

Хемосорбция на квантовой точке

© Р.П. Мейланов, Б.А. Абрамова*

Институт проблем геотермии Дагестанского научного центра Российской академии наук,
367030 Махачкала, Россия

* Дагестанский государственный университет,
367025 Махачкала, Россия

E-mail: lanten50@mail.ru,
tvinform@dinet.ru

(Поступила в Редакцию 6 ноября 2006 г.)

Получены квантовые кинетические уравнения для системы „квантовая точка + адатом“. Показано, что учет взаимодействия квантовой точки с адатомом приводит к увеличению радиуса квантовой точки. Вычислены возмущения электронной плотности квантовой точки и адатома при хемосорбции.

PACS: 72.15.Rn, 73.20.Dx

1. Повышенный интерес к изучению электрон-фоонных свойств квантовых точек, являющихся предельным случаем систем с пониженной размерностью (нульмерные системы), вызван возможностью варьирования их свойств при внешних воздействиях и создания твердотельных структур с управляемыми параметрами [1–5]. В этой связи интерес представляет исследование хемосорбции на квантовой точке. Особенности хемосорбции на размерно-квантованных пленках и на размерно-квантованной нити исследованы в работах [6–10], где показано, что энергия хемосорбции является осциллирующей функцией толщины пленки и нити и связано это с особенностями плотности состояний электронов тонкой пленки и нити. Задача хемосорбции на квантовой точке имеет иные аспекты, чем случай хемосорбции на размерно-квантованных пленках и нитях. В случае квантовой точки влияние на энергетический спектр квантовой точки хемосорбированным атомом становится существенным. Кроме того, для квантовых точек становится важным и учет ферми-жидкостного взаимодействия [3]. Исследование как равновесных, так и неравновесных процессов делает актуальным вывод квантовых кинетических уравнений для системы „квантовая точка + адатом“ с учетом ферми-жидкостного взаимодействия.

В настоящей работе на основе метода квантовых функций Грина–Каданова–Бейма [11], обобщенного на случай пространственно неоднородной системы [8], получен микроскопический вывод квантовых кинетических уравнений для системы „квантовая точка + адатом“. На основе этих уравнений дается обобщение модели Андерсона–Ньюнса на случай системы „квантовая точка + адатом“.

2. Гамильтониан рассматриваемой системы имеет вид $\hat{H} = \hat{h} + \hat{u} + \hat{v}$, где \hat{h} — одночастичный гамильтониан системы „квантовая точка + адсорбат“; \hat{u} — оператор взаимодействия с переменным внешним скалярным полем; v — потенциал межчастичного кулоновского поля. Одночастичный гамильтониан \hat{h} можно представить

в виде

$$\hat{h}(r) = \Theta(R_k - r)\hat{h}_k(r) + \Theta(r - R_k)h_a(r).$$

Здесь R_k — радиус квантовой точки, $\Theta(z)$ — единичная функция Хевисайда.

Отметим, что введение границы между квантовой точкой и взаимодействующим атомом очевидно, когда атом находится на расстояниях $l \gg a$ (a — радиус орбитали электрона атома) от поверхности квантовой точки. Под границей между квантовой точкой и адатомом при $l \approx a$ понимается область скачка потенциала между квантовой точкой и адатомом. Таким образом, допускается, что адатом до известной степени сохраняет свою индивидуальность [12], а квантовая точка достаточно макроскопична. В соответствии с [8] введем следующие неравновесные функции Грина:

$$g(1; 2) = \begin{pmatrix} g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}), & g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}) \\ g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}), & g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}) \end{pmatrix}.$$

