/R_\infty$ как функций от

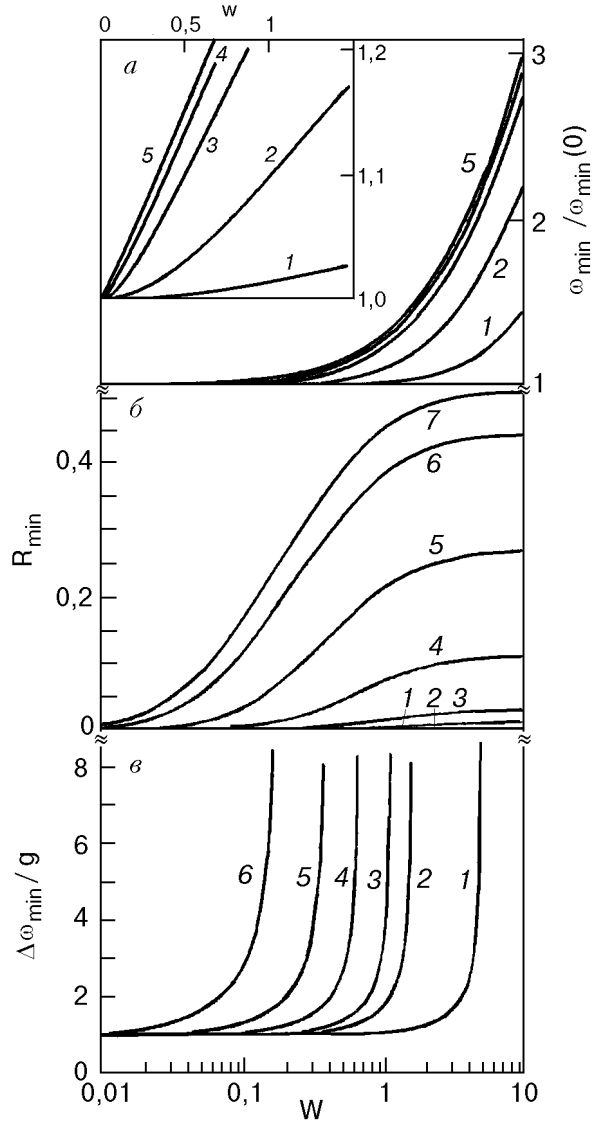


Рис. 10. Зависимость от w характеристик минимума R выше плазменного края: спектрального положения ω_{\min} для $\epsilon_\infty = 1,05, 1,5, 4, 10, 36$ (кривые 1–5 соответственно) (а); минимального значения R_{\min} при различных ϵ_∞ : 1,05 (1); 1,5 (2); 2 (3); 4 (4); 10 (5); 25 (6); 36 (7) (б); ширины минимума $\Delta\omega_{\min}$ на уровне $2R_{\min}$ при различных ϵ_∞ : 1,05 (1); 1,5 (2); 2 (3); 4 (4); 10 (5); 36 (6) (в).

$w(\epsilon_\infty - 1)^{1/2}$, а $\omega_{\min}(w)/\omega_{\min}(0)$ (с большей погрешностью) — от $w[(\epsilon_\infty - 1)/(\epsilon_\infty + 1)]^{1/2}$ (рис. 11, а, б и рис. 12 соответственно).

Форма минимума отражения даже при малых значениях g отличается сильной асимметрией (см. рис. 1), из анализа которой можно получить дополнительную информацию о параметрах Друде и использовать ее при вычислении последних. Так, выяснилось, что в широком интервале значений ϵ_∞ (от 1 до ~ 4) произведение $w(\epsilon_\infty - 1)^{1/2}$ однозначно определяется отношением высокочастотной составляющей ширины минимума отражения $\Delta\omega_{\min}^+$ к низкочастотной $\Delta\omega_{\min}^-$ (рис. 11, в). К

