

Поглощение электромагнитного излучения электронами наносферы

© Д.В. Булаев, В.А. Маргулис

Мордовский государственный университет им. Н.П. Огарева,
430000 Саранск, Россия

E-mail: theorphysics@mrsu.ru

(Поступила в Редакцию 19 ноября 2001 г.)

Исследован электродинамический отклик электронного газа на поверхности наносферы. Найдено аналитическое выражение для поглощения электромагнитного излучения наносферой. Показано, что при низкой температуре на кривой поглощения имеются два резонансных пика. Исследовались форма, положение и интенсивность пиков. Зависимость поглощения от частоты излучения имеет изломы, связанные с вырождением электронного газа. Исследованы число и положение изломов, а также величины скачков на изломах. Рассматривались случаи изолированной сферы и случая сферы, обменивающейся электронами с резервуаром.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 01-02-16564), DFG (грант N 436 RUS 113/572) и Программы „Университеты России“ (грант № 015.01.01.049).

Недавний значительный прогресс в нанотехнологии сделал возможным изготовление сферических наноструктур с размерами от нескольких до сотен нанометров [1–3]. Исследования сферических наноструктур показали, что они обладают интересными спектральными [4] и оптическими свойствами [5–7]. Как показано в [5–8], поглощение оптического излучения сферической металлической наноструктурой хорошо описывается в рамках классического подхода. Оптические свойства наночастицы зависят от ее размера и геометрии. Влияние формы наноструктуры на спектр поглощения исследовалось в [9]. Плотная упаковка наносфер может образовывать трехмерный кристалл. Коллективные оптические свойства таких наносфер рассмотрены в [3,10–12]. Отметим, что такие кристаллы имеют фотонную запрещенную зону и являются фотонными кристаллами [13–15]. В последнее время появилась возможность покрытия сферической наноструктуры металлической или полупроводниковой оболочкой. Так, в [16] сообщается о создании кристаллов из наносфер на основе ядра из CdSe, покрытого оболочкой из ZnS. Исследованию оптических свойств диэлектрических ядер из Au₂S, покрытых металлической оболочкой из золота, посвящен ряд работ [17–20]. Данные сферические наноболочечные структуры образуются в результате смешивания водных растворов H₂AuCl₄ и Na₂S. Получаемые при этом сферы имеют размеры в несколько десятков нанометров. Исследования по поглощению электромагнитного излучения среды, содержащей такие наноболочечные структуры, показали, что в спектре поглощения существует резонансный пик в оптической области, связанный с поглощением излучения наноболочечными структурами [17,18]. На основе классической теории [8] была разработана теоретическая модель для описания оптических свойств сферических наноболочек. Было установлено, что пик поглощения соответствует плазменному резонансу электронов в системе, а положение и интенсивность пика поглощения зависят от толщины металлической оболочки и диаметра диэлектрического

ядра [17,18]. Исследования оптического поглощения наноструктур позволили понять кинетику роста наноструктуры [18] и найти значения таких параметров, как время релаксации электрона и константы электрон-фононной связи [17]. Исследования нелинейного оптического отклика наноболочечных сферических и сфероидальных систем [21–23] показали, что оболочка структуры может значительно усиливать нелинейный оптический отклик системы. Отметим, что в случае тонкой металлической или полупроводниковой оболочки (порядка нескольких атомных слоев) в свойствах системы становится важным проявление квантовых эффектов, и использование классической модели для описания оптического поглощения наноболочкой является неприменимым [17].

Цель данной работы — исследование внутризонных оптических переходов в наносфере. Отметим, что исследование внутризонных оптических переходов дает важную информацию о параметрах энергетического спектра и ферми-поверхности электронов [24–28]. Модель сферы может быть применена для исследования различных физических свойств металлической или полупроводниковой оболочки, толщина которой много меньше размеров структуры. Такая модель используется для анализа спектральных [29,30], магнитных [31–34] и транспортных свойств [35] сферических или сфероидальных наноструктур, а также для исследования влияния электрон-электронного [36] спин-орбитального [37] взаимодействия на спектральные свойства электронов в сферических системах.

1. Поглощение электромагнитного излучения

Рассмотрим систему невзаимодействующих электронов, находящихся на поверхности наносферы. Собственные функции и собственные значения гамильтониана

системы хорошо известны и имеют вид

$$\psi_{l,m}(\vartheta, \varphi) = Y_{l,m}(\vartheta, \varphi), \quad E_l = \frac{\hbar\Omega}{2} l(l+1),$$

где l, m — орбитальное и магнитное квантовые числа, $\Omega = \hbar/m^*R^2$, $Y_{l,m}(\vartheta, \varphi)$ — сферические гармоники, m^* — эффективная масса, R — радиус сферы. Используя теорию возмущений для взаимодействия электронов с высокочастотным электромагнитным полем [38], можно найти поглощение электромагнитного излучения. В случае вырожденного электронного газа для величины поглощения наносферой получим

$$\begin{aligned} \Gamma &= \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega)}}{2c\hbar R^2 N_f} (1 - e^{-\hbar\omega/T}) \\ &\times \sum_{l,m} \sum_{l',m'} f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\omega)] \\ &\times |\langle l', m', -\mathbf{f} | H_R | l, m, 0 \rangle|^2 \delta(E_l - E_{l'} + \hbar\omega), \quad (1) \end{aligned}$$

