

Размерная зависимость коэффициента пропускания нанометровых металлических пленок в инфракрасном диапазоне

© В.П. Курбацкий, А.В. Коротун, В.В. Погосов, Е.В. Васютин

Запорожский национальный технический университет,
69063 Запорожье, Украина

E-mail: vpogosov@zntu.edu.ua

(Поступила в Редакцию 11 мая 2007 г.)

В приближении диагонального отклика исследовано прохождение электромагнитных волн ИК-диапазона через тонкие квазиоднородные металлические пленки. В рамках модели потенциальной ямы конечной глубины с учетом размерной зависимости энергии Ферми получена формула для диэлектрической функции. Рассчитан коэффициент пропускания пленок и проведено сравнение с экспериментами. Расчеты выполнены для Al, Au и Ag.

Работа проведена при поддержке Министерства образования и науки Украины.

PACS: 78.66.Bz, 42.70.Km, 78.20.Ci

1. Введение

Большой интерес вызывают свойства низкоразмерных систем, к которым можно отнести субатомные пленки, нити и квантовые точки. В таких системах ярко проявляется немонотонный характер размерных эффектов (см., например, работы [1–3] и ссылки в них). Исследование оптических свойств металлических пленок традиционно считается важным [1], поскольку позволяет не только получать информацию о структуре объекта, но и способствует созданию перспективных материалов, полезных для микро- и нанoeлектроники [2,3].

В ходе ранних исследований [1] были предсказаны резонансные пики поглощения и эффекты размерного квантования в оптических свойствах сплошных металлических пленок. Затем в работах [4–17] были выполнены разнообразные измерения эмиссионных свойств, коэффициента прозрачности и проводимости ультратонких сплошных и островковых металлических пленок в различных областях спектра при различных температурах.

Одной из наиболее популярных теоретических работ по исследованию отклика наноразмерных металлических объектов на падающую электромагнитную волну является теория Вуда и Ашкрофта [18]. Одноэлектронный эффективный потенциал моделировался бесконечно глубокой ямой с вертикальными стенками. Эта теория затем была протестирована экспериментами в [5]. Последующие многочисленные работы (см. работы [19–24] и ссылки в них) посвящены теоретическому исследованию размерных эффектов в композитах и продольной проводимости неоднородных по толщине пленок на разных частотах.

Среди сравнительно недавних работ следует отметить [9], в которой были выполнены первые измерения ИК-проводимости ультратонких пленок Pb и уменьшение их проводимости объяснено гранулярностью структуры. В последующей работе [11] были измерены оптические характеристики металлических пленок при температуре 10 К и при этом обнаружена аномальная

оптическая прозрачность в дальней ИК-области. Методом ИК-спектроскопии в [17] были впервые изучены квантово-размерные эффекты в спектрах пропускания тонких пленок свинца. Экспериментаторы, как правило, используют модифицированную теорию Друде при трактовке своих измерений.

Целью настоящей работы является расчет коэффициента пропускания электромагнитной волны тонкими металлическими пленками. На основе предположения о квазиоднородности пленки исследован ее диагональный отклик на падающую волну ИК-диапазона. В рамках модели потенциальной ямы конечной глубины с учетом размерной зависимости энергии Ферми [25] получена формула для диэлектрической функции. Для субатомных тонких пленок такой подход следует рассматривать как экстраполяционный. Рассчитан коэффициент пропускания и проведено сравнение с экспериментами [4,5] для нанометровых пленок Au и Ag.

2. Тонкая металлическая пленка в электромагнитном поле

Назовем тонкой такую пленку, толщина которой L сравнима по порядку величины с фермиевской длиной волны электрона в бесконечном металле ($\lambda_F^0 \approx 0.5 \text{ nm}$). Продольные размеры пленки предполагаются намного большими ее толщины: $a, b \gg L$. В этом случае проявляется квантование поперечной по отношению к пленке компоненты импульса электронов, что приводит к формированию подзон — групп энергетических уровней, соответствующих одному и тому же значению поперечной компоненты импульса.

Гамильтониан для электронов проводимости в присутствии электромагнитной волны имеет вид

$$H = \frac{1}{2m_e} \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + V(\mathbf{r}), \quad (1)$$

где m_e — масса электрона, $(-e)$ — заряд электрона, c — скорость света в вакууме, $\hat{\mathbf{p}}$ — оператор импульса,

$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_0 e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)}$ — векторный потенциал волны, $V(\mathbf{r})$ — эффективный одноэлектронный потенциал в отсутствие поля. Сохраняя только линейные по \mathbf{A} члены, перепишем (1) в виде

$$H = \left(\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_e} + V(\mathbf{r}) \right) + \frac{e}{2m_e c} (\hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{p}}) \equiv H_0 + H_1. \quad (2)$$

Будем рассматривать H_1 как возмущение состояний $|i\rangle$ гамильтониана H_0 электронов проводимости в отсутствие поля.

Матрица плотности определяется соотношением

$$\hat{\rho} \equiv \left\{ \exp((H - \mu)/k_B T) + 1 \right\}^{-1}, \quad (3)$$

так что для любого состояния $|i\rangle$ гамильтониана H

$$\hat{\rho}|i\rangle = f_i|i\rangle,$$

где $f_i \equiv \left\{ \exp((\varepsilon_i - \mu)/k_B T) + 1 \right\}^{-1}$ — коэффициент заполнения состояния ε_i , μ — химический потенциал электронов, T — температура, k_B — постоянная Больцмана. В линейном приближении представим

$$\hat{\rho} = \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1, \quad (4)$$

где $\hat{\rho}_0$ — матрица плотности, соответствующая гамильтониану H_0 , $\hat{\rho}_1$ — ее малое возмущение, вызванное H_1 .