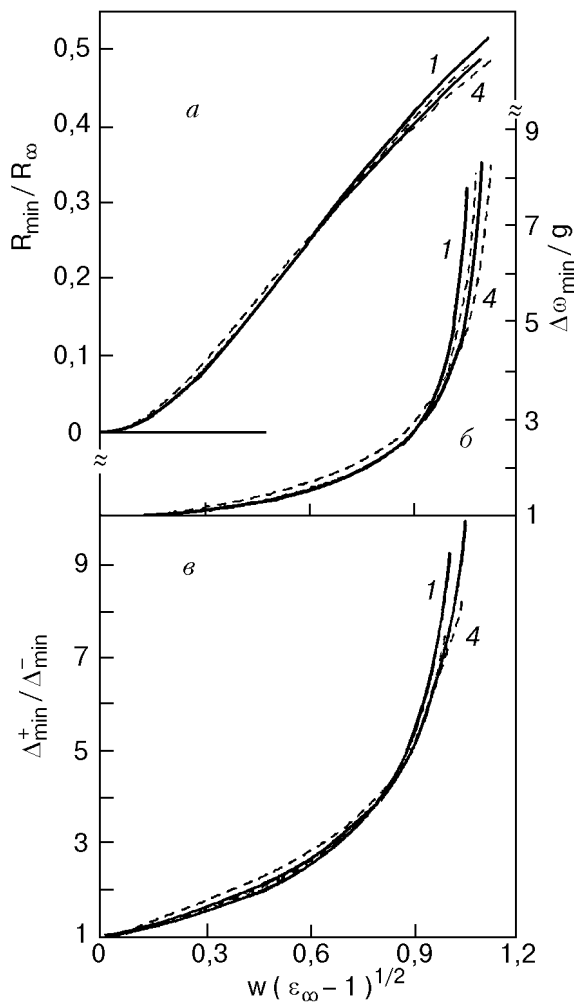


Рис. 11. Зависимости от $w(\epsilon_{\infty} - 1)^{1/2}$ характеристик минимума отражения, для которых такая абсцисса содержит все дополнительное к выражениям (2) влияние ϵ_{∞} : R_{\min}/R_{∞} (а); $\Delta\omega_{\min}/g$ (б); параметр асимметрии $\Delta_{\min}^+/\Delta_{\min}^-$ (в). Кривые 1-4 соответствуют значениям $\epsilon_{\infty} = 1,05; 1,5; 2$ и 4.

тому же обнаруженную зависимость удалось выразить аналитически (со средней погрешностью < 4%):

$$w(\epsilon_{\infty} - 1)^{1/2} \approx 1,17[(x - 1)/(x + 0,1)]^{4/3}, \quad (12)$$

$$x = \Delta_{\min}^+ / \Delta_{\min}^- \quad (1,1 < x < 30).$$

Методика определения параметров МД по измерениям отражения с использованием соотношений (12), (10а) и (ПП.1–ПП.3) изложена в Приложении II.

Отдельного рассмотрения заслуживает поведение с увеличением g величины низкочастотной составляющей ширины минимума отражения, приведенное на рис. 13 в виде зависимости от w $y = 2\Delta_{\min}^-/g$ для значений $\epsilon_{\infty} = 1,05; 1,5; 2; 4; 10$ и 36 (соответственно кривые 1–6). Все кривые

