

ПЛАЗМОН-ФОНОННЫЙ РЕЗОНАНС В ТИТАНАТЕ СТРОНЦИЯ

М. С. Козырева

Рассмотрено взаимодействие продольных оптических фононов и продольных колебаний свободных носителей заряда (плазменных колебаний) в проводящих образцах титаната стронция. Произведен расчет частоты плазменных колебаний с учетом этого взаимодействия. Данные расчета удовлетворительно согласуются с экспериментом.

В случае, когда частота продольных оптических фононов ω_L в кристалле близка по порядку величины к частоте продольных колебаний свободных носителей заряда ω_p (плазменной частоте), вследствие взаимодействия этих двух видов продольных колебаний в кристалле возникают смешанные плазмон-фононные колебания. Особенно заметно они проявляются в полярных кристаллах, когда при сильной поляризации ионной кристаллической решетки вклады продольных фононов $\hbar\omega_L$ и продольных колебаний свободных носителей заряда $\hbar\omega_p$ могут быть соизмеримы в дисперсионном соотношении диэлектрической проницаемости ϵ .

Дисперсионное соотношение диэлектрической проницаемости для кристалла с кубической симметрией и одной продольной $\hbar\omega_L$ и поперечной $\hbar\omega_t$ оптическими модами колебаний без учета явлений затухания будет иметь вид в длинноволновом приближении ($q \rightarrow 0$)

$$\epsilon(\omega, 0) = \epsilon_\infty \left[1 + \frac{\omega_p^2}{\omega^2} + \frac{(\epsilon_s/\epsilon_\infty - 1)\omega_t^2}{\omega_L^2 - \omega^2} \right], \quad (1)$$

где $\omega_p^2 = e^2 N / m^* \epsilon_\infty / \epsilon_0$, $\epsilon_s / \epsilon_\infty = \omega_L^2 / \omega_t^2$, ϵ_s и ϵ_∞ статическая и оптическая диэлектрические проницаемости, ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, e — заряд электрона, m^* — эффективная масса, N — концентрация свободных носителей заряда.

Положение смешанных плазмон-фононных мод определяется из условия обращения в нуль диэлектрической проницаемости кристалла $\epsilon(\omega, q) = 0$, т. е. из уравнения

$$1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} + \frac{\omega_L^2 - \omega_t^2}{\omega_L^2 - \omega^2} = 0. \quad (2)$$

Частоты смешанных плазмон-фононных мод определяются двумя корнями этого уравнения

$$2\omega_{\pm}^2 = \omega_p^2 + \omega_L^2 \pm [(\omega_p^2 + \omega_L^2)^2 - 4\omega_p^2\omega_t^2]^{1/2}. \quad (3)$$

Эти частоты при постоянных ω_t и ω_L в кристалле должны зависеть от ω_p^2 , т. е. от концентрации свободных носителей заряда. Плазменная частота для различных образцов с разной концентрацией свободных носителей заряда определялась из спектров отражения. Спектры отражения были измерены в области $60-5000 \text{ см}^{-1}$ на спектрофотометрах UR-20 и Fis-3 и приведены на рис. 1 и 2. Используя соотношения Кра-

мерса—Крони́га, спектры отражения были математически обработаны на ЭЦВМ и получена дисперсия действительной ϵ' и мнимой ϵ'' частей диэлектрической проницаемости (рис. 2). В области $1000\text{--}5000\text{ см}^{-1}$ в частотном ходе ϵ' и ϵ'' не наблюдалось никаких особенностей. Значения ϵ' и ϵ'' в этой области малы и слабо зависели от частоты. В области $60\text{--}700\text{ см}^{-1}$ наблюдалась значительная дисперсия ϵ' и ϵ'' . Значения ϵ'' резко возрастали в длинноволновой области. Наиболее сильные изменения в спектрах отражения проводящих образцов происходили около самой высокочастотной продольной моды ($\omega_L=750\text{ см}^{-1}$), что свидетельствовало о наличии сильного взаимодействия между продольными колебаниями решетки и плазменными колебаниями свободных носителей за