Матрица плотности подчиняется уравнению Лиувилля, лианеризованная форма которого имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}_1}{\partial t} = (H_1 \hat{\rho}_0 - \hat{\rho}_0 H_1) + (H_0 \hat{\rho}_1 - \hat{\rho}_1 H_0). \quad (5)$$

Предполагая отклик на той же частоте, что и возмущение, получаем из уравнения (5)

$$\langle i|\hat{\rho}_1|j\rangle = \frac{f_i - f_j}{\varepsilon_i - \varepsilon_j - \hbar\omega} \langle i|H_1|j\rangle. \quad (6)$$

Найдем ток, вызванный возмущением H_1 . Оператор тока определяется соотношением

$$\hat{\mathbf{j}} = -\frac{e}{2m_e} \left\{ \delta(\mathbf{r} - \hat{\mathbf{r}}) \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) + \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) \delta(\mathbf{r} - \hat{\mathbf{r}}) \right\}.$$

Индукционный ток можно найти усреднением с помощью матрицы плотности

$$\mathbf{j}_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) = \text{Tr} \{ \hat{\rho} \hat{\mathbf{j}} \} \approx \text{Tr} \{ \hat{\rho}_0 \hat{\mathbf{j}}_1 + \hat{\rho}_1 \hat{\mathbf{j}}_0 \}, \quad (7)$$

где

$$\hat{\mathbf{j}}_0 = -\frac{e}{2m_e} (\delta(\mathbf{r} - \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{p}} + \hat{\mathbf{p}} \delta(\mathbf{r} - \hat{\mathbf{r}})), \quad (8)$$

$$\hat{\mathbf{j}}_1 = -\frac{e^2}{m_e c} \mathbf{A} \delta(\mathbf{r} - \hat{\mathbf{r}}). \quad (9)$$

После выполнения усреднения и разложения результата в ряд Фурье получим выражение для $\mathbf{j}_{\text{ind}}(\mathbf{k}, \mathbf{q}, \omega)$, в котором полагаем $\mathbf{k} = \mathbf{q}$. В приближении диагонального

отклика все остальные Фурье-компоненты индукционного тока опускаются. В этом приближении пренебрегают любой неоднородностью в распределении заряда невозмущенной электронной подсистемы пленки. Тем самым предполагается, что в тонких пленках размерное квантование играет преобладающую роль по сравнению с неоднородностью распределения заряда. Тогда из (7)–(9) получаем

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{\text{ind}}(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{iNe^2}{m_e \omega \Omega} \mathbf{E}(\mathbf{q}, \omega) + \frac{ie^2}{m_e^2 \omega \Omega} E(\mathbf{q}, \omega) \\ &\times \sum_{ij} \frac{f_i - f_j}{\varepsilon_{ij} - \hbar\omega} \left(\langle i|e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{p}_E|j\rangle + \frac{1}{2} \hbar q_E \langle i|e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}|j\rangle \right) \\ &\times \left(\langle j|e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{\mathbf{p}}|i\rangle + \frac{1}{2} \hbar \mathbf{q} \langle j|e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}|i\rangle \right), \end{aligned} \quad (10)$$

где $\mathbf{E}(\mathbf{q}, \omega) = (i\omega/c)\mathbf{A}(\mathbf{q}, \omega)$ — напряженность электрического поля, \hat{p}_E и q_E — компоненты импульса и волнового вектора вдоль направления электрического поля, $\varepsilon_{ij} \equiv \varepsilon_i - \varepsilon_j$, N — число электронов проводимости в пленке, объем которой $\Omega = abL$.

Поскольку в настоящей работе акцент делается на оптических переходах между подзонами с изменением поперечной компоненты импульса электронов k_x , мы исследуем случай, когда поле \mathbf{E} направлено перпендикулярно поверхности пленки (вдоль оси x). Соответствующая такому случаю оптическая проводимость σ_{xx} определяется соотношением

$$j_{\text{ind}_x} = \sigma_{xx} E_x, \quad (11)$$

и ее легко найти из формулы (10)

$$\sigma_{xx}(\omega) = \frac{iNe^2}{m_e \omega \Omega} + \frac{ie^2}{m_e^2 \omega \Omega} \sum_{ij} \frac{f_i - f_j}{\varepsilon_{ij} - \hbar\omega} |\langle i|\hat{p}_E|j\rangle|^2$$

Так как для тонкой пленки в оптической области выполняются условия $q_x \ll k_x$, $q_x L \ll 1$, мы приняли $\mathbf{q} = 0$.

Диэлектрическая функция пленки связана с оптической проводимостью соотношением

$$\epsilon(\omega) = 1 + i4\pi\sigma_{xx}(\omega)/\omega. \quad (13)$$

Используя (12), после некоторых преобразований получаем выражение

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{8\pi e^2 \hbar^2}{\Omega m_e^2} \sum_{ij} \frac{f_i |p_{ij}|^2}{\varepsilon_{ij} (\varepsilon_{ij}^2 - \hbar^2 \omega^2)}, \quad (14)$$

где $p_{ij} \equiv \langle i|\hat{p}_E|j\rangle$ [18], которое будет использовано нами в дальнейшем.

