

УДК 537.531.535.3

©1994

ОПТИЧЕСКОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ ЭЛЕКТРОНОВ ПРОВОДИМОСТИ В НЕКОТОРЫХ СОЕДИНЕНИЯХ НИОБИЯ

А.И.Головашкин, Л.А.Иванченко, Н.Д.Кузьмичев, И.С.Левченко

Приведены результаты расчета мнимой части диэлектрической проницаемости нескольких образцов нитрида ниобия и соединений его с германием и алюминием со структурами В1 и А15. Сделан вывод, что при поглощении света вследствие межзонных переходов электронов с энергиями, близкими к кратным величинам основных энергий плазменных колебаний электронов проводимости, возможно возбуждение последних в каждой полосе поглощения.

Изучение соединений ниобия со структурами А15 и В1 продолжает оставаться актуальным, так как до сих пор открыт вопрос о физической природе сравнительно высоких критических температур у этих сверхпроводников. Столь же важным является анализ особенностей диэлектрических функций отклика на воздействие электромагнитного излучения в области энергий 0.1–3.1eV, где характер поглощения обусловлен многими факторами.

В настоящей работе предпринята попытка выяснить, можно ли описать мнимую часть диэлектрической функции $\hat{\epsilon}(\hbar\omega)$ в соединениях ниобия с участием межзонных переходов брегговских электронов и близких к ним по энергиям гибридованных плазмонов в индивидуальных полосах поглощения.

В работах [1–3] показано, как при расчете диэлектрической проницаемости металлов следует учитывать вклад электронов проводимости и «вертикальных» межзонных переходов электронов, которые отделены от уровня Ферми энергетическими щелями («брегговские» щели). В предположении аддитивности вкладов разных групп электронов функция $\hat{\epsilon}(\omega)$ имеет вид

$$\hat{\epsilon}(\omega) = \sum_{j=1}^n \hat{\epsilon}_j(\omega), \quad (1)$$

где n — общее число полос поглощения, обусловленных внутри- и межзонными переходами электронов.

Вклад электронов проводимости с эффективной концентрацией N и массой m^* описывается соотношением Друде

$$\epsilon_{21}^T(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma_p}{\omega(\omega^2 + \gamma_p^2)}, \quad \omega_p^2 = \frac{4\pi e N}{m^*}. \quad (2)$$

Все остальные полосы поглощения определяются величиной щели $\Delta_j = \hbar\omega_{0j}$, плазменной частотой ω_{pj}^* электронов («гибридизованные» плазмоны), участвующих в межзонном переходе, и параметром релаксации γ_j

$$\varepsilon_{2j}^T(\omega) = \frac{\omega_{pj}^2 \omega_{0j} \omega \gamma_j}{(\omega^2 + \gamma_j^2)^2} \left(\frac{\omega^2 - \gamma_j^2}{A_j B_j} - \frac{2B_j}{A_j} + \frac{2}{\omega_{0j}} \right),$$

$$A_j = \sqrt{z_j^2 + 4\omega^2 \gamma_j^2}, \quad B_j = \sqrt{(A_j + z_j)/2},$$

$$z_j = \omega_{0j}^2 - \omega^2 + \gamma_j^2, \quad \hbar\omega_{0j} = \Delta_j \quad (j = 2, 3 \dots n). \quad (3)$$

Сравнение расчетных зависимостей $\varepsilon_2^T(\hbar\omega)$ и экспериментально определенных позволило авторам работ [2,3] определить все указанные в таблице электронные характеристики соединения ниобия.

