

съемки малоугловых дифракционных эффектов, учете атомного и углового факторов рассеяния рентгеновских лучей отношение интенсивностей наблюдавшихся отражений дает однозначные количественные данные относительной доли доменов определенной толщины.

Эксперименты показали, что в исследованных кристаллах сернистого цинка домены толщиной 20—50 Å существуют примерно в одинаковом количестве. Наблюдается заметное уменьшение интенсивности рассеянного рентгеновского излучения от доменов толщиной более 50 Å.

Известно, что домены полисинтетических кристаллов ZnSe и пластически деформированных на 2—5 % кристаллов ZnS имеют сравнительно большую толщину, не приводящую к уширению рентгеновских рефлексов вдоль [111] [2]. Поэтому, как и следовало ожидать, при съемках таких кристаллов дискретное МУР не наблюдалось.

Таким образом, в прямом рентгеновском эксперименте получилось дискретное рассеяние рентгеновских лучей от доменов, имеющих заданные размеры. Этот основной результат настоящей работы показывает перспективность МУР при исследовании микроскопических структурных доменов, когда их размеры составляют несколько десятков ангстрем, а также длинно-периодных политипов, встречающихся в различных кристаллических материалах.

Л и т е р а т у р а

- [1] Абдикамалов Б. А., Кулаков М. П., Шехтман В. Ш., Шмурак С. З. ФТТ, 1975, т. 17, № 11, с. 3463—3466.
[2] Абдикамалов Б. А., Аметов К. К., Исмаилова К. Х. Вестник Каракалпакского филиала АН УзССР, 1983, № 3, с. 15—18.

Нукусский государственный
университет им. Т. Г. Шевченко
Нукус

Поступило в Редакцию
14 июля 1987 г.
В окончательной редакции
9 ноября 1987 г.

УДК 535.37

Физика твердого тела, том 30, в. 6, 1988
Solid State Physics, vol. 30, № 6, 1988

ПЛАЗМЕННЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ УЛЬТРАДИСПЕРСНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ЧАСТИЦ НАТРИЯ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ СРЕДЕ

М. М. Герман, В. Я. Купершмидт, О. В. Фарберович

В последние годы большой интерес вызывают исследования, относящиеся к изучению оптических свойств ультрадисперсных сред, содержащих кластеры металлических частиц с характерными размерами от 1 до 100 нм [1, 2]. Подобные ансамбли обнаруживают значительные аномалии физических свойств, связанные с проявлением как квантовых, так и размерных эффектов.

Так, в [3-5] в квазиклассическом приближении изучались оптические характеристики малых металлических частиц ММЧ, имеющих профиль электронной плотности в виде распределения с резким краем [3] в лэнгковский потенциал основного состояния [4, 5]. В [6, 7], в рамках теории функционала локальной плотности также получено большое число результатов, относящихся к строению электронной структуры и ее влиянию на оптические свойства ММЧ.

В настоящем сообщении приводятся новые результаты, связанные с влиянием диэлектрической среды на плазменные резонансы (поверхностные и объемные) в сечении фотопоглощения для металлических частиц

натрия, находящихся в кварцевом стекле $\epsilon=2.13$ и щелочно-галлоидных кристаллах $\epsilon=7.28$. В последних, в частности, ультрадисперсные частицы возникают под действием УФ и рентгеновского излучения [1].

Сечение фотопоглощения рассчитывалось в модели желе [6, 7] с учетом поляризационных зарядов, индуцированных на поверхности частицы

$$\sigma(\omega) = \frac{-16\pi^2\omega}{3c} \int_0^\infty r^3 \operatorname{Im} \delta n(r|\omega) dr. \quad (1)$$

Здесь ω — частота излучения, $\delta n(r|\omega)$ — индуцированная плотность, связанная с самосогласованным индуцированным полем системой уравнений

$$\left. \begin{aligned} \delta n(r|\omega) &= 2 \int \chi_0(r, r'|\omega) \delta V(r'|\omega) dr', \\ \delta V(r|\omega) &= \begin{cases} \delta V^e(r|\omega) + \frac{1-\epsilon}{1+2\epsilon} \frac{2R}{r} \delta V^s(R|\omega), & r \leq R, \\ \frac{\delta V^e(r|\omega)}{\epsilon} - \frac{1-\epsilon}{\epsilon(1+2\epsilon)} \frac{R^2}{r^2} \delta V^s(R|\omega), & r \geq R, \end{cases} \\ \delta V^e(r|\omega) &= rE + \frac{1}{2\pi} \int \frac{\delta n(r'|\omega) dr' d\Omega}{|r-r'|} + \frac{\partial V_{xc}}{\partial n_0} \delta n(r|\omega). \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Здесь E — амплитуда внешнего поля, V_{xc} — локальный обменно-корреляционный потенциал в параметризации Воско [8], $X_0(r, r'|\omega)$ — поляризационный оператор невзаимодействующих электронов, который можно найти, зная волновые функции и функцию Грина основного состояния ММЧ, описываемого ковалентными уравнениями [6]. Функция Грина искалась в стандартной технике «больше», «меньше» [9]. В уравнениях (2) угловые зависимости $\delta n(r|\omega)$, $\delta V(r|\omega) \sim \cos \Theta$, где Θ — угол между векторами r и E . Потенциал δV^e неявным образом зависит от ϵ через волновые функции основного состояния. В такой модели вклад в сечение фотопоглощения дают переходы электронов в непрерывный спектр, в частности, ширины поверхностного и объемного плазменных резонансов обусловлены электрон-дырочными возбуждениями.