3. Диэлектрическая функция и коэффициент поглощения

Предполагается, что электроны проводимости пленки заключены в прямоугольном потенциальном ящике $V(\mathbf{r})$ глубиной $U_0 < 0$, форма которого повторяет форму

пленки. Невозмущенные состояния в пленке описываются волновыми функциями

$$\Psi_{mnp}(x, y, z) = \frac{1}{\sqrt{ab}} \psi_m(x) e^{2\pi n y i/a} e^{2\pi p z i/b}, \quad (15)$$

где $n = \pm 1, \pm 2, \dots$; $p = \pm 1, \pm 2, \dots$; $m = \pm 1, \pm 2, \dots$. Индекс m нумерует подзоны. При четных значениях m

$$\psi_m(x) = \begin{cases} C_m \sin k_{xm} x, & -L/2 < x < L/2, \\ (-1)^{(m/2)+1} C_m \frac{k_{xm}}{k_0} e^{\kappa_m L/2} e^{-\kappa_m x}, & x > L/2, \\ (-1)^{m/2} C_m \frac{k_{xm}}{k_0} e^{\kappa_m L/2} e^{\kappa_m x}, & x < -L/2, \end{cases}$$

а при нечетных m

$$\psi_m(x) = \begin{cases} C_m \cos k_{xm} x, & -L/2 < x < L/2, \\ (-1)^{(m/2)-1} C_m \frac{k_{xm}}{k_0} e^{\kappa_m L/2} e^{-\kappa_m x}, & x > L/2, \\ (-1)^{(m/2)-1} C_m \frac{k_{xm}}{k_0} e^{\kappa_m L/2} e^{\kappa_m x}, & x < -L/2, \end{cases} \quad (16)$$

где $C_m = 1/\sqrt{1/\kappa_m + L/2}$ — нормировочный множитель, k_{xm} — корни уравнения

$$k_{xm} L = -2 \arcsin(k_{xm}/k_0) + \pi m, \quad (17)$$

$\kappa_m \equiv \sqrt{k_0^2 - k_{xm}^2}$, $k_0 \equiv \sqrt{2m_e |U_0|/\hbar}$. Уровни энергии определяются соотношением

$$\varepsilon_{mnp} = \frac{\hbar^2}{2m_e} \{k_{xm}^2 + (2\pi n/a)^2 + (2\pi p/b)^2\}.$$

Вычисление матричных элементов оператора проекции импульса $\hat{p}_E = i\hbar\partial/\partial x$ на основе (15), (16) приводит к выражению

$$\begin{aligned} |\langle mnp | \hat{p}_E | m'n'p' \rangle|^2 &= \frac{\hbar^2}{(1/\kappa_m + L/2)(1/\kappa_{m'} + L/2)} \\ &\times \frac{2k_{xm}^2 k_{xm'}^2}{(k_{xm'}^2 - k_{xm}^2)^2} \{1 - (-1)^{m+m'}\} \delta_{nn'} \delta_{pp'}. \end{aligned} \quad (18)$$

Как видно, внутри одной подзоны переходы вообще не происходят, а переход между подзонами имеет место только в том случае, когда m и m' — числа разной четности, т.е. $m + m'$ — нечетное число.

В качестве аппроксимации коэффициента заполнения использована ступенчатая функция $f_{mnp} = \Theta\{\varepsilon_F - \varepsilon_{mnp}\}$, где ε_F — энергия Ферми. После подстановки выражения (18) в (14) и замены суммирования по n , n' , p и p' соответствующим интегрированием для диэлектрической функции получена следующая формула:

$$\begin{aligned} \varepsilon(k_\omega) &= 1 + \left(\frac{4}{L}\right)^4 \frac{L}{a_0} \\ &\times \sum_{m=1}^{m_F} \sum_{m'=1}^{m_{\max}} \frac{k_{xm}^2 k_{xm'}^2 (k_F^2 - k_{xm}^2) \{1 - (-1)^{m+m'}\}}{(1 + 2/L\kappa_m)(1 + 2/L\kappa_{m'}) \times} \\ &\quad \times (k_{xm}^2 - k_{xm'}^2)^3 \{(k_{xm}^2 - k_{xm'}^2)^2 - k_\omega^4\} \end{aligned} \quad (19)$$

где $\hbar k_\omega \equiv \sqrt{2m_e \omega}$, $\hbar k_F \equiv \sqrt{2m_e \varepsilon_F}$, a_0 — радиус Бора и

$$m_F \equiv \left\lceil \frac{Lk_F}{\pi} + \frac{2}{\pi} \arcsin \frac{k_F}{k_0} \right\rceil, \quad m_{\max} \equiv \left\lceil \frac{Lk_0}{\pi} \right\rceil + 1. \quad (20)$$

Квадратные скобки в (20) и далее в тексте обозначают целую часть числа.