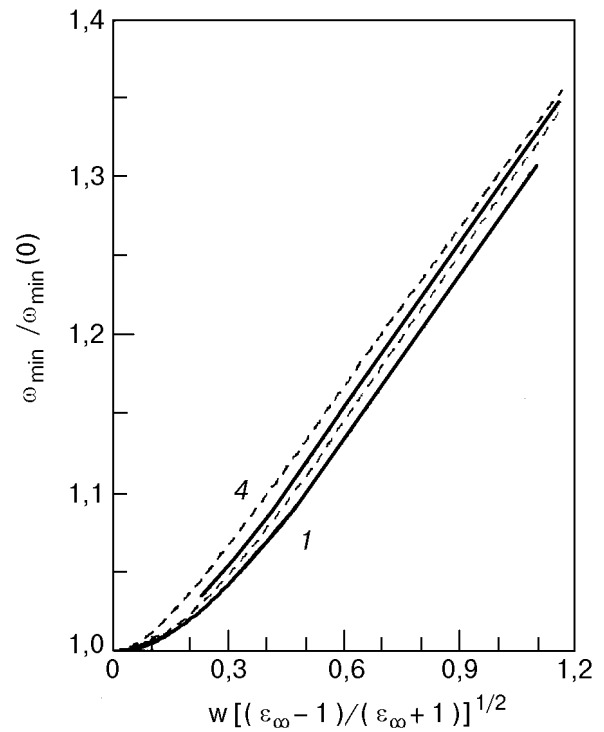


Рис. 12. Зависимость от $w[(\epsilon_{\infty} - 1)/(\epsilon_{\infty} + 1)]^{1/2}$ спектрального положения минимума отражения относительно $\omega_{\min}(0)$. Кривые 1-4 соответствуют значениям $\epsilon_{\infty} = 1,05; 1,5; 2$ и 4.

совершают своеобразные осцилляции относительно $y = 1$: выходя из общей точки $y(0) = 1$, они опускаются до одинакового по глубине ($\approx 0,85$) минимума, потом проходят максимум (с амплиту-

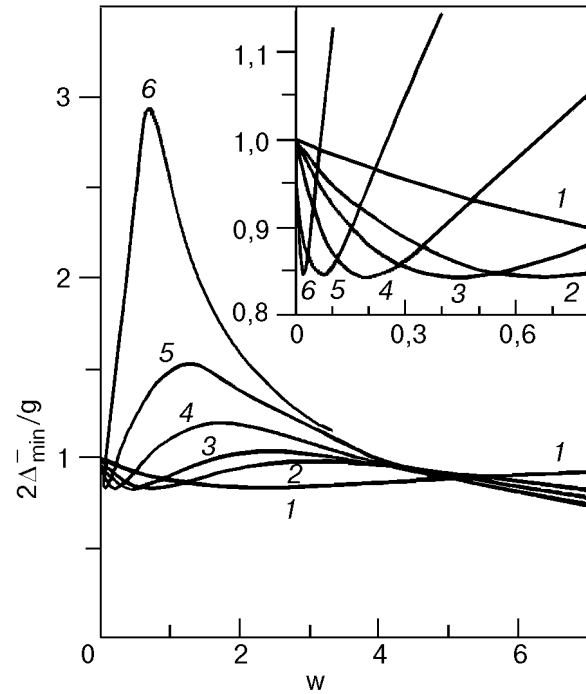


Рис. 13. Зависимость от w низкочастотной составляющей ширины минимума отражения Δ_{\min}^- . Кривые 1-6 соответствуют значениям $\epsilon_{\infty} = 1,05; 1,5; 2; 4; 10$ и 36.

дой, пропорциональной ϵ_∞) и снова опускаются ниже $y = 1$, практически сливаясь в одну точку на уровне $y \approx 0,90$ вблизи $\omega = 5$; положение обоих экстремумов обратно пропорционально ϵ_∞ . Примечательно, что в широких интервалах значений ϵ_∞ (от 1 до ~ 4) и ω (от 0 до ~ 7) величина $2\Delta_{\min}^- / g$ отличается от 1 не более чем на 15–20%, следовательно, с такой же точностью выполняется соотношение

$$g \approx 2\Delta_{\min}^- \quad (13)$$

$$(\epsilon_\infty < \sim 4; \quad g < \sim 7\omega_p).$$

В случае нормальных металлов ($\epsilon_\infty < \sim 1,5$ и $g < \sim 0,1\omega_p$) погрешность полученного выражения оказывается на порядок ниже, так что точность определения g по (13) ограничивается в основном погрешностью измерения спектра отражения.

Таким образом, использование соотношения (13) для определения g более эффективно, чем (26), поскольку (13) выполняется в более широком диапазоне изменений как ω , так и значений R_{\min} : соотношения (26), (2в) имеют смысл при выполнении двух ограничений, накладываемых на R_{\min} ($R_{\min} < 0,5$ и $R_{\min} < R_\infty / 2$), а (13) — только одного, более слабого ($R_{\min} < 0,5$).

