

Excitación de Plasmones por Dispersión Inelástica de Rayos X

G. Tirao^{1*}, C. Cusatis² y G. Stutz¹

1 Fa.M.A.F., Universidad Nacional de Córdoba, 5000 Córdoba
2 LORXI, Universidade Federal do Paraná, 81531 Curitiba, Brasil
e-mail: german@quechua.fis.uncor.edu

La excitación colectiva de electrones de valencia en Be policristalino fue investigada por medio de espectroscopía por dispersión inelástica de rayos x. Las mediciones se llevaron a cabo en el Laboratorio Nacional de Luz de Sincrotrón (LNLS), en Campinas (Brasil), utilizando un espectrómetro de rayos x de alta resolución. La relación de dispersión de plasmones medida muestra que efectos de intercambio y correlación deben ser tenidos en cuenta en los modelos teóricos de la respuesta dieléctrica de un sistema de electrones. Sólo un tratamiento riguroso de la función dieléctrica predice un coeficiente de dispersión en buen acuerdo con el experimento. En el ancho de línea de plasmones se observó una dispersión mayor a la cuadrática.

Collective excitation of valence electrons in polycrystalline Be was investigated by means of inelastic x-ray scattering spectroscopy. Measurements were carried out at National Synchrotron Light Laboratory (LNLS), in Campinas (Brazil) utilizing a high resolution x-ray spectrometer. The measured plasmon dispersion relation shows that exchange and correlation effects must be taken into account in theoretical models for the dielectric response of an electron system. Only a rigorous treatment of the dielectric function predicts a dispersion coefficient which is in good agreement with the experiment. A dispersion of the plasmon line-width stronger than quadratic was found.

I. INTRODUCCIÓN

Las técnicas espectroscópicas utilizadas en la actualidad para estudiar excitaciones tanto individuales como colectivas de electrones de valencia en la materia condensada, y su dependencia con el vector de onda, están basadas en la dispersión inelástica de electrones (*Electron Energy Loss Spectroscopy* -EELS-)⁽¹⁾ o, más recientemente, fotones de rayos x (*Inelastic X-Ray Scattering Spectroscopy* -IXSS-)⁽²⁾. En un proceso de dispersión inelástica la sonda incidente interactúa con el sistema dispersor transfiriéndole momento q y energía ω . La sección eficaz diferencial de interacción, en primer orden de teoría de perturbaciones, es directamente proporcional al factor de estructura dinámico $S(q, \omega)$ del sistema de electrones dispersores^(1,2). Esta cantidad, a su vez, está relacionada con la función dieléctrica mediante⁽³⁾

$$S(q, \omega) = -\frac{\hbar q^2}{4\pi^2 e^2 \rho_e} \text{Im}(\epsilon^{-1}(q, \omega)) \quad (1)$$

$\text{Im}[\epsilon^{-1}(q, \omega)]$ describe la respuesta de un sistema de electrones de densidad ρ_e a una perturbación externa de frecuencia ω y vector de onda q . Para un dado valor de q , excitaciones electrónicas colectivas (excitación de plasmones) ocurren para aquellos valores de ω para los cuales $\epsilon(q, \omega(q))=0$, manifestándose como un pico pronunciado en el espectro de pérdida de energía⁽³⁾. En ambas técnicas el rango accesible de transferencia de energía y momento es lo suficientemente amplio como para poder investigar experimentalmente la dependencia de la respuesta de los electrones de valencia en la materia condensada con la frecuencia y el vector de onda. IXSS tiene la ventaja adicional que los efectos de dispersión múltiple no son importantes, facilitando la interpretación de los espectros, y por otro lado no es una técnica sensible

a los efectos de superficie, lo que simplifica en gran medida la preparación de las muestras. En este trabajo presentamos un estudio experimental de la excitación de plasmones en Be por medio de la técnica IXSS.

II. EXPERIMENTAL

Se realizaron mediciones de espectros de pérdida de energía de fotones de 6 keV en una muestra de Be policristalino utilizando un espectrómetro de alta resolución instalado en la estación experimental D12A-XRD1 del LNLS⁽⁴⁾. El montaje utilizado en esta oportunidad cuenta además, en comparación con aquel descrito en Ref. 4, con un espejo de rayos x con focalización vertical, previo al monocromador, y con un nuevo cristal analizador que provee un mayor flujo de fotones analizados sobre el detector. La resolución en energía del espectrómetro es de $(1,08 \pm 0,07)$ eV (valor promedio sobre todas las mediciones), y la resolución en momento transferido es 0,016 a.u., aproximadamente constante en todo el rango medido.