На рис. 1 представлены результаты расчетов поверхностного плазменного резонанса в сечении фотопоглощения ММЧ натрия $r_s=3.98$ в щелочно-галлоидном кристалле, содержащей различное число электронов $N=8, 34, 40$. Во всех случаях в оптически плотной среде резонансная частота испытывает голубое смещение от классической частоты $\omega_s=3\omega_{s0}/(1+2\epsilon)$ (где ω_{s0} — частота поверхностного плазмона в вакууме), увеличивающееся с ростом числа частиц. Также увеличивается ширина Γ_s резонанса и соответственно падает его амплитуда. Так, для $N=40$, $1/\Gamma_s \approx 1.3R/v_F$. Отметим, что в вакууме частота ω_s испытывает красный сдвиг, согласующийся с расчетами других авторов [4, 6].

На рис. 2 приведены результаты расчетов объемных плазменных возбуждений для $N=40, 68$ в вакууме и двух диэлектрических средах $\epsilon=2.13$ и $\epsilon=7.28$. Видно, что с увеличением ϵ падают ширина Γ_v и амплитуда объемного плазмона и, напротив, происходит рост амплитуды и уменьшение Γ_v с ростом N . Подчеркнем, что модельные расчеты [3-5] не предсказывали возбуждение объемных плазменных колебаний, появление которых вызвано диффузией электронов в объем частицы. Действительно, можно показать, что в квазиклассическом приближении в области частот возбуждения объемного плазмона $\sigma(\omega)$ имеет вид

$$\sigma(\omega) \sim \int_0^{R-\Delta} \frac{\Gamma_v r^3}{[\omega - \omega_p(r)]^2 + \Gamma_v^2} \frac{\partial n_v}{\partial r} \frac{\partial}{\partial r} \delta V(r|\omega) dr,$$

где $\omega_p^2(r) = 4\pi e^2 n(r)/m$, $n_v(r)$ — объемная плотность ММЧ, $\Delta \approx 5$ ат. ед. — область локализации поверхностной плотности. Из приведенной формулы

следует, что объемный резонанс будет проявляться при условии, что плотность n_p испытывает колебания внутри частиц, амплитуда которых мало меняется на длине неоднородности, в противном случае резонанс будет заинтегрирован. Однако это же условие означает, что амплитуда объемных возбуждений мала по сравнению с поверхностными: $\sigma(\omega_s)/\sigma(\omega_p) \approx \approx 10^{-1} - 100$. С ростом ϵ это отношение будет увеличиваться, поскольку, как показывают расчеты, колебания объемной плотности сглаживаются.

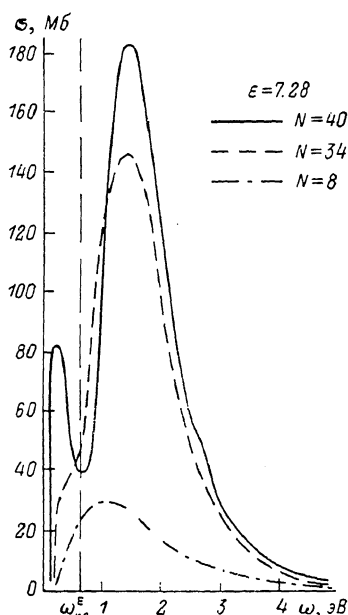


Рис. 1. Поведение $\sigma(\omega)$ в щелочногаллоидном кристалле в области возбуждения поверхностного плазмона.

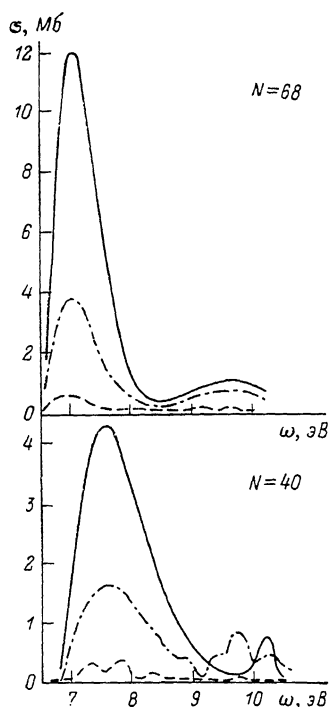


Рис. 2. Объемный плазменный резонанс $\sigma(\omega)$.

Вакуум (сплошные кривые), $\epsilon = 2.13$, (штрихпунктирные), $\epsilon = 7.28$ (штриховые линии).

Выражаем благодарность А. А. Лушникову и участникам руководимого им семинара за полезное обсуждение работы.

Л и т е р а т у р а

- [1] Петров Ю. И. Кластеры и малые частицы. М.: Наука, 1986. 368 с.
- [2] Симонов А. Я. Поверхность. 1986, № 11, с: 5—20.
- [3] Lushnikov A. A., Simonov A. J. Phys. Lett., 1973, vol. 44A, p. 45—46.
- [4] Zarembo E., Persson B. N. J. Phys. Rev., 1987, vol. B35, N 2, p. 596—606.
- [5] Lang N. D., Kohn W. Phys. Rev., 1970, vol. B1, N 12, p. 4555—4568.
- [6] Ekarat W. Phys. Rev., 1985, vol. B31, N 10, p. 6360—6370.
- [7] Ekarat W. Surf. Sci., 1985, N 152/153, p. 180—188.
- [8] Vosko S. H., Wilk L., Nusair M. Can. J. Phys., 1980, vol. 58, N 8, p. 1200—1211.
- [9] Базь А. И., Зельдович Я. Б., Переломов А. М. Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике. М.: Наука, 1971. 544 с.

Воронежский государственный университет им. Ленинского комсомола
Воронеж

Поступило в Редакцию
10 ноября 1987 г.