Следует отметить, что в значительном числе реальных проводников частоты достаточно интенсивных межзонных переходов располагаются вблизи ω_p и обуславливают существенную дисперсию $\epsilon_\infty(\omega)$ в области плазменного края отражения (в [42] это показано для Ag), в результате чего применение формул (9)–(13) оказывается неэффективным, так как требует внесения громоздких поправок.

Отражение и функция энергетических потерь U_2Zn_{17}

Спектр отражения тонкой ($\sim 230 \text{ \AA}$) пленки U_2Zn_{17} , измеренный в диапазоне 0,5–13 эВ [43], был обработан по методу Крамерса–Кронига с использованием выражений (6) и (11а), (13), (10в) и (11а), (13), (10г) (рис. 14). Получены следующие значения параметров МД: $g = 2,6$ эВ, $\omega_p = 5,7$ эВ, $\epsilon_\infty = 1,9$.

Рассчитанные разными способами пики функции потерь (рис. 14, вставка) оказались в целом близкими по положению и форме, кроме дополнительного максимума на кривой 1, обусловленного межзонными переходами. Таким образом, удалось исключить влияние осцилляторного вкла-

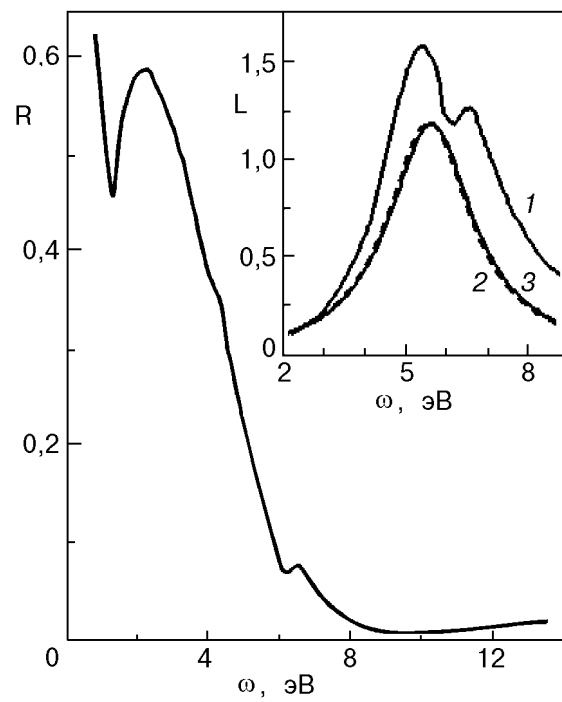


Рис. 14. Спектры отражения R и функции потерь L (на вставке) пленки U_2Zn_{17} . Кривая 1 получена методом Крамерса–Кронига, а 2 (пунктир, почти совпадающий со сплошной кривой при данном масштабе рисунка) и 3 рассчитаны по параметрам Друде, определенным из (12), (13), (10в) и (12), (13), (10г) соответственно.

да при нахождении параметров системы зонных электронов. Этот результат, учитывая сложность электронной структуры тяжелофермионного антиферромагнетика U_2Zn_{17} , свидетельствует в пользу эффективности развитой в работе методики определения параметров МД и для такого типа соединений.

Область применимости модели Друде

Модель Друде, основанная на представлении о свободных носителях электрического заряда, применима к проводящим системам, в которых носителями тока являются электроны широких зон s - и p -типов, для которых корректны понятия псевдопотенциала [44,45] и, соответственно, почти свободных электронов. Таким образом, автоматически исключаются переходные и благородные металлы [45] и их сплавы и соединения, в том числе полупроводникового типа [44], если носителями тока в последних являются d - или f -электроны (дырки). Но даже и для s - и p -систем трехпараметрическая модель Друде представляет собой, вообще говоря, весьма идеализированную схему. Дело в том, что каждый из параметров модели принципиально зависит от частоты. Вот некоторые из причин этого: ω_p меняется по мере

роста энергии возбуждения электронов из-за непараболичности зон проводимости, g меняется из-за «черенковской» генерации квазичастиц (фоонов и т.п. [46]), ϵ_∞ меняется вблизи резонансных частот межзонных переходов. Все это можно, в принципе, учесть, вводя дополнительные параметры, что, однако, сильно усложняет использование модели в общем виде. Одним из главных ее предназначений в настоящее время является исключение «постоянного фона» (т.е. известного спектрального поведения) при анализе оптических свойств проводящих материалов, позволяющее обнаружить и исследовать механизмы изменения их электронных характеристик.