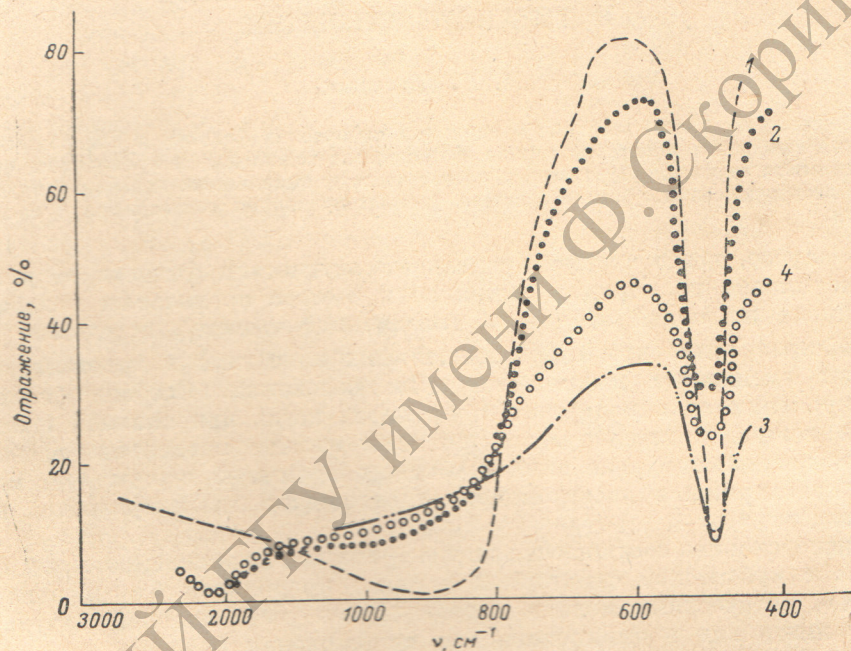


Рис. 1. Спектры отражения монокристаллических образцов титанатов стронция.

1 — стехиометрический, 2 — легированный 0.2 ат.% Nb ($N=2.5 \cdot 10^{19}\text{ см}^{-3}$), 3 — легированный 1.0 ат.% Ce ($N=2.0 \cdot 10^{20}\text{ см}^{-3}$), 4 — легированный 0.8 ат.% La ($N=1.4 \cdot 10^{20}\text{ см}^{-3}$).

ряда. С ростом концентрации свободных носителей заряда в области металлического отражения коэффициент отражения уменьшался, высокочастотный край полосы металлического отражения постепенно сглаживался, и значения коэффициента отражения в минимуме постепенно увеличивались. Полученные резкие изменения в спектрах отражения проводящих образцов коррелировали с концентрацией свободных носителей заряда, что согласуется с данными [1], полученными для проводящих образцов титаната бария.

Для доказательства существенного влияния свободных носителей заряда на спектр отражения в этой области была рассчитана дисперсия мнимой части диэлектрической проницаемости ϵ'' для одного из исследуемых образцов титаната стронция. Так как свободные носители заряда и поперечные оптические колебания дают независимые вклады в дисперсионное соотношение (1), то расчет ϵ'' производился с учетом первых двух слагаемых в (1), т. е. с учетом только вклада свободных носителей заряда. В реальных кристаллах существует сильное затухание колебаний вследствие неупругих столкновений свободных носителей заряда, ко-

торое заметно изменяет спектр отражения реальных кристаллов, поэтому расчет ϵ'' был произведен с учетом затухания по формуле

$$\epsilon(\omega, 0) = \epsilon_{\infty} \left[1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i \frac{\omega}{\tau}} \right]. \quad (4)$$

Фактор затухания τ определялся из значений подвижности на постоянном токе. Подвижность в этих проводящих образцах была равна $\mu = 5-7 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ [2]. Значение эффективной массы в этих образцах было определено нами из эффекта Фарадея [3]. Эффективная масса для образца SrTiO_3 с концентрацией свободных носителей заряда ($N = 9.9 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$) была равна $m^* = 1.5 m_0$. Рассчитанные значения $\epsilon''(\omega)$ для образца SrTiO_3 с $N = 9.9 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ представлены на рис. 2. Из рис. 2 видно, что без учета поперечных оптических мод расчетная кривая $\epsilon''(\omega)$ удовлетворительно совпадает с кривой, полученной на основе экспериментальных данных. Поскольку полученные изменения в этой области коррелировали с концентрацией свободных носителей заряда и по своей частотной зависимости спектры отражения были характерны для плазменного отражения (при временах релаксации τ , сравнимых по величине с $1/\omega_p$), то из спектров отражения можно было определить ω_p . Плазменная частота определялась по точке начала резкого спада металлического отражения в коротковолновой области, а именно по частоте, при которой $dR/d\omega = \text{max}$. Полученная таким образом ω_p и ее концентрационная зависимость для SrTiO_3 приведена на рис. 3. Из рис. 3 видно, что ω_p^2 линейно возрастала с увеличением концентрации свободных носителей заряда. Плазменная частота с увеличением концентрации свободных носителей заряда, как и следовало ожидать, смещалась в коротковолновую область.