Здесь $1 = (\mathbf{r}_1, t_1)$ — совокупность пространственных и временных координат. Введены обозначения: $\overset{\rceil}{1} = (\mathbf{r}_1 < \mathbf{R}_k, t_1)$; $\overset{\rceil}{1} = (\mathbf{r}_1 > \mathbf{R}_k, t_1)$. Таким образом, $g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}), g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2})$ — функции Грина электронов квантовой точки и адатома соответственно, остальные функции Грина описывают процессы обмена электронной плотностью между квантовой точкой и адатомом. Функции Грина определены следующим образом [8,11]:

$$g(\overset{\rceil}{1}; \overset{\rceil}{2}) = -i \langle T [\overset{\rceil}{S}(\psi^+(\overset{\rceil}{1})\psi(\overset{\rceil}{2}))] \rangle / \langle T [\overset{\rceil}{S}] \rangle,$$

$$\overset{\rceil}{S} = \exp \left[-i \int_{t_0}^{t_0 - i\beta} dt_1 \int_0^{R_k} dr_1 \psi^+(\overset{\rceil}{1})u(\overset{\rceil}{1})\psi(\overset{\rceil}{1}) \right].$$

$\langle \dots \rangle$ — термодинамическое усреднение; T — оператор усреднения вдоль оси мнимых времен. Аналогично опре-

деляются и другие функции Грина. Уравнение движения для функции Грина $g(\bar{1}; \bar{2})$, $g(\bar{1}; \bar{2})$ принимает вид

$$\left[i \frac{\partial}{\partial t_1} - \hat{h}_k(\bar{1}) - u(\bar{1}) \right] g(\bar{1}, \bar{2}) - \int_0^{R_k} d3 \sigma(\bar{1}, \bar{3}) g(\bar{3}, \bar{2}) - \int_{R_k}^{\infty} d3 \sigma(\bar{1}, \bar{3}) g(\bar{3}, \bar{2}) = \delta(\bar{1} - \bar{2}), \quad (1)$$

$$\left[i \frac{\partial}{\partial t_1} - \hat{h}_a(\bar{1}) - u(\bar{1}) \right] g(\bar{1}, \bar{2}) - \int_{R_k}^{\infty} d3 \sigma(\bar{1}, \bar{3}) g(\bar{3}, \bar{2}) - \int_0^{R_k} d3 \sigma(\bar{1}, \bar{3}) g(\bar{3}, \bar{2}) = 0. \quad (2)$$

Здесь $\sigma(\bar{1}, \bar{2})$ и $\sigma(\bar{1}, \bar{2})$ — массовые операторы электрона квантовой точки и адатома соответственно при отсутствии взаимодействия между квантовой точкой и адатомом; $\sigma(\bar{1}, \bar{2})$ и $\sigma(\bar{1}, \bar{2})$ описывают взаимодействие между электронами квантовой точки и адатома. Решая систему уравнений (1), (2), получим следующее уравнение для функции Грина электрона квантовой точки $g(\bar{1}, \bar{2})$:

$$\left[i \frac{\partial}{\partial t_1} - \hat{h}_k(\bar{1}) - u(\bar{1}) \right] g(\bar{1}, \bar{2}) - \int_0^{R_k} d3 \left[\sigma(\bar{1}, \bar{3}) + \sigma_k(\bar{1}, \bar{3}) \right] g(\bar{1}, \bar{2}) = \delta(\bar{1} - \bar{2}), \quad (3)$$

где $\sigma_k(\bar{1}, \bar{2})$ — вклад в массовый оператор электрона квантовой точки за счет взаимодействия с адатомом

$$\sigma(\bar{1}, \bar{2}) = \int_{R_k}^{\infty} d3 \int_{R_k}^{\infty} d4 \sigma(\bar{1}, \bar{3}) g_0(\bar{3}, \bar{4}) \sigma(\bar{4}, \bar{2}). \quad (4)$$

Здесь $g_0(\bar{3}, \bar{4})$ — функция Грина электрона адатома при отсутствии взаимодействия с квантовой точкой. В дальнейшем удобно ввести обозначения $g(\bar{1}, \bar{2}) \equiv G(1, 2)$, $\sigma(\bar{1}, \bar{2}) \equiv \Sigma(1, 2)$ для функций квантовой точки $g(\bar{1}, \bar{2}) \equiv g(1, 2)$, $\sigma(\bar{1}, \bar{2}) \equiv \sigma(1, 2)$ для функции адатома.