При использовании параметров модели Друде следует учитывать наличие ограничений максимальных значений ω для металлической проводимости [47] и для проводимости по основной и примесной зонам полупроводников [3]. Согласно [47], изменение характера проводимости (металлического на полупроводниковый) происходит при превышении удельным электросопротивлением системы при комнатной температуре $\rho_{300\text{ K}}$ некоторого характеристического для данного класса систем значения ρ_c в интервале 100–200 мкОм·см, т.е. для $\rho_c = 150$ мкОм·см и $\omega_p = 5$ эВ термический коэффициент сопротивления для системы с $\omega > 0,1\epsilon_\infty$ будет отрицательным. Оценка минимальной электропроводности σ_{\min} трехмерных проводников составляет $200 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$, а для проводимости по примесной зоне — $12 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ [3], что для $\omega_p = 1$ эВ дает максимальные допустимые значения $\omega_{\max} \approx 0,7\epsilon_\infty$ и $\omega_{\max} \approx 10\epsilon_\infty$ соответственно. Однако еще до потери системой проводимости при абсолютном нуле температуры возможно радикальное изменение спектрального хода оптических функций в низкочастотной области [3,8].

Выводы

Результаты исследования спектров оптических функций модели Друде в широком интервале значений параметров ($0,001 \leq \omega \leq 10$, $1 \leq \epsilon_\infty \leq 36$) позволили определить условия для наблюдения ряда характерных особенностей их поведения. В частности,

а) корневая частотная зависимость модуля и фазы отражения выполняется в интервале $0 \leq \omega \leq 0,02g$ при $\omega \leq 0,1$ и допустимом отклонении $\delta = 0,01$;

б) линейная частотная зависимость фазы в области $g < \omega < \omega_p$ вида $\theta = 2\omega/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} + \theta_0$ при $\omega \leq 0,01$ и $\delta = 0,01$ ограничена интервалом $3,4g \leq \omega \leq 0,1\omega_p$;

в) понятие плазменного порога отражения как частоты максимальной крутизны $R(\omega)$ является корректным только для значений ω , не превышающих $\omega_{\lim}(\epsilon_\infty)$.

Получены соотношения (как для $\omega < \omega_p$, так и для области плазменных частот и минимума отражения), описывающие общую картину трансформации характерных особенностей спектров при изменении параметров МД, полезные при использовании метода Крамерса—Кронига и упрощающие анализ экспериментальных данных по оптическому отражению и характеристическим потерям энергии электронов как в «хороших» металлах, так и в материалах с сильной температурной зависимостью электропроводности (полупроводники, допированные и нестехиометрические оксиды, гранулированные металлические пленки, аморфные сплавы).

Полученные значения параметров электронной системы Al и U_2Zn_{17} в сравнении с имеющимися литературными данными указывают на возможность предложенной в работе схемы анализа спектров оптических функций (для Al отношение концентрации валентных электронов к эффективной массе, выраженной в единицах массы свободного электрона, $N/m^* = 12,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, частота первой сильной полосы межзонных переходов $\omega_0 = 1,53$ эВ, сила осциллятора равна 22 эВ^2 , полуширина полосы $g = 0,37$ эВ; для U_2Zn_{17} плазменная частота $\omega_p = 5,7$ эВ, $\epsilon_\infty = 1,9$).

Авторы признательны В. В. Еременко и Н. Ф. Харченко за интерес и поддержку работы, А. А. Галузе за помощь при ее выполнении.

Работа частично поддержана грантами ISF № U9L000 и ISF/UA № U9L200.