Введем уширение способом, предложенным в работе [26]. Формальная замена $\omega \rightarrow \omega + i/\tau$, где τ — время релаксации, в выражении для диэлектрической функции приводит к локальному несохранению числа электронов. Чтобы этого избежать, используется следующая процедура. Во-первых, в определение матрицы плотности (3) вводится сдвиг локального химического потенциала $\delta\mu(\mathbf{r})$, который дает необходимую степень свободы для обеспечения выполнения уравнения непрерывности. Во-вторых, в правую часть уравнения (5) добавляется член $-i\hbar\hat{\rho}_1/\tau$. Затем для совместного решения с уже измененным уравнением (5) используется уравнение непрерывности.

В результате диэлектрическая функция становится комплексной функцией $\varepsilon_1(\omega, \tau)$, которая связана с первоначальной диэлектрической функцией $\varepsilon(\omega)$ соотношениями

$$\text{Re } \varepsilon_1(\omega, \tau) = \text{Re } \varepsilon(\omega + i/\tau) - \frac{1}{\omega\tau} \text{Im } \varepsilon(\omega + i/\tau), \quad (21)$$

$$\text{Im } \varepsilon_1(\omega, \tau) = \text{Im } \varepsilon(\omega + i/\tau) + \frac{1}{\omega\tau} \{\text{Re } \varepsilon(\omega + i/\tau) - 1\}. \quad (22)$$

После подстановки (19) в (21) и (22) получаем

$$\begin{aligned} \text{Re } \varepsilon(k_\omega) &= 1 + \left(\frac{4}{L}\right)^4 \frac{L}{a_0} \\ &\times \sum_{m=1}^{m_F} \sum_{m'=1}^{m_{\max}} \frac{k_{xm}^2 k_{xm'}^2 (k_F^2 - k_{xm}^2) \{1 - (-1)^{m+m'}\} \times} \\ &\quad \times \{(k_{xm'}^2 - k_{xm}^2)^2 - k_\omega^4 - \gamma^4\}}{(1 + 2/L\kappa_m)(1 + 2/L\kappa_{m'}) (k_{xm}^2 - k_{xm'}^2)^3 \times} \\ &\quad \times \{(k_{xm'}^2 - k_{xm}^2)^2 - k_\omega^4 + \gamma^4\}^2 + 4\gamma^4 k_\omega^4 \} \end{aligned} \quad (23)$$

$$\begin{aligned} \text{Im } \varepsilon(k_\omega) &= \left(\frac{4}{L}\right)^4 \frac{L}{a_0} \frac{\gamma^2}{k_\omega^2} \\ &\times \sum_{m=1}^{m_F} \sum_{m'=1}^{m_{\max}} \frac{k_{xm}^2 k_{xm'}^2 (k_F^2 - k_{xm}^2) \{1 - (-1)^{m+m'}\} \times} \\ &\quad \times \{(k_{xm'}^2 - k_{xm}^2)^2 - k_\omega^4 - \gamma^4\}}{(1 + 2/L\kappa_m)(1 + 2/L\kappa_{m'}) (k_{xm}^2 - k_{xm'}^2)^3 \times} \\ &\quad \times \{(k_{xm'}^2 - k_{xm}^2)^2 - k_\omega^4 + \gamma^4\}^2 + 4\gamma^4 k_\omega^4 \} \end{aligned} \quad (24)$$

где $\gamma \equiv \sqrt{2m_e/\hbar\tau}$ (здесь и далее индекс 1 у диэлектрической функции опущен).

Следующий этап — учет размерной зависимости энергии Ферми. Для этого аналогично тому, как это сделано в [25], мы используем разложение по малому параметру $\alpha \equiv \pi/(Lk_0)$ по отношению к корням уравнения (17) и энергии Ферми ε_F .

Для учета только первой поправки на конечную глубину потенциального ящика в разложении для корней уравнения (17) можно ограничиться двумя членами

$$k_{xm}/k_0 = m\alpha - 2m\alpha^2/\pi. \quad (25)$$

В правой части первый из них — решение для бесконечно глубокого ящика, второй — малая поправка. После подстановки (25) в формулу для энергии Ферми тонкой пленки

$$\frac{\varepsilon_F}{|U_0|} = \frac{k_F^2}{k_0^2} = \frac{1}{m_F} \left(\frac{\nu}{2\pi} \alpha^{-1} + \sum_{m=1}^{m_F} \frac{k_{xm}^2}{k_0^2} \right),$$

последующего отбрасывания членов более высокого порядка малости и суммирования получено выражение

$$\frac{k_F^2}{k_0^2} = \frac{\nu}{2\pi m_F \alpha} + \frac{1}{6} (2m_F^2 + 3m_F + 1) \left(1 - \frac{4}{\pi} \alpha \right) \alpha^2, \quad (26)$$

где $\nu \equiv (4\pi^3/k_0^3)(N/\Omega)$. Таким образом, энергия Ферми зависит от толщины пленки не только напрямую через малый параметр α , но и косвенно посредством числа заполненных (полностью или частично) подзон m_F . Заметим, что соответствующий результат для бесконечно глубокого потенциального ящика отличается от формулы (26) тем, что в этом случае отсутствует множитель $(1 - 4\alpha/\pi)$ в правой части.