III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En el régimen de bajas transferencias de energía y momento, los plasmones constituyen un modo de excitación bien definido para $q < q_c \approx \omega_p/v_F$, siendo ω_p la frecuencia de plasma y v_F la velocidad de Fermi⁽³⁾. Para mayores transferencias de momento ($q > q_c$), la respuesta del sistema de electrones está determinada fundamentalmente por el continuo de posibilidades de excitación de pares electrón-hueco⁽³⁾. Por lo tanto, con el fin de estudiar excitaciones colectivas de los electrones de valencia en Be, las mediciones fueron realizadas para transferencias de momento en el rango de 0,11 a.u. a 0,61 a.u. (para Be es $q_c \approx 0,66$ a.u.). Los distintos valores de q se obtuvieron

* Becario CONICET

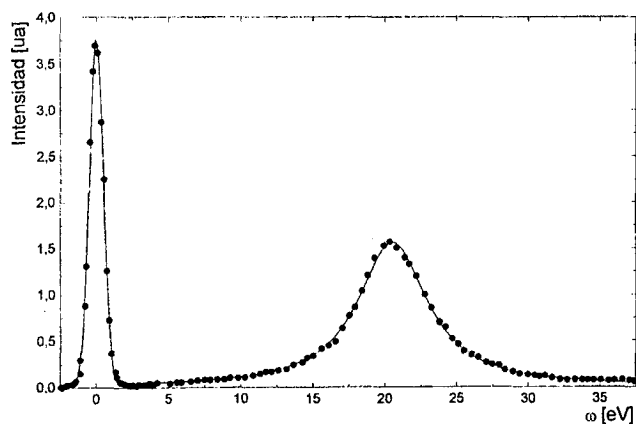


Figura 1. Espectro de pérdida de energía de fotones en Be para $q=0,44 \text{ au}$. El pico en $\omega=0$ corresponde a dispersión elástica y el que aparece en $\omega \sim 20 \text{ eV}$ al pico de plasmones.

modificando el ángulo de dispersión, desde 4° a 22° . Los barridos en energía se lograron variando la energía primaria y manteniendo fija la posición del analizador (energía analizada). Un espectro típico se muestra en la fig. 1.

A. Relación de dispersión de plasmones

En la fig. 2 se muestra la energía de plasmón (posición del pico inelástico en el espectro de pérdida de energía) en función de la magnitud de q . Los puntos representan a los valores medidos y las curvas a distintos modelos teóricos. En la teoría RPA (*random phase approximation*) de un gas de electrones libres y homogéneo la función dieléctrica está representada por la función de Lindhard⁽³⁾. De los ceros de esta función se deriva la dispersión $\omega(q)$ representada por la curva superior en la fig. 2 (línea a trazos). Si bien la energía de plasmón para transferencia de momento nula está muy próxima al valor experimental (curva de ajuste a los datos experimentales extrapolada a $q=0$), la dispersión predicha por RPA es considerablemente mayor que la observada. Esta imposibilidad del modelo RPA de un gas de electrones en describir la relación de dispersión de plasmones ha sido previamente observada en mediciones realizadas con EELS en Be como también en otros metales⁽¹⁾. El paso siguiente consiste en incluir efectos de correlación e intercambio en el modelo teórico. Una manera aproximada de considerar estos efectos fue propuesta por Hubbard⁽⁵⁾ a través del factor de corrección de campo local estático $G(q)$:

$$\epsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 + \frac{\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) - 1}{1 - G(\mathbf{q})(\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) - 1)} \quad (2)$$

siendo $\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega)$ la función dieléctrica de Lindhard.

Un cálculo autoconsistente de $G(\mathbf{q})$, junto a la función dieléctrica y al factor de estructura estático, fue realizado por Vashishta y Singwi⁽⁶⁾. Utilizando esta expresión para la corrección de campo local se obtiene de la ec. 2 la relación de dispersión teórica que se muestra en la fig. 2 (línea de puntos y rayas). Se observa que la inclusión de efectos de intercambio y correlación tiende a disminuir la discrepancia entre las curvas teórica y

experimental, de todos modos el acuerdo no es satisfactorio. Un formalismo teórico diferente, basado en la evaluación de reglas de sumas a partir de la aproximación ERPA (*extended random phase approximation*), fue propuesto por Serra y otros⁽⁷⁾. A partir de esta técnica, en la que también se consideran efectos de intercambio y correlación, ellos calculan límites para la energía de excitación de plasmones. Estas curvas límites (superior e inferior) se muestran en fig. 2 con líneas de puntos. Como se puede ver estas curvas se apartan significativamente una de otra a medida que aumenta el valor de q como para poder acotar con buena precisión la relación de dispersión de plasmones. Además la curva medida está fuera de los límites predichos prácticamente en todo el rango de q . La curva que representa el límite superior se aproxima más a la curva experimental que la inferior, tendencia que ya fue observada por los autores en otros elementos de alta densidad electrónica⁽⁷⁾.