где $\varepsilon(\omega)$ — вещественная часть диэлектрической проницаемости (предполагаем, что в рассматриваемой здесь области частот нет дисперсии), N_f — концентрация падающих на наносферу фотонов с частотой ω , \mathbf{f} — волновой вектор фотона, $f_0(E_l)$ — электронная функция распределения, множитель $1 - \exp(-\hbar\omega/T)$ учитывает вынужденное испускание фотонов. Оператор электрон-фотонного взаимодействия имеет вид

$$H_R = \frac{|e|}{m^*} \sqrt{\frac{2\pi\hbar N_f}{\varepsilon(\omega)\omega}} \mathbf{e}_f \mathbf{p},$$

где \mathbf{e}_f — вектор поляризации фотона.

При вычислении матричных элементов оператора H_R электромагнитное поле предполагается однородным, т. е. считается, что длина волны фотона много больше радиуса сферы.

Направим ось Oz вдоль вектора поляризации фотона. Матричные элементы перехода в дипольном приближении имеют вид

$$\begin{aligned} &\langle l', m', -\mathbf{f} | H_R | l, m, 0 \rangle \\ &= \frac{|e|}{m^*} \sqrt{\frac{2\pi\hbar N_f}{\varepsilon(\omega)\omega}} \langle l', m' | p_z | l, m \rangle = \frac{|e|\hbar}{m^*R} \sqrt{\frac{2\pi\hbar N_f}{\varepsilon(\omega)\omega}} \delta_{m',m} \\ &\times \left[(l+1) \sqrt{\frac{l^2 - m^2}{4l^2 - 1}} \delta_{l',l-1} + l \sqrt{\frac{(l+1)^2 - m^2}{4(l+1)^2 - 1}} \delta_{l',l+1} \right]. \quad (2) \end{aligned}$$

Как следует из (2), в дипольном приближении переходы возможны только между соседними уровнями ($l' = l \pm 1$).

Подставляя (2) в (1), получим

$$\begin{aligned} \Gamma &= \frac{\pi e^2}{3cm^*R^2 \sqrt{\varepsilon(\omega)}} \frac{\Omega}{\omega} (1 - e^{-\hbar\omega/T}) \\ &\times \sum_{l=0}^{\infty} f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\omega)] l(l+1) \\ &\times [(l+1)\delta(\omega + \Omega l) + l\delta(\omega - \Omega(l+1))]. \quad (3) \end{aligned}$$

Из (3) видно, что зависимость $\Gamma(\omega)$ будет иметь резонансный характер. Резонансы возникают при частотах электромагнитного излучения $\omega = \Omega(l+1)$ для значений l , при которых $f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\Omega(l+1))]$ не является малой величиной.

Для учета размытия резонансов рассеиванием введем лоренцевское уширение дельтаобразных пиков по формуле

$$\delta_\tau(x) = \frac{(\pi\tau)^{-1}}{\tau^{-2} + x^2}, \quad (4)$$

где τ — феноменологическое время релаксации. С учетом (4) выражение (3) можно записать в виде суммы двух слагаемых: $\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2$, где

$$\begin{aligned} \frac{\Gamma_1}{\Gamma_0} &= \frac{\Omega}{\omega} (1 - e^{-\hbar\omega/T}) \\ &\times \sum_{l=1}^{\infty} \frac{f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\omega)] l(l+1)^2}{1 + \tau^2(\omega + \Omega l)^2}, \\ \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} &= \frac{\Omega}{\omega} (1 - e^{-\hbar\omega/T}) \\ &\times \sum_{l=1}^{\infty} \frac{f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\omega)] l^2(l+1)}{1 + \tau^2[\omega - \Omega(l+1)]^2}. \end{aligned}$$

Здесь $\Gamma_0 = e^2\tau/3cm^*R^2 \sqrt{\varepsilon(\omega)}$.

Нерезонансный член Γ_1 описывает процессы, связанные с эмиссией фотонов, причем вблизи точки резонанса $\Gamma_1 = O(\Gamma_2/(\tau\omega)^2)$. Поэтому в случае высокочастотного поля вкладом Γ_1 в поглощение в окрестности резонанса можно пренебречь. Опустив нерезонансный член, получим

$$\begin{aligned} \frac{\Gamma}{\Gamma_0} &= \frac{\Omega}{\omega} (1 - e^{-\hbar\omega/T}) \\ &\times \sum_{l=1}^{\infty} \frac{f_0(E_l) [1 - f_0(E_l + \hbar\omega)] l^2(l+1)}{1 + \tau^2[\omega - \Omega(l+1)]^2}. \quad (5) \end{aligned}$$

Из формулы (1) видно, что при достаточно низкой температуре в поглощении участвуют только те электроны, энергия которых находится в интервале $[\mu - \hbar\omega, \mu]$. Заметим, что при изменении частоты электромагнитного излучения уровень $\mu - \hbar\omega$ может пересечь энергетический уровень электрона. В результате изменяется число электронов, участвующих в поглощении, и в зависимости поглощения Γ от частоты ω возникает излом.