Приложение I

Методика расчета параметров МД по экспериментальным значениям параметров функции энергетических потерь

До $\omega \sim 10$ (с точностью $\sim 1\%$) параметры ω_L , $2\Delta^+$ и L_{\max} функции $L(\omega)$ аппроксимируются полиномами

$$P_n^\alpha(\omega) = \sum A_i \omega^i, \quad i = 0, 1, \dots, n(\alpha);$$

$$\alpha = \omega, L, \Delta; \quad n(\omega) = 5, \quad n(L) = 4, \quad n(\Delta) = 6.$$

При этом соотношения (11) переходят в

$$\begin{aligned} \omega_L(\omega) &\cong \omega_p P_n^\omega(\omega), \quad L_m(\omega) \cong (\omega \epsilon_\infty)^{-1} P_n^L(\omega), \\ 2\Delta^+(\omega) &\cong g P_n^\Delta(\omega), \end{aligned} \quad (\text{III.1})$$

где коэффициенты A_i для $1,5 < \omega < 10$ принимают значения

1,616; -0,8532; 0,2158; -0,02857; $1,908 \cdot 10^{-3}$;
 $-5,072 \cdot 10^{-5}$ для ω_L ;
 0,8920; 0,04210; 0,1013; -0,01007; 0,000368
 для L_{\max} ;

0,418945, 1,10685; -0,77719; 0,209238;
 $-0,0280489$; $1,86974 \cdot 10^{-3}$; $-4,94383 \cdot 10^{-5}$ для $2\Delta^+$.

Существенно упростить решение системы уравнений (11)–(П.1) позволяет следующий прием. Рассмотрим процесс деформации (которую будем характеризовать отношением Δ^+/Δ^-) функции $L(\omega)$ с ростом ω . Приведенная на рис. 9 зависимость $\omega(\Delta^+/\Delta^-)$ показывает, что область значений Δ^+/Δ^- жестко ограничена величинами $(\Delta^+/\Delta^-)_{\min} = 1$ и $(\Delta^+/\Delta^-)_{\max} \approx 3,7322$, а сама зависимость однозначна и допускает аппроксимацию со средней погрешностью $\delta_{\alpha v}$, меньшей или порядка 1% (рис. 9, пунктирные линии):

$$\omega(\Delta^+/\Delta^-) \approx$$

$$\approx \begin{cases} A_1(x-1)^{1/3} + \sum_{i=2}^6 A_i x^{i-2}, & 0,1 < \omega < 1, \delta_{\alpha v} \sim 1\%; \\ \frac{B_1}{(3,7322-x)^{1/4}} + \sum_{i=2}^6 B_i x^{i-2}, & 1 < \omega < 10, \delta_{\alpha v} \sim 0,3\%. \end{cases} \quad (\text{П.2})$$

Здесь $A_i = 2,01713$; -1408,5; 5213,5; -7231,7; 4455,5; -1028,8; $B_i = 2,8756$; -6,0338; 7,9701; -4,4584; 1,1500; -0,1102; $x = \Delta^+/\Delta^-$. Выражение (П.2) по измеренному Δ^+/Δ^- сразу же дает значение ω , подстановка которого в соотношения (11а) при $\omega < 1,5$ или в (П.1) при $\omega > 1,5$ позволяет простым расчетом найти параметры Друде. Тем самым решается задача определения оптических функций проводников по экспериментальным значениям $L(\omega)$ без использования соотношений Крамерса – Кронига.

Приложение II

Методика расчета параметров МД по экспериментальным значениям параметров плазменного минимума отражения