En el límite de longitudes de onda largas, la relación de dispersión puede aproximarse por⁽³⁾

$$\omega(q) \cong \omega(0) + \alpha (\hbar / m) q^2 \quad (3)$$

$\omega(0)$ es la energía de plasma para transferencia de momento nula y α describe la intensidad de la dispersión. Estos parámetros, deducidos de la curva experimental de la fig. 2, determinados a partir de otras mediciones con EELS⁽⁸⁾ y evaluados en distintos modelos teóricos, se muestran en la Tabla 1. El coeficiente de dispersión α es un parámetro muy sensible a los efectos de intercambio y correlación electrónica, de aquí su importancia para evaluar la validez de los distintos formalismos teóricos que predicen modelos para la corrección de campo local. Claramente la inclusión de estos efectos mejora significativamente el acuerdo entre las predicciones teóricas y lo observado experimentalmente (comparar por ejemplo el valor de α predicho por RPA con el de Ref. 6 y con el obtenido en este trabajo). Una teoría más refinada fue desarrollada por Utsumi e Ichimaru⁽⁹⁾. Ellos calcularon el coeficiente de dispersión a partir de un formalismo dieléctrico general de un líquido de electrones fuertemente acoplados.

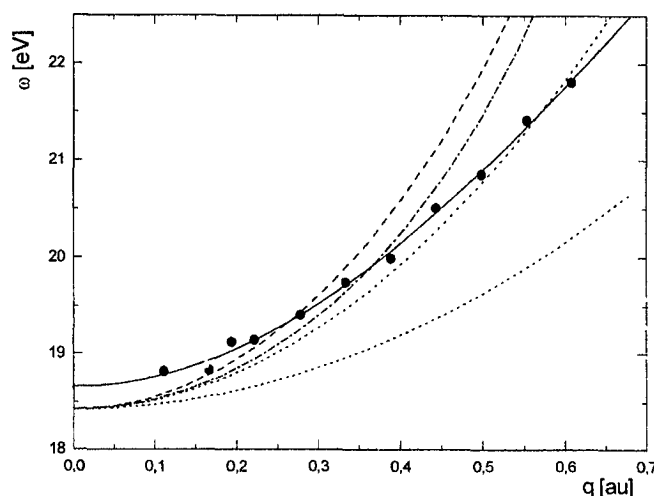


Figura 2. Relación de dispersión de plasmones en Be policristalino. • : puntos experimentales (— : curva de ajuste), --- : RPA (Ref. 3), - - - - : Ref. 6, : Ref. 7.

TABLA I. Valores experimentales y teóricos de $\omega(0)$ y α .

	$\omega(0)$ [eV]	α
Este trabajo (IXSS)	$18,66 \pm 0,05$	$0,37 \pm 0,03$
Ref. 8 (EELS)	$18,8 \pm 0,1$	$0,36 \pm 0,03$
Ref. 3 (RPA)	18,42	0,466
Ref. 6	18,42	0,385
Ref. 9	—	0,368
Ref. 7	18,42	$0,177^a / 0,344^b$

a: curva límite inferior, b: curva límite superior.

Este formalismo considera también tiempos de relajación finitos y dependientes con q . Como se puede ver en la Tabla I, su valor de α está en excelente acuerdo con el determinado experimentalmente en este trabajo. Los coeficientes de dispersión derivados de las curvas límites de Ref. 7 se apartan del valor experimental, fundamentalmente el correspondiente a la curva inferior.

En cuanto a la energía de plasma en el límite $q \rightarrow 0$, ambos valores experimentales están levemente por encima de la energía de plasma clásica $\omega_p = 18,42$ eV. Aquí cabe mencionar que en el formalismo de Ref. 9 se incluye, de manera fenomenológica y sin evaluarlo numéricamente, un tiempo de relajación no nulo a $q=0$. Esto causaría un corrimiento de $\omega(0)$ respecto de ω_p hacia valores menores, apartándose de los valores experimentales. Nuestros valores de $\omega(0)$ y α están en buen acuerdo con aquellos obtenidos mediante EELS⁽⁸⁾.