3. Для вывода кинетических уравнений типа Кадамова–Бейма необходимо перейти от функций Грина, зависящих от мнимых временных аргументов, к функциям, зависящим от действительных временных аргументов. При этом можно использовать правила работы [13]. Для произведения функций, зависящих от мнимых вре-

менных аргументов $D = BC$, после перехода к действительным временным аргументам имеем

$$D^{R,A} = B^{R,A} C^{R,A}, \quad \tilde{D} = B^R C + \tilde{B} C^A, \quad (5)$$

где D^B, D^A — соответственно запаздывающая и опережающая функции, \tilde{D} — корреляционные функции, зависящие от действительных временных аргументов. Эти соотношения имеют место и для смешанного представления, которое получается при переходе от переменных t_1, t_2 к переменным $t = t_1 - t_2$, $T = (t_1 + t_2)/2$ с последующим преобразованием Фурье по переменной t : $t, T \rightarrow \bar{\omega}, T$: $D^{R,A}(\omega, T) = \{B^{R,A}(\omega, T), C^{R,A}(\omega, T)\}$,

$$\tilde{D}(\omega, T) = \{B^R(\omega, T), \tilde{C}(\omega, T)\} + \{\tilde{B}(\omega, T), C^A(\omega, T)\}, \quad (6)$$

где

$$\{B(\omega, T)C(\omega, T)\} = \exp \left[-\frac{i}{2} \left(\frac{\partial}{\partial \omega} \frac{\partial}{\partial T} - \frac{\partial}{\partial \omega_1} \frac{\partial}{\partial T_1} \right) \right] \times B(\omega_1, T)C(\omega, T_1) \Big|_{\omega=\omega_1, T=T_1}.$$

Используя в (3) соотношения (5), (6), а также совершая преобразование Фурье и по переменной T ($T \rightarrow \Omega$), окончательно получим следующее уравнение для корреляционной функции квантовой точки:

$$\left[\omega + \frac{\Omega}{2} - \hat{h}_k(\bar{1}) - u(r_1, \omega + \frac{\Omega}{2}) \right] \bar{G}(r_1, r_2; \omega, \Omega) - \int_0^R dr_2 \int \frac{d\Omega'}{2\pi} (\Sigma^R + \Sigma_k^R)(r_1, r_3; \omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega') \times G(r_3, r_2; \omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega') = \int_0^{R_k} dr_3 \int \frac{d\Omega'}{2\pi} (\overset{\sim}{\Sigma} + \overset{\sim}{\Sigma}_k)(r_1, r_3; \omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega') \times G^A(r_3, r_2; \omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega'). \quad (7)$$

Здесь

$$\overset{\sim}{\Sigma}_k^{R,A}(r, r'; \omega) = \int_{R_k}^{\infty} dr_1 \times \int_{R_k}^{\infty} dr_2 \sigma(r, r_1; \omega) \tilde{g}_0^{R,A}(r_1, r_2; \omega) \sigma(r_2, r'; \omega).$$

Аналогичный вид имеет уравнение для корреляционной функции электрона адатома. Для определения эффективных волновых уравнений для электронов квантовой точки и адатома представим массовый оператор $\Sigma_k[g_0]$ в виде двух слагаемых с помощью преобразования $g_0 \rightarrow g + (g_0 - g)$: $\Sigma_k[g_0] = \Sigma_k[g] + \tilde{\Sigma}_k[g_0 - g]$. Слагаемое $\tilde{\Sigma}_k$ учтем при определении эффективного волнового уравнения электрона квантовой точки. Это позволяет ввести в дальнейшем параметр для перенормировки энергии электрона квантовой точки. Слагаемое Σ_k оставляем в уравнении для корреляционной функции, что обуславливает появление потенциала гибридизации затравочных энергетических состояний системы „квантовая точка + адатом“. Таким образом, эффективное волновое уравнение для электрона квантовой точки принимает вид

$$\begin{aligned} \hat{h}_k(r)\psi_n(r, \omega) - \int_0^{R_k} dr_1 \operatorname{Re} \left[\Sigma^R + \tilde{\Sigma}_k^R \right] (r, r_1; \omega) \psi(r_1, \omega) \\ = E_n(\omega) \psi_n(r, \omega), \end{aligned} \quad (8)$$