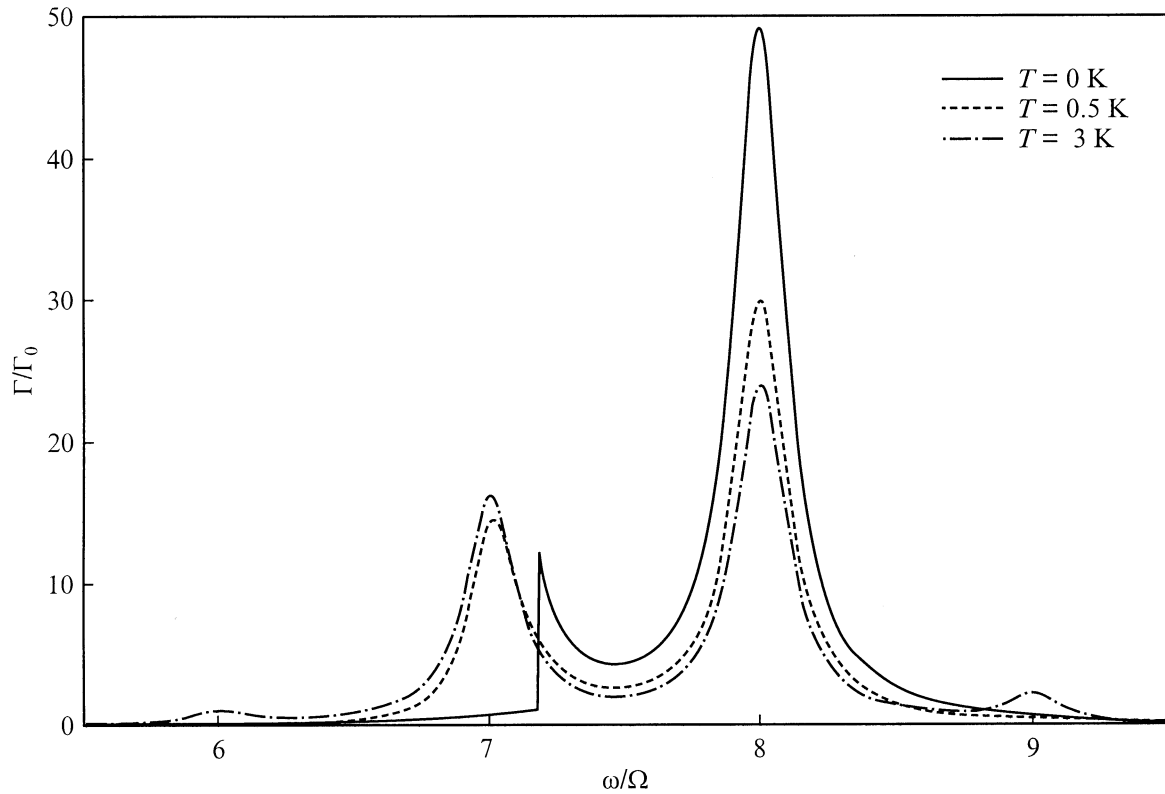


Рис. 1. Возникновение новых резонансных пиков на кривой поглощения с ростом температуры; $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $\mu = 5.15 \times 10^{-15}$ эрг.

Из условия возникновения изломов $\mu - \hbar\omega = E_l$ находим, что изломы возникают при частоте электромагнитного излучения

$$\omega_{\text{kink}}(l) = \frac{\mu}{\hbar} - \frac{\Omega}{2} l(l+1). \quad (6)$$

Отсюда следует, что расстояние между соседними изломами равно $\omega_{\text{kink}}(l) - \omega_{\text{kink}}(l-1) = \Omega l$.

Величину скачка поглощения на изломе Δ_l , при близких к нулю температурах, можно оценить следующим выражением:

$$\Delta_l \approx \Gamma_0 \times \frac{\Omega l^2(l+1)}{[\mu/\hbar - \Omega l(l+1)/2] \{1 + \tau^2 [\mu/\hbar - \Omega(l+1)(l+2)/2]^2\}}. \quad (7)$$

Как известно, термодинамические свойства трехмерного электронного газа (например, диамагнетизм Ландау) практически не зависят от того, постоянно ли число частиц в системе ($N = \text{const}$) или постоянен химический потенциал ($\mu = \text{const}$). Это обстоятельство прежде всего связано с тем, что влияние выбора способа описания системы на ее термодинамические свойства имеет порядок $N^{-1/3}$ [39], и при очень большом числе частиц этим вкладом можно пренебречь.

В случае электронного газа на наносфере число частиц в системе невелико, поэтому физические свойства

наносферы существенно зависят от выбора способа описания системы [34]. В связи с этим далее рассмотрим два случая — случай постоянного химического потенциала и случай постоянного числа электронов на сфере — и проведем детальный анализ различий в поглощении между этими случаями.

2. Наносфера в термостате

Будем считать, что сфера находится в контакте с резервуаром, имеющим химический потенциал μ и температуру T .