B. Ancho de línea de plasmones

El ancho total a media altura del pico de plasmones se muestra en la fig. 3 en función de q^2 . Utsumi e Ichimaru⁽⁹⁾ consideraron en su formalismo un tiempo de relajación finito, dependiente de q , introducido por procesos de colisión electrón-electrón. Esto se manifestaría en el espectro de excitación en un ancho medio finito del pico de plasmones con una dispersión de la forma $\Gamma(q) = \beta q^2$. Por un lado observamos que para Be la dispersión medida del ancho de línea no es cuadrática (observar que en la fig. 3 Γ está graficado en función de q^2), y por otro lado el ancho no se anula para $q=0$.

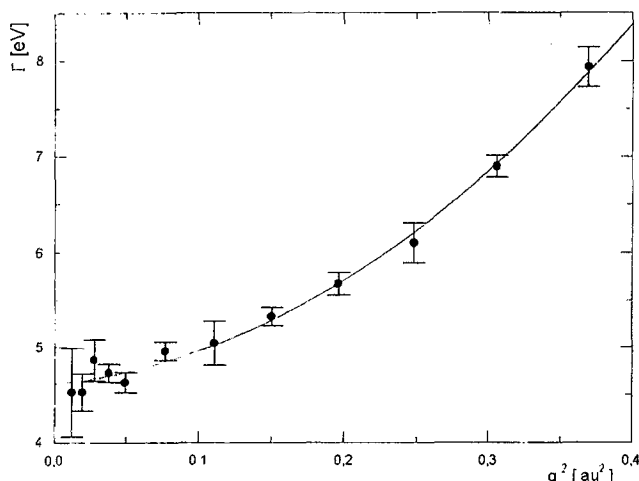


Figura 3. Relación de dispersión del ancho de línea de plasmones en Be policristalino. • : puntos experimentales. (—: curva de ajuste).

Esto último se atribuye a procesos de relajación como transiciones interbandas y colisión de electrones con fonones e impurezas^(9,10). El valor observado del ancho de línea para momento transferido nulo es $\Gamma(0) = (4,60 \pm 0,07)$ eV, en buen acuerdo con los valores medidos mediante EELS⁽¹⁾. De acuerdo a Sturm⁽¹⁰⁾ la principal contribución a $\Gamma(0)$ provendría de las transiciones interbandas, mientras que procesos de colisión electrónica serían los principales responsables de la dispersión del ancho de línea.

IV. CONCLUSIONES

Se llevaron a cabo mediciones de excitación de plasmones en Be policristalino utilizando una técnica experimental moderna basada en la dispersión inelástica de fotones de rayos x con alta resolución en energía. El modelo RPA de un gas de electrones libres y homogéneos sobrestima la dispersión de plasmones observada en Be, de aquí la necesidad de incluir correcciones de campo local en la respuesta dieléctrica. El coeficiente de dispersión calculado a partir de una rigurosa formulación de la respuesta dieléctrica de un líquido de electrones⁽⁹⁾ muestra un excelente acuerdo con el deducido de la curva experimental. Los resultados obtenidos sobre el ancho de la línea de plasmones muestran una dispersión mayor a la cuadrática, predicha por los modelos teóricos. Cálculos de efectos de relajación en el límite $q \rightarrow 0$ serían deseables a fin de poder comparar con los valores medidos.

Agradecimientos

Trabajo financiado por la Secretaría Ciencia y Técnica de la Universidad Nacional de Córdoba, el CONICET y el LNLS (Campinas, Brasil).

Referencias

- 1- Raether, H. "Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons", Springer-Verlag, Berlin (1980).
- 2- Schülke, W. En "Handbook on Synchrotron Radiation", Brown, G.S. y Moncton, D.E., Eds., North-Holland, Amsterdam (1991).
- 3- Pines, D. "Elementary Excitations in Solids", W.A. Benjamin Inc., Nueva York (1964).
- 4- Tirao, G., Cusatis C. y Stutz G. X-Ray Spectrom. **31**, 158 (2002).
- 5- Hubbard, J. Proc. Roy. Soc. (London) A **243**, 336 (1957).
- 6- Vashishta P y Singwi K.S. Phys. Rev. B, **6**, 875 (1972).
- 7- Serra, Ll., Garcias F., Barranco, M., Barberán N. y Navarro J. Phys. Rev. B, **44**, 1492 (1991).
- 8- Dickmann, W., Eickmans J. y Otto A. Z. Phys. B - Condensed Matter **65**, 39 (1986).
- 9- Utsumi K. e Ichimaru, S. Phys. Rev. B, **23**, 3291 (1981).
- 10- Sturm, K. Adv. Phys., **31**, 1 (1982).