где n — совокупность квантовых чисел, описывающих движение электрона в квантовой точке. Заметим, что при удалении адатома от поверхности квантовой точки $g \rightarrow g_0$ и $\tilde{\Sigma}_k[g_0 - g] \rightarrow 0$ и уравнение (8) переходит в эффективное волновое уравнение для изолированной квантовой точки. Эффективное волновое уравнение для электрона адатома имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{h}_a(r)\varphi_\lambda(r, \omega) - \int_{R_k}^{\infty} dr_1 \operatorname{Re} \left[\sigma^R + \tilde{\sigma}_a^R \right] (r, r_1; \omega) \varphi(r_1, \omega) \\ = \varepsilon_\lambda(\omega) \varphi_\lambda(r, \omega), \end{aligned} \quad (9)$$

где λ — совокупность квантовых чисел, описывающих движение электрона в адатоме. Граничные условия к уравнениям (8), (9) имеют вид

$$\begin{aligned} \varphi(r = R_k, \omega) = \psi(r = R_k, \omega), \\ \frac{d\varphi(r = R_k, \omega)}{dr} = \frac{d\psi(r = R_k, \omega)}{dr}. \end{aligned}$$

Перейдя в уравнении (7) и сопряженном к нему уравнении к представлению, осуществляемому уравнениями (8), (9), окончательно получим следующее квантово-кинетическое уравнение для электронной подсистемы

квантовой точки:

$$\begin{aligned} \left[\Omega - E_n \left(\omega + \frac{\Omega}{2} \right) + E_n \left(\omega - \frac{\Omega}{2} \right) \right] \hat{G}_{nm'}^<(\omega, \Omega) \\ - \sum_{n''} u_{nn''} \left(\omega + \frac{\Omega}{2} \right) \hat{G}_{n''n'}^<(\omega, \Omega) \\ + \sum_{n''} \hat{G}_{nn''}^<(\omega, \Omega) u_{n''n'} \left(\omega - \frac{\Omega}{2} \right) \\ - \sum_{n''} \int \frac{d\Omega'}{2\pi} \left(\Sigma^R + \Sigma_{k,nn''}^R \right) \left(\omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega' \right) \\ \times \hat{G}_{n''n'}^< \left(\omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega' \right) + \sum_{n''} \int \frac{d\Omega'}{2\pi} G_{nn''}^R \\ \times \left(\omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega' \right) \left(\Sigma^A + \Sigma_k^A \right)_{n''n'} \left(\omega - \frac{\Omega}{2}, \Omega - \Omega' \right) \\ = \sum_{n''} \int \frac{d\Omega'}{2\pi} \left(\tilde{\Sigma} + \tilde{\Sigma}_{k,nn''} \right) \left(\omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2} \right) \hat{G}_{n''n'}^A \\ \times \left(\omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega' \right) - \sum_{n''} \int \frac{d\Omega'}{2\pi} G_{nn''}^R \left(\omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega' \right) \\ \times \left(\tilde{\Sigma} + \tilde{\Sigma}_k \right)_{n''n'} \left(\omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega' \right). \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь

$$\begin{aligned} \hat{\Sigma}_{k,nn'}^{<R,A}(\omega, \Omega) = \sum_{\lambda\lambda'} V_{n\lambda} \left(\omega - \frac{\Omega}{2} \right) \\ \times \hat{g}_{\lambda\lambda'}^{<R,A}(\omega, \Omega) V_{\lambda'n'} \left(\omega + \frac{\Omega}{2} \right), \end{aligned}$$