Определим число заполненных подзон m_F для заданной толщины пленки L . Минимальное возможное число заполненных подзон — единица — не реализуется вовсе, так как соответствующие величины L слишком малы и не имеют физического смысла. Можно показать, что при увеличении L (уменьшении α) число заполненных подзон увеличивается на единицу $m \rightarrow m + 1$, когда достигается значение α_{m+1} , являющееся подходящим корнем уравнения

$$\alpha_{m+1}^4 - \frac{\pi}{4} \alpha_{m+1}^3 + \frac{\nu}{8m(m+1)(2m/3 + 5/6)} = 0.$$

Грубая оценка для этого корня дает

$$\alpha_{m+1} \approx \alpha_{m+1}^{(1)} = \left\{ \frac{\nu}{2\pi m(m+1)(2m/3 + 5/6)} \right\}^{1/3}.$$

Ее можно улучшить путем последовательных приближений

$$\alpha_{m+1} = \alpha_{m+1}^{(1)} + \frac{4}{3\pi} (\alpha_{m+1}^{(1)})^2 + \frac{64}{9\pi^2} (\alpha_{m+1}^{(1)})^3 + \dots$$

В интервалах (α_m, α_{m+1}) , $m = 2, 3, \dots$ число заполненных подзон имеет постоянное значение, равное m , поэтому для его определения при заданной толщине пленки нужно лишь определить интервал, в который попадает соответствующее значение α .

Диэлектрическая функция рассчитывалась по формулам (23) и (24), в которых число заполненных подзон m_F определялось в результате приведенной выше

процедуры. Величины k_{xm} и k_F рассчитывались по формулам (25) и (26) соответственно. В работе [18] были использованы значение энергии Ферми для бесконечного металла ε_F^0 и формула для числа заполненных подзон, которая дает правильный результат только при достаточно большой толщине пленки. При $|U_0| \rightarrow \infty$, $\alpha \rightarrow 0$, $m_F \rightarrow k_F^0 L/\pi$, где $\hbar k_F^0 \equiv \sqrt{2m_e \varepsilon_F^0}$, формулы (23) и (24) переходят в соответствующие формулы (68) из [18].

Коэффициент поглощения определяется соотношением

$$\eta(\omega) = \frac{2\omega}{c} \text{Im} \{ \epsilon(\omega) \}^{1/2}. \quad (27)$$

Он может быть рассчитан при помощи формул (11) и (12) для действительной и мнимой частей диэлектрической функции

$$\eta = \frac{2\omega}{c} \sqrt{\frac{-\text{Re} \epsilon + \sqrt{(\text{Re} \epsilon)^2 + (\text{Im} \epsilon)^2}}{2}}. \quad (28)$$

Особенностью оптических характеристик тонких пленок является наличие пиков, связанных с оптическими переходами между подзонами. Размерный эффект проявляется в изменении количества пиков, их положения и расстояния между ними.

Положение пиков определяется приближенной формулой $\hbar\omega_{mm'} \approx \hbar\omega_c |m'^2 - m^2|$, где m и m' — номера подзон, между которыми происходит переход, $\omega_c \equiv \hbar\pi^2/(2m_e L^2)$. Интересующий нас интервал частот лежит в ИК- и видимой областях спектра. Его нижняя граница соответствует началу оптических переходов между подзонами 1 и 2 (ω_{12}). Верхним пределом интервала частот является W/\hbar , где W — работа выхода электронов из пленки. Для оценки можно использовать значение работы выхода для Au, Ag и Cu в бесконечном металле $W_0 \approx 4$ eV.

4. Результаты вычислений и их обсуждение

На рис. 1 представлены результаты расчета мнимой части диэлектрической функции для пленок Al толщиной 1, 2 и 5.8 nm. Для $L = 1$ nm хорошо заметен пик $\hbar\omega_{12} \approx 0.9$ eV, соответствующий нижней границе интервала частот. При толщине пленки 1 или 2 nm проявляют себя только переходы между подзонами с номерами $m, m' \leq m_F$. В тонких пленках число подзон, заполненных электронами полностью или частично, невелико и составляет $m_F \approx 2L/\lambda_F^0$, поэтому и число пиков невелико. Расстояние между любыми двумя соседними пиками одинаково и примерно равно $2\hbar\omega_c$. С увеличением толщины пленки L все пики смещаются влево, расстояние между ними уменьшается и пики начинают сливаться друг с другом.