Более размытый характер спектров отражения в области плазменного резонанса объясняется сильным взаимодействием частоты продольных оптических фононов с плазменной частотой. Расчет частоты плазменных колебаний с учетом этого взаимодействия приводит к появлению двух ветвей частот ω_+ и ω_- , которые для SrTiO_3 приведены на рис. 4 в зависимости от концентрации свободных носителей заряда. Из рис. 4 видно, что при малых N , т. е. при $\omega_p^2 < \omega_L^2$ высокочастотная ветвь ω_+ определяется в основном продольными оптическими модами $\omega_+^2 = \omega_L^2$, а низкочастотная ветвь ω_- соответствует плазменным колебаниям $\omega_-^2 = \omega_p^2 \frac{\epsilon_{\infty}}{\epsilon_s}$.

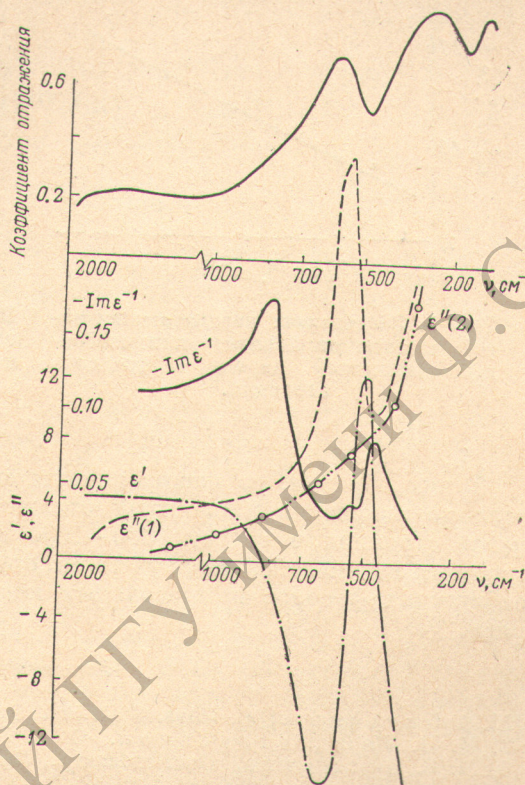


Рис. 2. Спектры отражения и дисперсия действительной ϵ' и мнимой ϵ'' частей диэлектрической проницаемости для восстановленного в H_2 образца титаната стронция ($N = 9 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$). 1 — экспериментальная ϵ'' , 2 — рассчитанная по (4).

В области высоких концентраций свободных носителей ω_+ ветвь имеет в основном плазменный характер, а низкочастотная ветвь соответствует поперечным оптическим фононам и $\omega_-^2 = \omega_L^2$.

В области частот между ω_L и ω_i находится полоса запрещенных частот, в которой электромагнитные волны не поглощаются веществом, а полностью от него отражаются (это так называемая область металлического отражения).

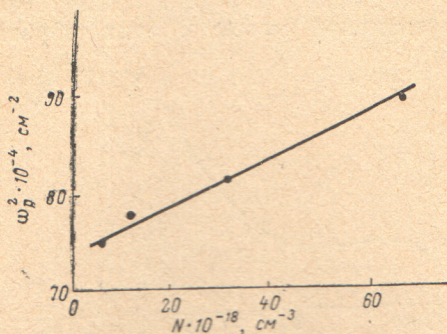


Рис. 3. Зависимость квадрата плазменной частоты от концентрации свободных носителей заряда в титанате стронция.

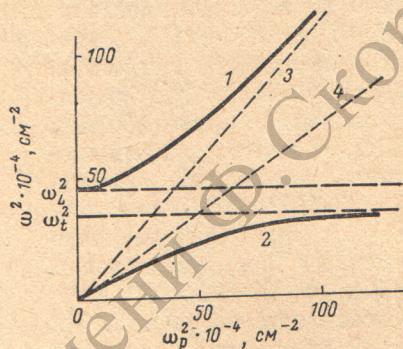


Рис. 4. Зависимость квадратов частот плазмон-фононного резонанса от концентрации свободных носителей заряда.

1 — ω_+^2 , 2 — ω_-^2 , 3 — $\omega = \omega_p^2$, 4 — $\omega^2 = \omega_L^2 \frac{\omega_p^2}{p}$.

Таким образом, из наших данных следует, что наблюдаемые значительные изменения в спектрах отражения проводящих образцов титанатов стронция в области $300-1000 \text{ cm}^{-1}$ можно объяснить влиянием сильного взаимодействия двух типов продольных колебаний: продольных оптических фононов и продольных колебаний свободных носителей заряда.

Литература

- [1] P. Gerthen et al. Phys. Stat. Sol., 11, 303, 1965.
- [2] М. В. Рождественская. ФТТ, 12, 873, 1970.
- [3] М. С. Козырева. Опт. и спектр., 39, 525, 1975.

Поступило в Редакцию 6 июля 1976 г.