где g — соответствующие функции Грина электрона адатома. Выражение для потенциала гибридизации имеет вид

$$V_{n\lambda}(\omega) = \int_0^{R_k} dr_1 \int_{R_k}^{\infty} dr_2 \psi_n^*(r_1, \omega) \sigma(r_1, r_2; \omega) \varphi_\lambda(r_2; \omega).$$

Уравнения движения для функции $\hat{G}_{nm'}^<$, $G_{nm'}^{R(A)}$ можно представить следующим образом:

$$\begin{aligned} \left[\omega + \frac{\Omega}{2} - E_n \left(\omega + \frac{\Omega}{2} \right) \right] G_{nm'}^{R(A)}(\omega, \Omega) \\ - \sum_{n''} u_{nn''} \left(\omega + \frac{\Omega}{2} \right) G_{n''n'}^{R(A)}(\omega, \Omega) \\ - \sum_{n''} \int \frac{d\Omega'}{2\pi} \left(\Sigma_{nn''}^{R(A)} + \Sigma_{k,nn''}^{R(A)} \right) \left(\omega + \frac{\Omega - \Omega'}{2}, \Omega' \right) \\ \times G_{n''n'}^{R(A)} \left(\omega - \frac{\Omega'}{2}, \Omega - \Omega' \right) = \delta_{nm'}. \end{aligned} \quad (11)$$

Квантовое кинетическое уравнение для корреляционной функции $\hat{g}_{nm}(\omega, \Omega)$ электрона адатома имеет вид, аналогичный уравнению (10). Уравнение (10) совместно с аналогичным уравнением для электрона адатома позволяет исследовать как равновесные, так и неравновесные свойства системы „квантовая точка + адатом“.

4. Остановимся на исследовании равновесных свойств системы „квантовая точка + адсорбат“. Определим значение радиуса квантовой точки, при котором заполняется очередное дискретное энергетическое состояние квантовой точки и влияние взаимодействия квантовой точки с адатомом на величину радиуса квантовой точки. Для равновесной корреляционной функции электрона квантовой точки получим из квантового кинетического уравнения (10) следующее выражение:

$$\hat{G}_n(\omega) = \frac{\hat{\Sigma}_n(\omega) + \hat{\Sigma}_{k,n}(\omega)}{\left[\omega - E_n(\omega) - \text{Re}(\Sigma_n(\omega) + \Sigma_{k,n}(\omega))\right]^2 + \frac{1}{4} \text{Im}(\Sigma_n(\omega) + \Sigma_{k,n}(\omega))^2}. \quad (12)$$

Для $\hat{g}_n(\omega)$ (для дискретных состояний адатома в дальнейшем вместо индекса n используется индекс λ) из соответствующего уравнения аналогично получим

$$\hat{g}_\lambda(\omega) = \frac{\hat{\sigma}_\lambda(\omega) + \hat{\sigma}_{a,\lambda}(\omega)}{\left[\omega - E_\lambda(\omega) - \text{Re}(\sigma(\omega) + \sigma_{a,\lambda}(\omega))\right]^2 + \frac{1}{4} \text{Im}(\sigma(\omega) + \sigma_{a,\lambda}(\omega))^2}, \quad (13)$$

где поправки к массовому оператору электрона квантовой точки (адатома) за счет взаимодействия с адатомом (квантовой точкой)

$$\hat{\Sigma}_{k,n}(\omega) = \sum_\lambda V_{n\lambda}(\omega) \hat{g}_\lambda(\omega) V_{\lambda n}(\omega), \quad (14)$$

$$\hat{\sigma}_{a,\lambda}(\omega) = \sum_n V_{\lambda n}(\omega) \hat{G}_n(\omega) V_{n\lambda}(\omega). \quad (15)$$