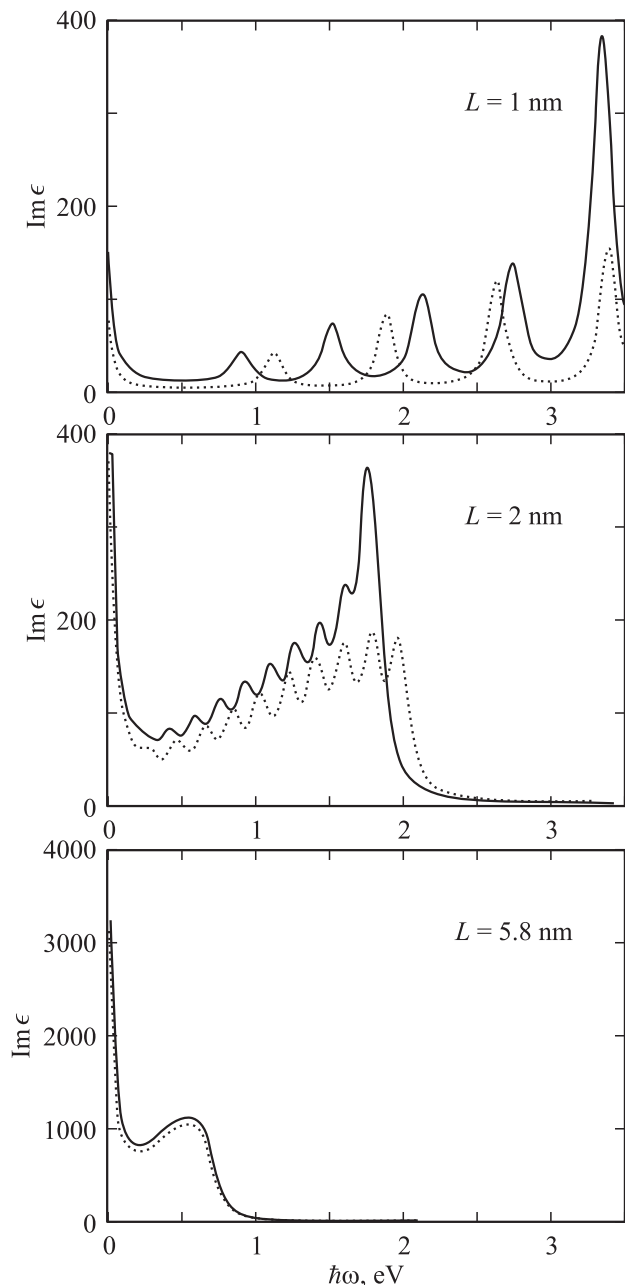


Рис. 1. Частотные зависимости мнимой части диэлектрической функции пленок Al разной толщины, рассчитанные по формуле (24) (сплошные линии). Пунктирные кривые — расчет по формулам (68) из работы [18].

Перекрывание пиков становится значительным, когда расстояние между ними сравнивается с их шириной. Ширина пиков определяется механизмами диссипации и примерно равна $2\hbar/\tau$. В тонких пленках основным механизмом диссипации является рассеяние электронов на поверхности. В таком случае $\tau \cong L/v_F$, где $v_F = \sqrt{2\varepsilon_F/m_e}$ — скорость электронов на поверхности Ферми. Для оценки используем значение $\varepsilon_F^0 \approx 11$ eV (для Al), тогда для пленки толщиной $L = 2$ nm получаем $\tau \approx 3 \cdot 10^{-15}$ s (для сравнения $\tau^0 = 8 \cdot 10^{-15}$ s в массив-

ных образцах Al [27]). Отметим, что результаты наших расчетов оказались малочувствительными к изменению значения τ в пределах порядка величины.

На рис. 1 видно, что при $L = 2$ nm слияние пиков намного сильнее, чем в случае $L = 1$ nm, однако пики все еще отчетливо различимы. При толщине пленки $L = 5.8$ nm (это та минимальная толщина, для которой сделан расчет в [18]) пики вообще исчезают.

Слева от максимума функции $\text{Im } \epsilon(\omega)$ расположены пики, соответствующие переходам между соседними

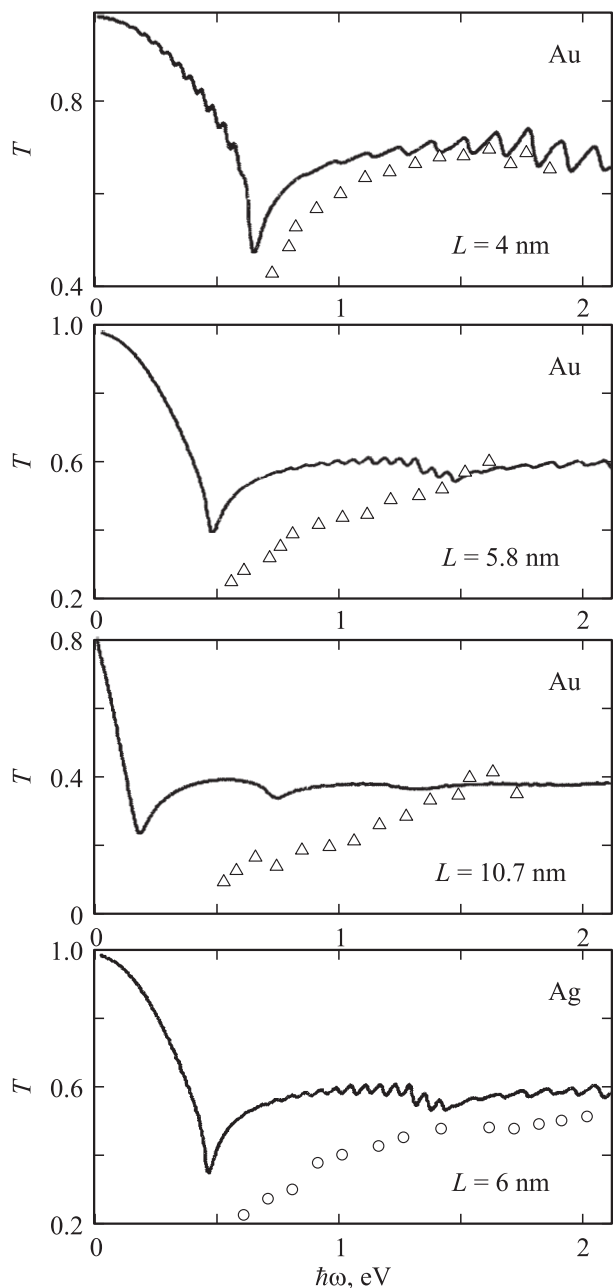


Рис. 2. Частотные зависимости коэффициента пропускания пленок Au и Ag разной толщины, рассчитанные по формулам (28) и (29) (сплошные линии). Экспериментальные данные для пленок Au и Ag (треугольники и кружки) взяты из работ [5] и [4] соответственно.