Электронные характеристики соединений ниобия со структурой A15 и B1

Образец	Nb, at. %	Электроны проводимости			Параметры полос поглощения		
		$\hbar\omega_p$, eV	$\hbar\gamma_p$, eV	N , cm ⁻³	$\hbar\omega_{pj}^*$, eV	$\hbar\gamma_j$, eV	$\hbar\omega_{0j}$, eV
NbN №1	51.0*	3.42	0.001	$8.0 \cdot 10^{21}$	20 · 0.17	0.29	0.14
		1.14*		$8.9 \cdot 10^{20*}$	5 · 0.68	0.85	0.70
					3 · 1.14	0.91	1.13
NbN №2	50.4*	3.15	0.009	$6.9 \cdot 10^{21}$	20 · 0.157	0.62	0.16
		1.05*		$7.7 \cdot 10^{20*}$	6 · 0.52	1.19	0.54
					3 · 1.05	0.91	1.13
NbN №3	58.2*	4.14	0.042	$1.2 \cdot 10^{22}$	18 · 0.23	0.81	0.215
		1.38*		$1.3 \cdot 10^{21*}$	10 · 0.41	1.29	0.38
					4 · 0.04	0.99	1.10
NbN №4	49.5*	3.00	0.031	$6.5 \cdot 10^{21}$	14 · 0.21	0.50	0.26
		0.55*		$2.3 \cdot 10^{20*}$	5 · 0.60	0.42	0.54
					3 · 1.00	0.40	1.22
				2 · 1.50	0.35	1.46	
Nb-Al	-	6.60	0.025	$3.2 \cdot 10^{22}$	30 · 0.22	0.65	0.20
		4.36*		$1.4 \cdot 10^{22*}$	16 · 0.41	0.77	0.40
					4 · 1.65	0.75	1.70
				2 · 3.30	0.25	2.95	
Nb-Ge	-	6.2	0.037	$2.8 \cdot 10^{22}$	30 · 0.207	0.51	0.20
		4.36*	0.098	$1.4 \cdot 10^{22*}$	8 · 0.77	0.67	0.71
					4 · 1.55	0.65	1.72
				2 · 3.1	0.63	3.02	

* Результаты получены в [2,3].

В настоящей работе также проведен расчет диэлектрических функций $\epsilon_2^T(\hbar\omega)$. При этом мы исходили из предположения, что плазмоны малых энергий являются фактически субгармониками основных плазмонов.

Ранее [4,5] одним из авторов было отмечено, что для металлов I группы и ряда металлоподобных соединений наблюдается удивительная близость минимальных энергий межзонных переходов электронов $\hbar\omega_0$ и энергий гибридованных плазмонов $\hbar\omega_{pj}^*$ и выполняется соотношение $l\hbar\omega_{pj}^* = \hbar\omega_p$, где $l = 1, 2, \dots$ — целые числа, $\hbar\omega_p$ — основной плазмон, энергия которого определяется эффективной концентрацией электронов проводимости.

На основе анализа энергий плазмонов в NbN и сопоставления с результатами оптических исследований карбидов и нитридов ряда переходных металлов [6] мы полагаем, что энергия $\hbar\omega_p$ основных плазменных колебаний электронов проводимости в NbN должна составлять ~ 3 eV. Кроме того, энергию $\hbar\omega_p$ можно определить из экспериментальных зависимостей $\epsilon_1(\hbar\omega)$ по спектральным участкам, где эти функции обращаются в нуль либо близки к нулю. Указанные параметры представлены в таблице.

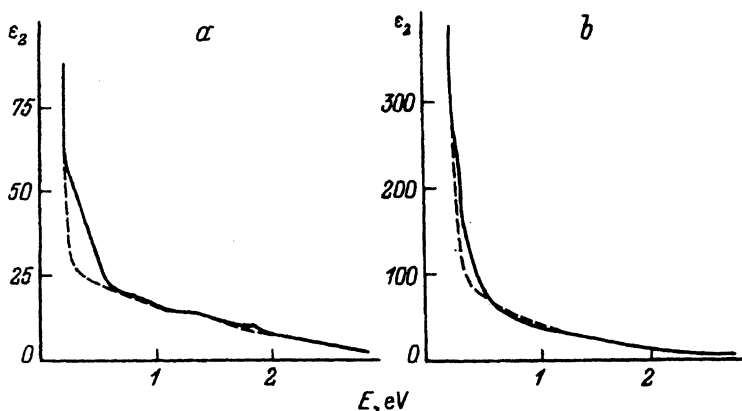
Сравнение расчетных и экспериментальных функций $\epsilon_2(\hbar\omega)$ в ИК части спектра, где выполняется соотношение Друде (2), позволяет определить параметр релаксации γ_p . Критерием правильности его определения служит выполнение соотношения

$$\gamma_p = 4\pi\rho\omega_p^2, \quad (4)$$

где ρ — величина удельного электросопротивления исследуемого образца [7].

Для объемных образцов в NbN стехиометрического состава величины ρ находятся в пределах $40-50 \mu\Omega \cdot \text{см}$. Для пленочных образцов того же состава величины ρ могут отличаться в 2-3 раза.