Для дальнейшего анализа удобно ввести квантовое число l_0 , такое что $E_{l_0} \leq \mu < E_{l_0+1}$. При нулевой температуре l_0 есть орбитальное квантовое число верхнего, занятого электронами уровня, и резонанс в поглощении возникает при переходе электронов с l_0 -го уровня на $(l_0 + 1)$ -й при частоте электромагнитного излучения, равной $\Omega(l_0 + 1)$ (сплошная линия на рис. 1). При увеличении температуры вклад электронных переходов с $(l_0 - 1)$ -го уровня на l_0 -й в поглощение становится существенным и возникает резонансный пик при частоте, равной Ωl_0 (штриховая на рис. 1). При дальнейшем росте температуры возникают максимумы в поглощении при переходе электронов с $(l_0 - 2)$ -го уровня на $(l_0 - 1)$ -й или с $(l_0 + 1)$ -го на $(l_0 + 2)$ -й (штрих-пунктирная линия на рис. 1) и т. д.

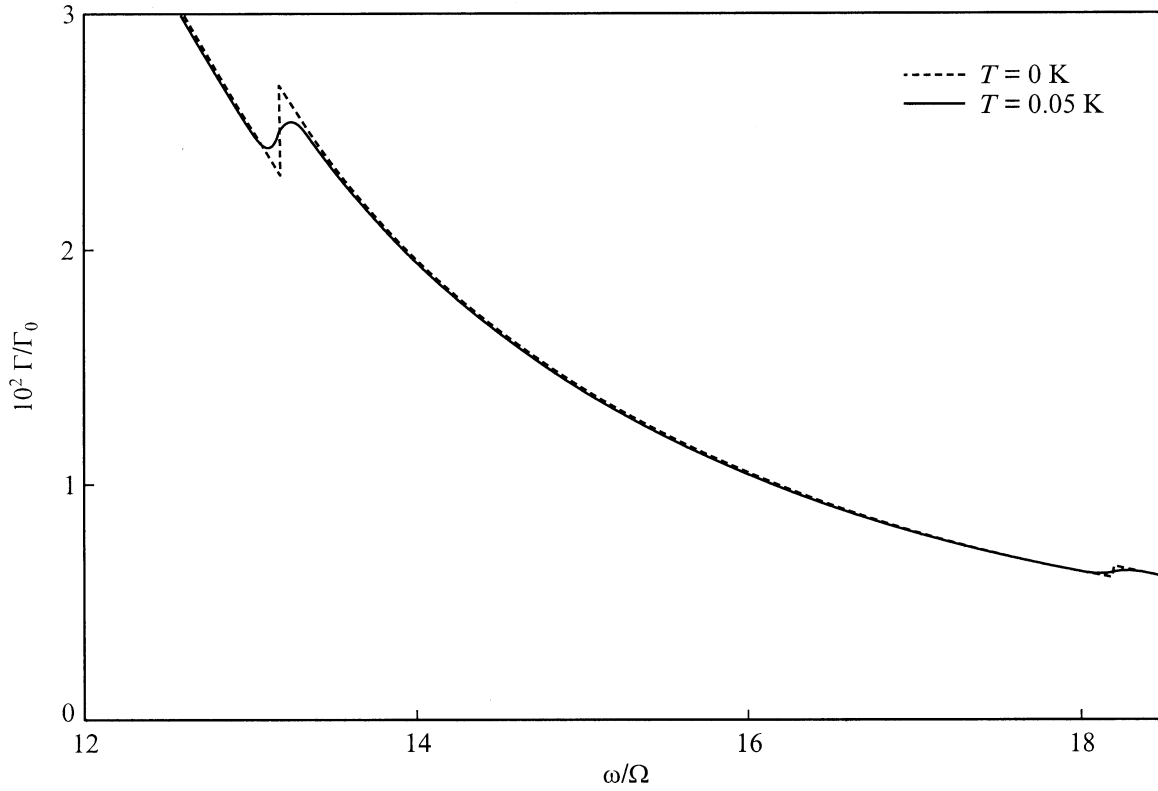


Рис. 2. Температурное размытие изломов на правом крыле второго резонансного пика; $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $\mu = 5.15 \times 10^{-15}$ эрг.

Оценим интенсивности первого (при $\omega = \Omega l_0$) и второго (при $\omega = \Omega(l_0 + 1)$) пиков

$$\Gamma(\omega = \Omega l_0) = \Gamma_0(1 - e^{-\hbar\Omega l_0/T})f_0(E_{l_0-1}) \times [1 - f_0(E_{l_0})](l_0 - 1)^2 + O(1/(\tau\Omega)^2), \quad (8)$$

$$\Gamma(\omega = \Omega(l_0 + 1)) = \Gamma_0(1 - e^{-\hbar\Omega(l_0+1)/T})f_0(E_{l_0}) \times [1 - f_0(E_{l_0+1})]l^2 + O(1/(\tau\Omega)^2). \quad (9)$$

Отметим, что с увеличением температуры интенсивность наибольшего пика (при $\omega = \Omega(l_0 + 1)$) уменьшается, а интенсивности остальных пиков увеличиваются.

При $T = 0$ К на рис. 1 виден излом, соответствующий пересечению шестого электронного энергетического уровня с $\mu - \hbar\omega$. Как видно из рисунка, температура в 0.5 К полностью замыкает этот излом. Следующие два излома, возникающие на правом крыле второго резонансного пика вследствие пересечения уровня $\mu - \hbar\mu$ пятым и четвертым энергетическим уровнями, показаны на рис. 2. Из рисунка видно, что с увеличением температуры положение изломов не изменяется и даже небольшое увеличение температуры приводит к заметному сглаживанию изломов.