Используя для $\hat{\Sigma}_m(\omega)$, $\hat{\sigma}_\lambda(\omega)$ анзац Каданова–Бейма [11], $\hat{\Sigma}_m(\omega) = f(\omega) \Gamma_n(\omega)$, $\hat{\sigma}_\lambda(\omega) = f(\omega) \Gamma_\lambda(\omega)$, где $f(\omega)$ — функция распределения Ферми–Дирака, $\Gamma_n(\omega)$, $\Gamma_\lambda(\omega)$ — затухание одночастичных состояний электрона квантовой точки и адатома соответственно, получим $\hat{G}_n(\omega) = f(\omega) A_n(\omega)$, $\hat{g}_\lambda(\omega) = f(\omega) a_\lambda(\omega)$, где $A_n(\omega)$, $a_\lambda(\omega)$ — спектральные функции,

$$A_n(\omega) = Z_n \times \frac{\tilde{\Gamma}_n(\omega) + Z_n \sum_\lambda |V_{n\lambda}(\omega)|^2 a_\lambda(\omega)}{[\omega - \varepsilon_n]^2 + \frac{1}{4} \left(\tilde{\Gamma}_n(\omega) + Z_n \sum_\lambda |V_{n\lambda}(\omega)|^2 a_\lambda(\omega)\right)^2}, \quad (16)$$

$$a_\lambda(\omega) = Z_\lambda$$

$$\times \frac{\tilde{\Gamma}_\lambda(\omega) + Z_\lambda \sum_n |V_{\lambda,n}(\omega)|^2 A_n(\omega)}{[\omega - \varepsilon_\lambda]^2 + \frac{1}{4} \left(\tilde{\Gamma}_\lambda(\omega) + Z_\lambda \sum_n |V_{\lambda,n}(\omega)|^2 A_n(\omega)\right)^2}. \quad (17)$$

В (16) и (17)

$$\varepsilon_n = \left[E_n(\omega) + \text{Re}(\Sigma_n(\omega) + \Sigma_{k,n}(\omega)) \right]_{\omega=\varepsilon_n}, \quad (18)$$

$$\varepsilon_\lambda = \left[E_\lambda(\omega) + \text{Re}(\sigma_\lambda(\omega) + \sigma_{a,\lambda}(\omega)) \right]_{\omega=\varepsilon_\lambda} \quad (19)$$

— самосогласованные значения энергий электронов квантовой точки и адатома,

$$Z_n^{-1} = 1 - \frac{d}{d\omega} \left(E_n(\omega) + \text{Re}(\Sigma_n(\omega) + \Sigma_{k,n}(\omega)) \right) \Big|_{\omega=\varepsilon_n},$$

$$Z_\lambda^{-1} = 1 - \frac{d}{d\omega} \left(E_\lambda(\omega) + \text{Re}(\sigma_\lambda(\omega) + \sigma_{a,\lambda}(\omega)) \right) \Big|_{\omega=\varepsilon_\lambda} \quad (20)$$

— перенормировочные ферми-жидкостные константы, $\tilde{\Gamma}_{n(\lambda)} = Z_{n(\lambda)} \Gamma_{n(\lambda)}$. Отметим, что учет ферми-жидкостных эффектов для квантовых точек существен [3]. В дальнейшем мы рассмотрим случай, когда число электронов N на квантовой точке больше единицы: $N \gg 1$ [1]. Получим выражение для радиуса квантовой точки R_k . Исходим из выражения для полного числа частиц квантовой точки

$$N = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \sum_n \hat{G}_n(\omega) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(\omega) \sum_n A_n(\omega).$$