Проводя аппроксимацию полученных зависимостей на рис. 11, 12, получаем систему уравнений для определения параметров Друде ω_p , ϵ_∞ и g по экспериментальным значениям ω_{\min} , R_{\min} и $\Delta\omega_{\min}$:

$$\Delta\omega_{\min}/g \approx 1 + \text{tg}^2 x, \quad x = \omega(\epsilon_\infty - 1)^{1/2}, \quad (\text{П.1})$$

$$\omega = g/\omega_p,$$

$$R_{\min}/R_\infty \approx \sum_{i=0}^3 A_i x^i, \quad x = \omega(\epsilon_\infty - 1)^{1/2}, \quad (\text{П.2})$$

$$\omega_{\min}/\omega_p [\epsilon_\infty/(\epsilon_\infty - 1)]^{1/2} \approx \sum_{i=0}^3 B_i x^i, \quad (\text{П.3})$$

$$x = \omega[(\epsilon_\infty - 1)/(\epsilon_\infty + 1)]^{1/2}.$$

Здесь $A_0 = -0,02$, $A_1 = 0,0727$, $a_2 = 0,861$, $A_3 = -0,488$; $B_0 = 1$, $B_1 = 0,09$, $B_2 = 0,39$, $B_3 = -0,18$.

Присоединение соотношений (12) и (10а) к уравнениям (П.1)–(П.3) с последующим решением полученной системы условных уравнений методом наименьших квадратов заметно повышает точность определения параметров Друде по измерениям отражения.

1. Н. Ф. Мотт, *Переходы металл–изолятор*, Наука, Москва (1979).
2. Е. В. Кузьмин, С. Г. Овчинников, в кн.: *Физика магнитных материалов*, Наука, Новосибирск (1983).
3. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, т. 1, Мир, Москва (1982).
4. Э. Л. Нагаев, *Физика магнитных полупроводников*, Наука, Москва (1979).
5. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, т. 2, Мир, Москва (1982).
6. Э. Л. Нагаев, *УФН* **166**, 833 (1996).
7. В. М. Локтев, Ю. Г. Погорелов, *ФНТ* **26**, 231 (2000).
8. Z. Simsa, *Phys. Status Solidi* **B96**, 581 (1979).
9. P. Drude, *Ann. Phys.* **1**, 566 (1900); *Ann. Phys.* **3**, 369 (1900).
10. Г. А. Лорентц, *Теория электронов и ее применение к явлениям света и теплового излучения*, ОНТИ, Ленинград–Москва (1934).
11. А. В. Соколов, *Оптические свойства металлов*, Физматгиз, Москва (1961).
12. П. Гроссе, *Свободные электроны в твердых телах*, Мир, Москва (1982).
13. Т. Мосс, *Оптические свойства полупроводников*, Изд-во иностр. лит., Москва (1961).
14. Т. Мосс, Г. Баррел, Б. Эллис, *Полупроводниковая оптоэлектроника*, Мир, Москва (1976).
15. Г. Фэн, *Фотон–электронное взаимодействие в кристаллах*, Мир, Москва (1969).
16. P. Drude, *Phys. Z.* **1**, 161 (1900).
17. Z. Schlesinger, R. T. Collins, D. L. Kaiser, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1958 (1987).
18. I. Bozovic, D. Kirillov, A. Kapitulnik, K. Char, M. R. Hahn, M. R. Beasley, T. H. Geballe, Y. H. Kim, and A. J. Heeger, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2219 (1987).
19. М. П. Петров, А. И. Грачев, М. В. Красинькова, А. А. Нечитайлов, В. В. Поборчий, С. И. Шагин, С. В. Миридонов, *Письма в ЖЭТФ* **50**, 25 (1989).