Рассмотрим излом, соответствующий пересечению уровня E_{l_0-1} с $\mu - \hbar\omega$. Из (7) и (6) следует, что чем ближе химический потенциал к электронному энергетическому уровню E_{l_0} , тем ближе $\omega_{\text{кин}}$ к Ωl_0 и тем больше

величина скачка на этом изломе. Так при $\mu \approx E_{l_0}$ величина скачка на изломе равна $\Gamma_0(l_0 - 1)^2$ (рис. 3). Отметим, что при изменении величины химического потенциала изменяются только положение излома и величина скачка на изломе, поэтому по обе стороны от изломов кривые поглощения совпадают. Как следует из (7), для других изломов величина скачка на изломе Δ_l уменьшается с уменьшением l (рис 2).

Оценим поглощение при нулевой температуре. В области частот электромагнитного излучения близких к резонансной частоте, равной $\Omega(l_0 + 1)$, в уравнении (5) существенны только два слагаемых с $l = l_0 - 1$ и l_0 . Тогда, оставляя в (5) только эти слагаемые и устремив температуру к нулю, получим

$$\frac{\Gamma(T = 0)}{\Gamma_0} \approx \frac{\Omega}{\omega} \left[\frac{l_0(l_0 + 1)}{1 + \tau^2[\omega - \Omega(l_0 + 1)]^2} + \frac{(l_0 - 1)^2 l_0}{1 + \tau^2(\omega - \Omega l_0)^2} \Theta(E_{l_0-1} + \hbar\omega - \mu) \right], \quad (10)$$

где $\Theta(x)$ — ступенчатая функция

$$\Theta(x) = \begin{cases} 0, & \text{при } x \leq 0, \\ 1, & \text{при } x > 0. \end{cases}$$

В формуле (10) первое слагаемое описывает резонансный пик в поглощении, возникающий при частоте

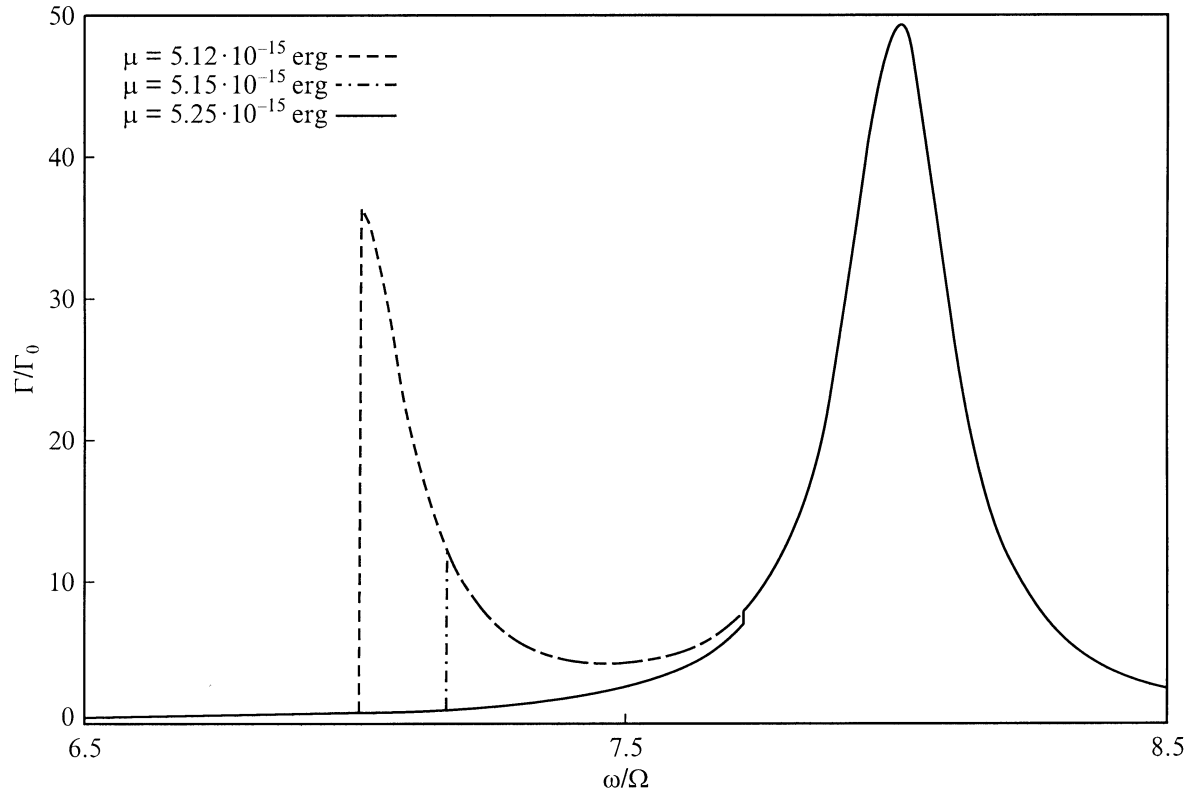


Рис. 3. Изменение положения излома и величины скачка на изломе на кривой поглощения при разных значениях химического потенциала. Показан излом, возникающий при пересечении уровня E_{l_0-1} с $\mu - \hbar\omega$; $R = 10^{-15}$ см, $T = 0$ К, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с.