Используя (16), получим

$$N = \frac{1}{\pi} \sum_{n=1}^{n_f} Z_n \left[\text{arctg} \left(\frac{\mu - \varepsilon_n}{\tilde{\Gamma}_n} \right) + \frac{\pi}{2} \right] + \frac{1}{\pi} \sum_\lambda \sum_{n=1}^{n_f} \left(1 + \exp \frac{\varepsilon_\lambda - \mu}{T} \right)^{-1} \frac{Z_n^2 Z_\lambda |V_{n,\lambda}|^2}{(\varepsilon_\lambda - \varepsilon_n)^2 + \tilde{\Gamma}^2/4}, \quad (21)$$

μ — энергия Ферми, n_f — число заполненных состояний под уровнем Ферми. Соотношение (21) определяет связь между уровнем Ферми μ и числом частиц N в системе. Выражение для радиуса квантовой точки, при котором начинает заполняться очередной дискретный энергетический уровень, определяется из соотношения $\mu(E_n) = E_{n+1}$. В случае когда адатом имеет одно квантовое состояние ($\lambda = a$), радиус, при котором заполняется второй энергетический уровень квантовой точки, определяется из условия $\mu(E_1) = E_2$. Для случая сферической ямы с бесконечными стенками имеем $E_n = \frac{\hbar^2 \alpha_n^2}{2mR^2}$, где m — эффективная масса электрона квантовой точки, R — радиус квантовой точки, α_n — корни функции Бесселя $J_{l+1/2}(\alpha_{nl}) = 0$ в порядке их возрастания. Из условия заполнения очередного квантового уровня

$\mu(E_1) = E_2$ можно определить выражение для радиуса квантовой точки, когда начинает заполняться второй квантовый уровень:

$$R = \left(\hbar^2 (\alpha_2^2 - \alpha_1^2) / \left(2m\tilde{\Gamma}_1 \operatorname{tg} \left[\frac{\pi}{Z_1} \left(N - \frac{Z_1}{2} - \left(1 + \exp \left(\frac{E_a - \mu}{T} \right) \right)^{-1} \frac{Z_1^2 Z_a |V|^2}{(\varepsilon_a - \varepsilon_1)^2 + \tilde{\Gamma}_1^2 / 4} \right] \right) \right) \right)^{1/2}. \quad (22)$$

При отсутствии взаимодействия с адатомом выражение (22) принимает вид

$$R = \left(\hbar^2 (\alpha_2^2 - \alpha_1^2) / \left(2m\tilde{\Gamma}_1 \operatorname{tg} \left[\frac{\pi}{Z_n} \left(N - \frac{Z_1}{2} \right) \right] \right) \right)^{1/2}.$$

Как видно из последнего выражения, учет корреляционного взаимодействия приводит к увеличению радиуса квантовой точки: $\tilde{\Gamma}_{n(\lambda)} = Z_{n(\lambda)} \Gamma_{n(\lambda)}$, $Z_{n(\lambda)} < 1$. К такому же эффекту приводит и взаимодействие адатома с квантовой точкой. При этом существенное влияние хемосорбции имеет место, если $E_a < \mu$.

5. Определим поправки к энергии при хемосорбции. В рамках модели Андерсона–Ньюнса [14–16] выражение для перенормированной энергии электрона адатома дается соотношением $\varepsilon_a = \varepsilon_a^0 + U_a \langle n \rangle$, где ε_a^0 — энергия электрона изолированного атома, U — потенциал внутриатомного кулоновского отталкивания, $\langle n \rangle$ — возмущение электронной плотности атома при взаимодействии с квантовой точкой, определяемое выражением $\langle n \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\pi} \tilde{g}(\omega)$. В случае квантовой точки в отличие от ранее рассмотренных задач [6–10] будем исходить из следующего выражения для перенормированной энергии квантовой точки: $\varepsilon_n = \varepsilon_n^0 + U_n \langle N \rangle$. Здесь ε_n^0 — энергия дискретного состояния квантовой точки при отсутствии взаимодействия с адатомом, U_n имеет смысл корреляционной энергии, $\langle N \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\pi} \tilde{G}(\omega)$ — возмущение электронной плотности квантовой точки при взаимодействии с адатомом. Число электронов N_0 , участвующих в хемосорбции, удовлетворяет соотношению $\langle N \rangle + \langle n \rangle = N_0$. Выражения для определения уравнения движения при расчете возмущенной плотности электронов $\langle N \rangle$ и $\langle n \rangle$ имеют вид