Установлено, что в пленочных образцах таких металлоподобных соединений, как нитриды и карбиды переходных металлов, плазменная частота электронов проводимости и их эффективная концентрация отличаются не более чем на 10-15% [6]. Это же установлено нами на



Экспериментальные (сплошные линии) и расчетные (пунктир) диэлектрические проницаемости для образцов NbN № 4 (а) и Nb-Ge (б).

примере гексаборидов ряда редкоземельных металлов, которые по своим оптическим и электрофизическим характеристикам подобны NbN и другим тугоплавким соединениям с простой кубической структурой и высокой концентрацией электронов проводимости [8].

Для расчета функции $\varepsilon_{2j}^T(\hbar\omega)$ параметры $\hbar\omega_{pj}^*$ и $\hbar\omega_{0j}$ подобраны нами из экспериментальных зависимостей $\varepsilon_2(\hbar\omega)$ и $\varepsilon_1(\hbar\omega)$ по спектральному положению соответствующих экстремумов. Параметры релаксации γ_j подбирались так, чтобы расхождение между экспериментальными и вычисленными по формулам (2), (3) функциям было минимальным. В соотношения (3) нами введен дополнительный параметр l^2 для учета кратности субгармоники плазменных колебаний. Результаты соответствующих расчетов функции $\varepsilon_2^T(\hbar\omega)$ представлены на рисунке а, б и в таблице.

Как видно из рисунка, можно добиться хорошего согласования экспериментальных и расчетных кривых и в том случае, когда в качестве гибридованных плазмонов использованы фактические величины энергий основных плазмонов $\hbar\omega_p$. Из таблицы следует, что энергии $\hbar\omega_{0j}$ действительно можно представить как числа, близкие к кратным для величин энергий $\hbar\omega_p$.

Общий вывод может быть сделан такой: если энергии $\hbar\omega_{0j}$ межзонных переходов брегговских электронов в NbN, Nb-Al и Nb-Ge являются числами, близкими к кратным величинам основных плазмонов $\hbar\omega_p$, то под действием света происходит плазменное возбуждение электронов проводимости.

Следует отметить еще одно существенное обстоятельство: расчетные и экспериментальные зависимости $\varepsilon_2(\hbar\omega)$ для рассмотренных соединений ниобия наиболее расходятся в участке спектра 0.2–0.6 eV. Такое расхождение может быть обусловлено с наибольшей долей вероятности дополнительным оптическим поглощением, обусловленным колебаниями решетки, которое не учитывается в соотношениях (3), использованных нами для расчета $\varepsilon_2(\hbar\omega)$. Не исключено, что в данном спектральном интервале под действием света возникает плазмон-фононный резонанс в нитридах ниобия.

Плазмон-фононный резонанс как причина возникновения плазменных колебаний в соединениях ниобия с энергиями 0.15–0.22 eV кажется более реальным, чем возникновение субгармоник 14-го, 20-го, тем более 30-го порядков. А вот возникновение субгармоник 2-го и 3-го порядков очень вероятно. Именно такой характер плазменных колебаний свойствен для нитридов и карбидов титана и циркония и многих других тугоплавких соединений с высокой концентрацией электронов проводимости [1,4].

Список литературы

- [1] Головашкин А.И., Мотулевич Г.П. // ЖЭТФ. 1969. Т. 57. № 3(9). С. 1054–1063.
- [2] Кузьмичев Н.Д., Левченко И.С., Мотулевич Г.П. // Тр. ФИАН СССР. 1988. Т. 190. С. 72–108.
- [3] Джураев Д.Р., Кузьмичев Н.Д., Мотулевич Г.П. // Там же. С. 108–127.
- [4] Иванченко Л.А. // Деп. в ВИНТИ. 1990. № 3691-B90. 12 с.
- [5] Иванченко Л.А. // Сб. «Электронное строение и свойства тугоплавких соединений». Киев, ИПМ АН УССР, 1991. С. 59–65.

- [6] Иванченко Л.А., Бекенев В.Л. // Сб. «Теория электронного строения и свойства переходных металлов, сплавов, соединений». Киев: Наукова думка, 1991. С. 34-41.
- [7] Mazin I.T., Savitskij E.M., Uspenskij Yu.A. // J. Phys. F. 1984. P. 167-178.
- [8] Bessaraba V.I., Ivanchenko L.A., Paderno Yu.B. // J. Less. Com. Met. 1979. V. 67. N 2. P. 505-509.

Институт проблем
материаловедения АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
7 февраля 1994 г.