$\omega = \Omega(l_0 + 1)$, а второе слагаемое — излом, возникающий при частоте $\omega = \mu/\hbar - \Omega(l_0 - 1)l - 0/2$. Из (10) следует, что при частоте электромагнитного излучения, равной Ωl_0 , в поглощении нет резонанса при $T = 0$. Это связано с тем, что при нулевой температуре уровень E_{l_0} является заполненным ($f_0(E_{l_0}) = 1$), поэтому переходы электронов с уровня E_{l_0+1} на E_{l_0} невозможны. Увеличение температуры приводит к появлению резонансного пика при частоте, равной Ωl_0 (за счет множителя $[1 - f_0(E_{l_0})]$ в (8)) (рис. 1).

Из (9) видно, что при $T = 0$ интенсивность пика при частоте $\omega = \Omega(l_0 + 1)$ будет наибольшей, так как $f_0(E_{l_0})[1 - f_0(E_{l_0+1})] = 1$. Поэтому из (10) получим

$$\frac{\Gamma(\omega = \Omega(l_0 + 1))}{\Gamma_0} = l_0^2 + \frac{(l_0 - 1)^2 l_0}{(l_0 + 1)(1 + \tau^2 \Omega^2)} \Theta(E_{l_0} + \hbar\Omega - \mu), \quad (11)$$

где учтено, что $E_{l_0-1} + \hbar\Omega(l_0 + 1) = E_{l_0} + \hbar\Omega$. Как следует из этой формулы, при $\mu < E_{l_0} + \hbar\Omega$ ($(l_0 - 1)$ -й излом находится левее резонансной частоты $\Omega(l_0 + 1)$) интенсивность пика поглощения при нулевой температуре и частоте электромагнитного излучения $\omega = \Omega(l_0 + 1)$ имеет вид

$$\frac{\Gamma(\omega = \Omega(l_0 + 1))}{\Gamma_0} = l_0^2 + \frac{(l_0 - 1)^2 l_0}{(l_0 + 1)(1 + \tau^2 \Omega^2)}, \quad (12)$$

а при $\mu > E_{l_0} + \hbar\Omega$ (излом с номером $l_0 - 1$ находится правее резонансной частоты $\Omega(l_0 + 1)$)

$$\Gamma(\Omega(l_0 + 1)) = \Gamma_0 l_0^2.$$

С ростом температуры множитель $f_0(E_{l_0})[1 - E_{l_0+1}]$ в (9) уменьшается и, следовательно, уменьшается интенсивность пика поглощения (рис. 1). Отметим, что величины резонансных частот полностью определяются химическим потенциалом и радиусом сферы. Действительно, из (5) видно, что при низкой температуре резонансы возникают при частотах Ωl_0 и $\Omega(l_0 + 1)$, т.е. их положения зависят от R и l_0 , последняя в свою очередь определяется химическим потенциалом.

3. Изолированная наноструктура

В случае изолированной сферы число электронов в системе $N = \text{const}$ и химический потенциал определяются из условия нормировки. На рис. 4 приведены графики зависимостей μ от N при различных значениях температуры. Из этих графиков видно, что при $T \approx 0$ К химический потенциал располагается очень близко к верхнему занятому уровню. Если электронный уровень E_{l_0} заполнен меньше чем наполовину ($N - 2l_0^2, 2l_0 + 1$), то $\mu < E_{l_0}$. Если число электронов на уровне E_{l_0} больше половины кратности вырождения этого уровня ($N - 2l_0^2 > 2l_0 + 1$),