$$\langle n \rangle = \sum_{n\lambda} |V_{n\lambda}|^2 \frac{Z_\lambda^2 Z_n \Theta(\mu - \varepsilon_n)}{(\varepsilon_n - \varepsilon_\lambda)^2 + \tilde{\Gamma}_\lambda^2 / 4}, \quad (23)$$

$$\langle N \rangle = \sum_{n\lambda} |V_{n\lambda}|^2 \frac{Z_n^2 Z_\lambda \Theta(\mu - \varepsilon_\lambda)}{(\varepsilon_n - \varepsilon_\lambda)^2 + \tilde{\Gamma}_n^2 / 4}. \quad (24)$$

Заметим, что выражение (23) для $\langle n \rangle$ по своему функциональному виду совпадает с аналогичным выражением для случая хемосорбции на размерно-квантованной пленке, находящейся во внешнем квантующем магнитном поле, направленном перпендикулярно поверхности

пленки, когда энергетический спектр тонкой пленки полностью квантован [9]. В этом случае энергия адатома осциллирует при изменении радиуса пленки. Из выражения (24) следует, что поправка к энергетическому уровню квантовой точки также может скачком измениться в зависимости от числа заполненных состояний адатома. Таким образом, при взаимодействии адатома с квантовой точкой происходит взаимная перенормировка энергетических уровней как адатома, так и квантовой точки.

Экспериментальное обнаружение эффектов перенормировки энергий электронов квантовой точки и адатома возможно при выполнении условий $U_n \langle N \rangle, U_a \langle n \rangle \ll T, \hbar/\tau$, где T — абсолютная температура, τ — время релаксации.

Список литературы

- [1] А.В. Чаплик. Письма в ЖЭТФ **50**, 38 (1989).
- [2] В.Е. Бугров, О.В. Константинов. ФТП **32**, 1235 (1998).
- [3] Ю.Е. Лозовик, С.Ю. Волков. ФТТ **45**, 345 (2003).
- [4] Р.З. Витлина, А.В. Чаплик. Письма в ЖЭТФ **78**, 1147 (2003).
- [5] Ю.И. Ханина, Е.В. Вдовин. Письма в ЖЭТФ **81**, 330 (2005).
- [6] Р.П. Мейланов. ФТТ **31**, 270 (1989).
- [7] Р.П. Мейланов. ФТТ **32**, 2839 (1990).
- [8] Р.П. Мейланов. Поверхность **3**, 52 (1999).
- [9] Р.П. Мейланов, Б.А. Абрамова, В.В. Гаджиалиев, В.В. Джабраилов. ФТТ **44**, 2097 (2002).
- [10] Р.П. Мейланов, Абрамова, Г.М. Мусаев, М.М. Гаджиалиев. ФТТ **46**, 1076 (2004).
- [11] Л. Каданов, Г. Бейм. Квантовая статистическая механика. Мир, М. (1964). 256 с.
- [12] А.М. Бродский, М.И. Урбах. Квантовомеханическая теория адсорбции атомов и ионов. В сб.: Физика молекул / Под ред. А.С. Давыдова. (1977). Т. 4. С. 74.
- [13] D.C. Langreth, P. Nordlander. Phys. Rev. B **43**, 2541 (1991).
- [14] P.W. Anderson. Phys. Rev. **124**, 419 (1961).
- [15] D.M. Newns. Phys. Rev. **178**, 1123 (1969).
- [16] Т. Эйнштейн, Дж. Герц, Дж. Шриффер. Проблемы теории хемосорбции. В сб.: Теория хемосорбции / Под ред. А.М. Бродского. Мир, М. (1983).