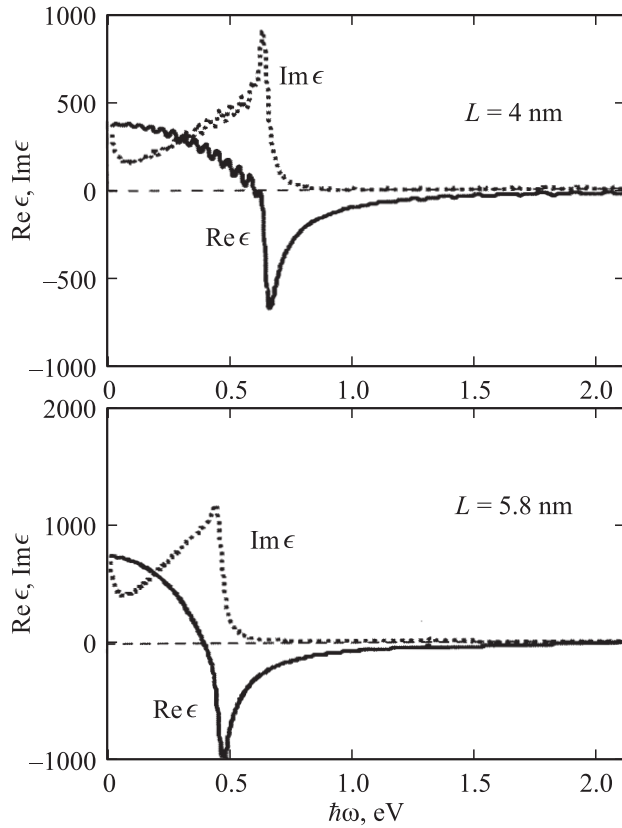


Рис. 3. Частотные зависимости действительной и мнимой частей диэлектрической функции пленок Au, рассчитанные по формулам (23) и (24).

подзонами m' и $m = m' - 1$. Их высота растет пропорционально ω вплоть до максимального значения, которое достигается на частоте $\omega_{\max} \approx \omega_c(2m_F - 1)$. Эта частота соответствует переходу между подзонами $m = m_F - 1$ и $m' = m_F$. Для $\omega > \omega_{\max}$ функция $\text{Im } \epsilon(\omega)$ быстро убывает.

Рис. 1 демонстрирует, что с уменьшением толщины пленки расхождение между результатами расчетов по формуле (24) и результатами теории [18] возрастает и становится весьма значительным. Причины такого расхождения состоят в том, что при выводе (24) учтена зависимость уровня Ферми от толщины пленки $k_F(L)$, а также точно подсчитывается число заполненных подзон m_F . Способ подсчета m_F в [18] дает погрешность ± 1 , что для пленок с $L \approx \lambda_F$ приводит к потере ряда эффектов.

На рис. 2 приведены расчетные частотные зависимости коэффициента пропускания тонких пленок Au и Ag разной толщины в сравнении с экспериментальными данными [4,5]. Коэффициент пропускания рассчитывался по формуле

$$T \equiv I/I_0 = \exp(-\eta L), \quad (29)$$

где I_0 и I — интенсивности волны до и после прохождения. Коэффициент поглощения η определяется функциями $\text{Im } \epsilon(\omega)$ и $\text{Re } \epsilon(\omega)$ в соответствии с (28). Эти функции ведут себя по-разному при изменении частоты (рис. 3).

В отличие от $\text{Im } \epsilon(\omega)$ функция $\text{Re } \epsilon(\omega)$ имеет не только ярко выраженные резонансные максимумы, но и минимумы, которые отображаются обращенными пиками. Высота и тех и других вначале увеличивается с ростом частоты, так что в конце концов один из обращенных пиков пересекает ось абсцисс и $\text{Re } \epsilon(\omega)$ становится отрицательной (в отличие от $\text{Im } \epsilon(\omega)$, которая всегда положительна по знаку). Минимальное значение коэффициента пропускания следует отождествить с минимумом $\text{Re } \epsilon(\omega)$, который достигается в окрестности точки $\omega_{\max} = \omega_c(2m_F - 1)$.

На частотах $\omega \geq \omega_{\min}$ коэффициент поглощения определяется исключительно действительной частью диэлектрической функции: $\eta \approx (2\omega/c)\sqrt{|\text{Re } \epsilon|}$. Легко проверить, что с ростом частоты коэффициент поглощения стремится к некоторому постоянному значению. Такую же тенденцию имеет коэффициент пропускания T . Это хорошо заметно на рис. 2. На фоне монотонного подъема отчетливо различаются пики, связанные с переходами между удаленными подзонами. Так, переход $m_F - 3 \rightarrow m_F$ наблюдается при $\hbar\omega \approx 1.7$ eV. Интересно, что такие пики отсутствуют на рис. 3. Экспонента в (29) является своеобразным „усилителем“ небольших вариаций $\text{Re } \epsilon(\omega)$, связанных с этими пиками.