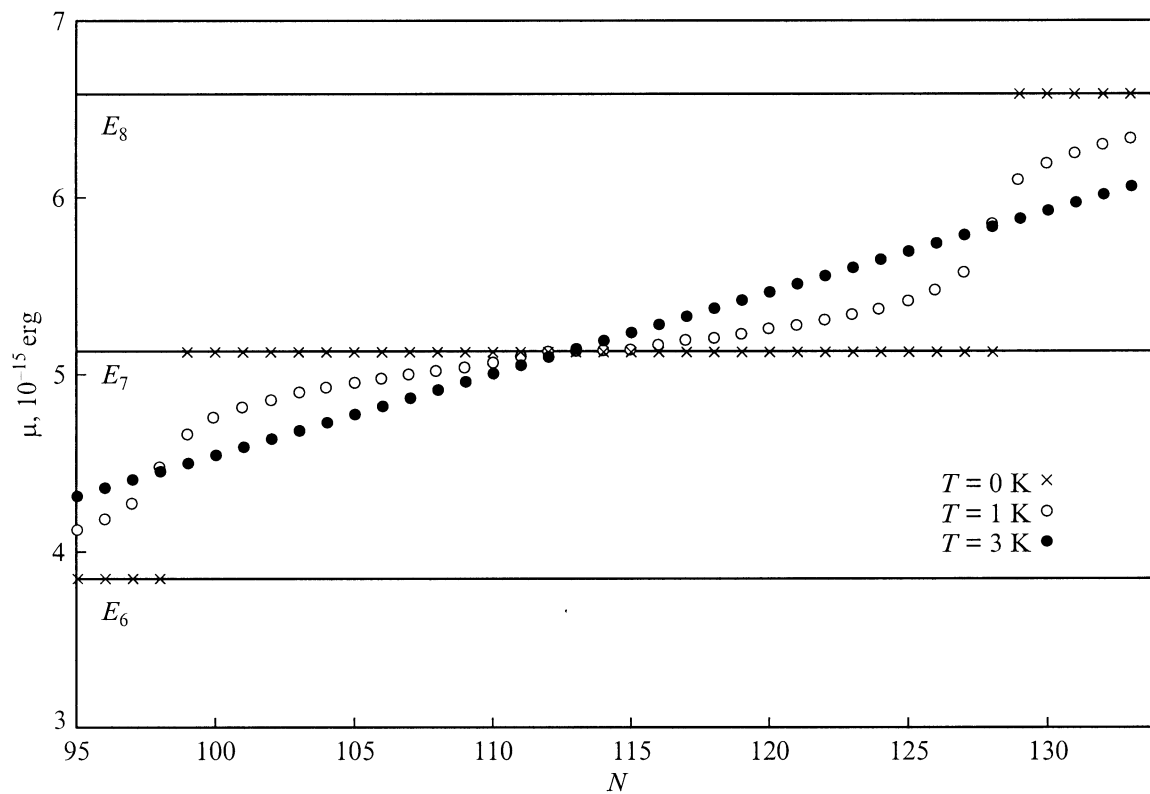


Рис. 4. Зависимость химического потенциала системы от числа электронов на сфере радиуса $R = 10^{-5}$ см.

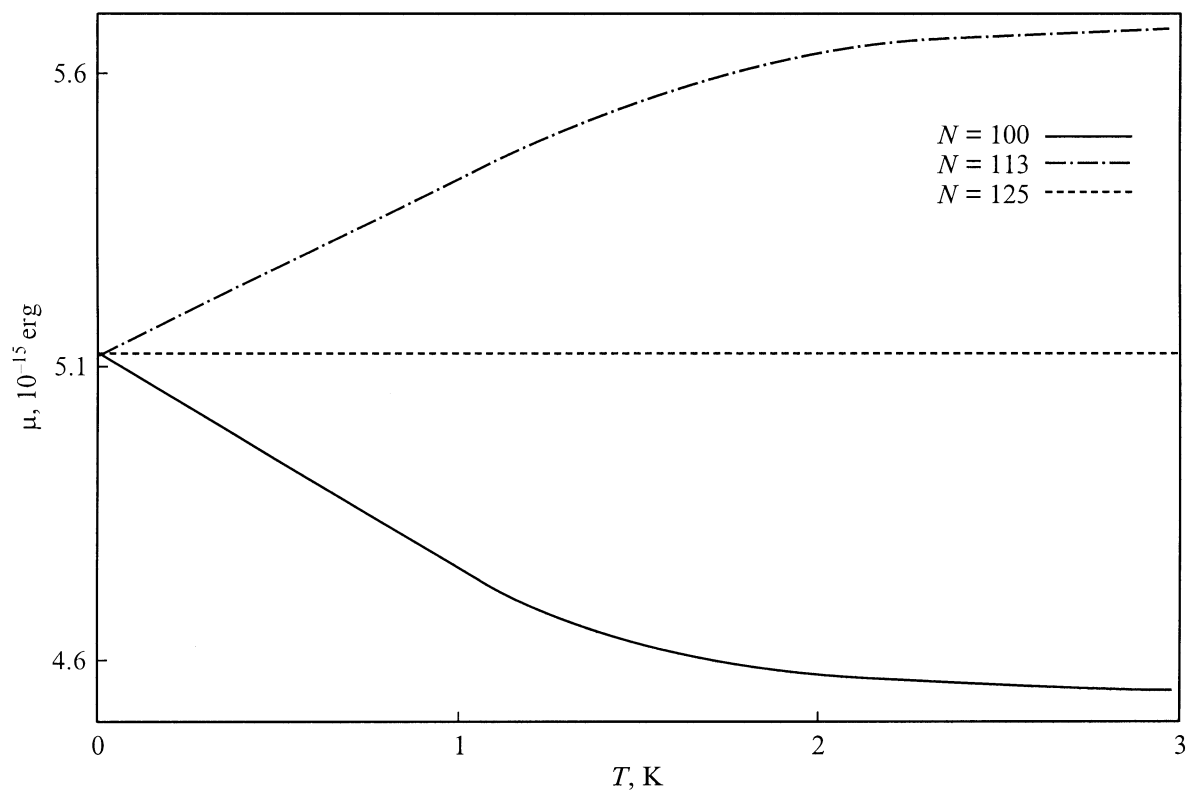


Рис. 5. Зависимость химического потенциала электронного газа на сфере радиуса $R = 10^{-5}$ см от температуры.

то $\mu > E_{l_0}$. В случае когда изменение числа электронов в системе приводит к изменению квантового числа l_0 , в зависимости $\mu(N)$ происходит резкий скачок при $T \approx 0$. Как следует из рис. 4, температура в 1 К заметно сглаживает ступенчатую зависимость, а температура в 3 К полностью замыкает ступени и приводит к почти линейной зависимости $\mu(N)$.