20. I. Bozovic, K. Char, J. B. Yoo, A. Kapitulnik, M. R. Beasley, T. H. Geballe, Z. Z. Wang, S. Hagen, N. P. Ong, D. E. Aspnes, and M. K. Kelly, *Phys. Rev.* **B38**, 5077 (1987).
21. J. Petzelt, S. Kamba, S. Pacesova, J. Sramek, O. Smrckova, and D. Sikorova, *Phys. Status Solidi* **B146**, 743 (1988).
22. V. Coch, H. P. Geserich, and Th. Wolf, *Solid State Commun.* **71**, 495 (1989).
23. А. И. Головашкин, К. В. Крайская, А. Л. Шелехов, *ФТТ* **32**, 175 (1990).
24. И. Я. Фуголь, В. Н. Свищев, М. Ю. Либин, *ФНТ* **24**, 195 (1998).
25. P. Wachter, B. Bucher, and R. Pittini, *Phys. Rev.* **B49**, 13164 (1994).
26. Joseph Orenstein, G. A. Thomas, C. G. Rapkine, C. G. Bethea, B. F. Levine, R. J. Cava, E. A. Rietman, and D. W. Johnson, Jr., *Phys. Rev.* **B36**, 729 (1987).
27. H. Nakano, and M. Imada, *Technical Report of ISSP, ser. A*, N 3467 (1999).
28. G. A. Thomas, H. K. Ng, A. J. Millis, R. N. Bhatt, R. J. Cava, E. A. Rietman, D. W. Johnson Jr., G. P. Espinosa, and J. M. Vandenberg, *Phys. Rev.* **B36**, 846 (1987).
29. D. C. Mattis and J. Bardeen, *Phys. Rev.* **111**, 412 (1958).
30. P. Kostic, Y. Okada, N. C. Collins, Z. Schlesinger, J. W. Reiner, L. Klein, A. Kapitulnik, T. H. Geballe, and M. R. Beasley, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2498 (1998).
31. *Физическая энциклопедия*, Советская энциклопедия, Москва, том 2, 611 (1990).
32. Е. А. Бакулин, О. В. Константинов, в кн.: *Материалы VI зимней школы по физике полупроводников*, Ленинград, 51 (1975).
33. P. Keil, *Z. Phys.* **214**, 251 (1968).
34. W. E. Spicer, in: *Optical Properties of Solids*, F. Abeles, (ed.), North-Holland Publishing Company, Amsterdam-London, 756 (1972).
35. A. J. McAlister and E. A. Stern, *Phys. Rev.* **132**, 1599 (1963).
36. Дж. Займан, *Принципы теории твердого тела*, Мир, Москва (1974).
37. *Handbook of Optical Constants of Solids*, E. D. Palik (ed.), Academic Press, New York (1985).
38. L. G. Schulz, *J. Opt. Soc. Am.* **44**, 357 (1954).
39. И. Н. Шкляревский, Р. Г. Яровая, *Опт. и спектр.* **16**, 85 (1964).
40. H. Ehrenreich, H. R. Philipp, and B. Segall, *Phys. Rev.* **132**, 1918 (1963).
41. Х. Филипп, Х. Эренрайх, в кн.: *Оптические свойства полупроводников*, Мир, Ленинград 103 (1970).
42. В. К. Милославский, Р. Г. Яровая, *Опт. и спектр.* **21**, 708 (1966).
43. А. И. Галуза, А. Б. Безносков, В. В. Еременко, в кн.: *Тез. докл. IX Всесоюз. конф. ВУФ-91*, Томск (1991), с. 104.
44. У. Харрисон, *Электронная структура и свойства твердых тел*, Мир, Москва (1983).
45. В. Хейне, М. Коэн, Д. Уэйр, *Теория псевдопотенциала*, Мир, Москва (1973).
46. М. М. Носков, *Оптические и магнетооптические свойства металлов*, УНЦ АН СССР, Свердловск (1983).
47. J. H. Mooij, *Phys. Status Solidi* **A17**, 521 (1973).

The Drude model optical functions: spectra transformations in a wide range of values of the parameters

A. I. Galuza and A. B. Beznosov

The spectral features of the Drude model optical functions are analyzed in a wide range of values of the parameters: plasma frequency of current carriers ω_p , transport relaxation frequency g , and dielectric permeability ϵ_∞ , caused by the high energy electron transitions in the system. Conditions are determined for the validity of the square root frequency dependence of the reflection modulus and phase, for the phase linearity $\theta = 2\omega/\omega_p \sqrt{\epsilon_\infty} + \theta_0$, and for the existence of plasma reflection edge. Approximated relations are obtained which allow one to simplify the analysis of the data on optical reflection and characteristic energy losses in «good» metals as well as in materials with a strong temperature dependence of electrical conductivity (semiconductors, doped and nonstoichiometric oxides, granular metallic films, amorphous alloys). The parameters of the conduction electrons system of Al and U_2Zn_{17} are evaluated.