Изготовленные нанометровые пленки весьма неоднородны по толщине, и поэтому экспериментальные данные по таким пленкам являются результатом усреднения в некотором интервале значений толщины [17]. При усреднении пики сглаживаются и теряются. Согласие между расчетными и экспериментальными кривыми на рис. 2 можно признать удовлетворительным.

Попытки воспроизвести экспериментальные зависимости $T(\omega)$ для пленок Pb и Au в области частот $(100, 500) \text{ cm}^{-1}$ (см. рис. 1 в [11]), а также $T(L)$ пленок Pb (рис. 2 и 3 в [17]) на частоте 1000 и 5000 cm^{-1} дали минорный результат. Расчетные значения в 2–3 раза превысили измеренные величины. По-видимому, в условиях этих экспериментов излучение направляли на пленку перпендикулярно поверхности. В таком случае оптические переходы между подзонами размерного квантования становятся несущественными и определяющими являются механизмы поглощения, которые описываются теорией Друде и в настоящей работе не рассматриваются.

5. Заключение

В настоящей работе при предположении о квазиоднородности металлической пленки исследован ее диагональный отклик на падающую электромагнитную волну. С учетом размерной зависимости энергии Ферми получена формула для диэлектрической функции ограниченного металлического образца в форме параллелепипеда, одна из сторон которого намного меньше остальных и по порядку величины равна фермиевской длине волны электрона. Предложена процедура подсчета числа полностью или частично заполненных подзон,

которыми определяются характеристики ультратонких пленок. Рассчитан коэффициент пропускания в ближнем ИК-диапазоне пленок Au и Ag и обнаружено удовлетворительное согласие с экспериментами. Обсуждаются причины расхождения расчетов с измерениями для пленок Pb в дальнем ИК-диапазоне.

Список литературы

- [1] Ю.Ф. Комник. Физика металлических пленок. Размерные и структурные эффекты. Атомиздат, М. (1979). 264 с.
- [2] В.В. Погосов. Введение в физику зарядовых и размерных эффектов. Поверхность, кластеры, низкоразмерные системы. Физматлит, М. (2006). 328 с.
- [3] В.В. Погосов, Е.В. Васютин, В.П. Курбацкий, А.В. Коротун. *ФТТ* **48**, 1849 (2006).
- [4] J.P. Gasparini, R. Fraisse. *Thin Solid Films* **30**, 11 (1975).
- [5] J. Dryzek, A. Czapla. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 721 (1987).
- [6] J.E. Ortega, F.J. Himpsel. *Phys. Rev. B* **47**, 16441 (1993).
- [7] D.A. Evans, M. Alonso, R. Cimino, K. Horn. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3483 (1993).
- [8] Г.М. Михайлов, И.Г. Маликов, А.В. Черных. *Письма в ЖЭТФ* **66**, 693 (1997).
- [9] P.F. Henning, C.C. Homes, S. Maslov, G.L. Carr, D.N. Basov, B. Nolić, M. Strongin. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4880 (1999).
- [10] G. Fahsold, A. Bartel, O. Krauth, N. Magg, A. Pucci. *Phys. Rev. B* **61**, 14108 (2000).
- [11] J.J. Tu, C.C. Homes, M. Strongin. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 017402 (2003).
- [12] G. Fahsold, A. Priebe, N. Magg, A. Pucci. *Thin Solid Films* **428**, 107 (2003).
- [13] N. Bonod, S. Enoch, L. Li, E. Popov, M. Neviere. *Opt. Express* **11**, 482 (2003).
- [14] I. Vilfan, H. Phür. *Eur. Phys. J. B* **36**, 281 (2003).
- [15] А.П. Болтаев, Н.А. Пенин, А.О. Погосов, Ф.А. Пудонин. *ЖЭТФ* **123**, 1067 (2003); **126**, 954 (2004).
- [16] S. Ding, X. Wang, D.J. Chen, Q.Q. Wang. *Opt. Express* **14**, 1541 (2006).
- [17] A. Pucci, F. Kost, G. Fahsold, M. Jalochowski. *Phys. Rev. B* **74**, 125428 (2006).
- [18] D.M. Wood, N.W. Ashcroft. *Phys. Rev. B* **25**, 6255 (1982).
- [19] N. Trivedi, N.W. Ashcroft. *Phys. Rev. B* **38**, 12298 (1988).
- [20] G. Fishman, D. Calecki. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1302 (1989); *Phys. Rev. B* **43**, 11581 (1991).
- [21] I.V. Ponomarev, A.E. Meyerovich. *Phys. Rev. B* **65**, 155413 (2002).
- [22] Y. Cheng, A.E. Meyerovich. *Phys. Rev. B* **73**, 085404 (2006).
- [23] Л.В. Дехтярук, И.М. Пазуха, С.И. Проценко, И.В. Чешко. *ФТТ* **48**, 1729 (2006).
- [24] Л.И. Коровин, И.Г. Ланг, С.Т. Павлов. *ФТТ* **48**, 2208 (2006).
- [25] V.V. Pogosov, V.P. Kurbatsky, E.V. Vasutin. *Phys. Rev. B* **71**, 195410 (2005).
- [26] N.D. Mermin. *Phys. Rev. B* **1**, 2362 (1970).
- [27] Н. Ашкрофт, Н. Мермин. *Физика твердого тела*. Мир, М. (1979). Т. 1. С. 25.