Графики зависимостей химического потенциала от температуры показаны на рис. 5. Отметим, что если уровень E_{l_0} заполнен меньше чем наполовину ($N - 2l_0^2 < 2l_0 + 1$), то химический потенциал является убывающей функцией температуры; если $N - 2l_0^2 > 2l_0 + 1$, то химический потенциал возрастает с увеличением температуры. В случае когда $N - 2l_0^2 = 2l_0 + 1$, химический потенциал практически не зависит от температуры. Как видно из рис. 5, при достаточно низкой температуре ($T < 1$ К) зависимость $\mu(T)$ является линейной. При увеличении температуры линейная зависимость сменяется слабой монотонной зависимостью μ от T . Исходя из рис. 5 и формулы (6), заметим, что при достаточно низких температурах положение изломов изменяется с увеличением T вследствие зависимости химического потенциала от температуры.

Рассмотрим сначала случай заполненной верхней оболочки. Тогда число электронов равно $N = 2(2l_0 + 1)^2$. При $T = 0$ функция распределения есть $f_0(E_{l_0}) = 1$, поэтому формулы (10) и (11) справедливы и для рассматриваемого случая.

При $T = 0$ химический потенциал есть $\mu = E_{l_0}$, тогда

$$\omega_{\text{kin}}(l) = \frac{\Omega}{2} [l_0(l_0 + 1) - l(l + 1)]. \quad (13)$$

Отсюда следует, что излом с номером $l_0 - 1$ в поглощении возникает при частоте электромагнитного излучения $\omega = \Omega l_0$.

Как видно из графика зависимости $\mu(T)$ (рис. 5), при замкнутой электронной оболочке химический потенциал находится выше l_0 -го электронного уровня и расстояние между μ и E_{l_0} увеличивается с увеличением температуры. Таким образом, с ростом температуры изломы сдвигаются в высокочастотную область (рис. 6 и 7). При достаточно низкой, но не нулевой температуре изломы превращаются в пики, которые с дальнейшим увеличением температуры сильно сглаживаются.

Принимая во внимание (10) и (13), оценим поглощение при нулевой температуре

$$\frac{\Gamma(T = 0)}{\Gamma_0} \approx \frac{\Omega}{\omega} \left[\frac{l_0^2(l_0 + 1)}{1 + \tau^2[\omega - \Omega(l_0 + 1)]^2} + \frac{(l_0 - 1)^2 l_0}{1 + \tau^2(\omega - \Omega l_0)^2} \Theta(\omega - \Omega l_0) \right]. \quad (14)$$

Из (14) следует, что интенсивность пика поглощения на резонансной частоте $\omega = \Omega(l_0 + 1)$ такая же, как для постоянного химического потенциала при $\mu < E_{l_0} + \hbar\Omega$ (формула (12)). Как видно из (9), увеличение температуры приводит к уменьшению интенсивности второго

резонансного пика. Отметим, что из-за температурной зависимости химического потенциала при постоянном числе электронов интенсивность второго пика слабее зависит от температуры по сравнению с аналогичной зависимостью для случая постоянного химического потенциала (рис. 1 и 6).

Для величины скачка на изломе при низкой температуре получим оценку

$$\Delta_l \approx 2\Gamma_0 \times \frac{l^2(l + 1)}{[l_0(l_0 + 1) - l(l + 1)] \{1 + \tau^2 \Omega^2 [l_0(l_0 + 1) - (l + 1)(l + 2)]^2 / 4\}}.$$

Из этой формулы следует, что величина скачка на изломе с номером $l_0 - 1$ оценивается формулой

$$\Delta_{l_0-1} \approx \Gamma_0(l_0 - 1)^2.$$

Теперь рассмотрим случай частично заполненной верхней оболочки. Как известно, ступенчатая функция Ферми размыта на величину порядка T . Пусть температурное размытие функции распределения много меньше расстояния между уровнями $\hbar\Omega l_0 / T \gg 1$. Тогда из условия нормировки получим

$$f_0(E_{l_0}) \approx \frac{N - 2l_0^2}{2(2l_0 + 1)}. \quad (15)$$

Здесь $2(2l_0 + 1)$ — кратность вырождения верхнего занятого уровня, $N - 2l_0^2$ — число электронов, находящихся на l_0 -м уровне.

Из (15) следует, что

$$\mu \approx E_{l_0} + T \ln \frac{N - 2l_0^2}{2(2l_0 + 1)^2 - N}. \quad (16)$$

Эта формула хорошо описывает поведение химического потенциала при $T \leq 1$ К (рис. 5). Легко показать, что $2(2l_0 + 1)^2 - N$ есть число свободных состояний на уровне E_{l_0} . Как видно из (16), если верхний занятый уровень заполнен наполовину ($N = 2l_0^2 + 2l_0 + 1$), то $\mu = E_{l_0}$. В случае когда число электронов на l_0 -м уровне больше половины кратности вырождения этого уровня ($N - 2l_0^2 > 2l_0 + 1$), получим $\mu > E_{l_0}$; в противоположном случае $\mu < E_{l_0}$ (рис. 4).

Учитывая (15), получим оценку для поглощения при низкой температуре

$$\frac{\Gamma}{\Gamma_0} \approx \frac{\Omega}{\omega} \left[\frac{(N - 2l_0^2)l_0^2(l_0 + 1)}{2(2l_0 + 1) \{1 + \tau^2[\omega - \Omega(l_0 + 1)]^2\}} + \frac{[1 - f_0(E_{l_0-1} + \hbar\omega)](l_0 - 1)^2 l_0}{1 + \tau^2(\omega - \Omega l_0)^2} \right]. \quad (17)$$

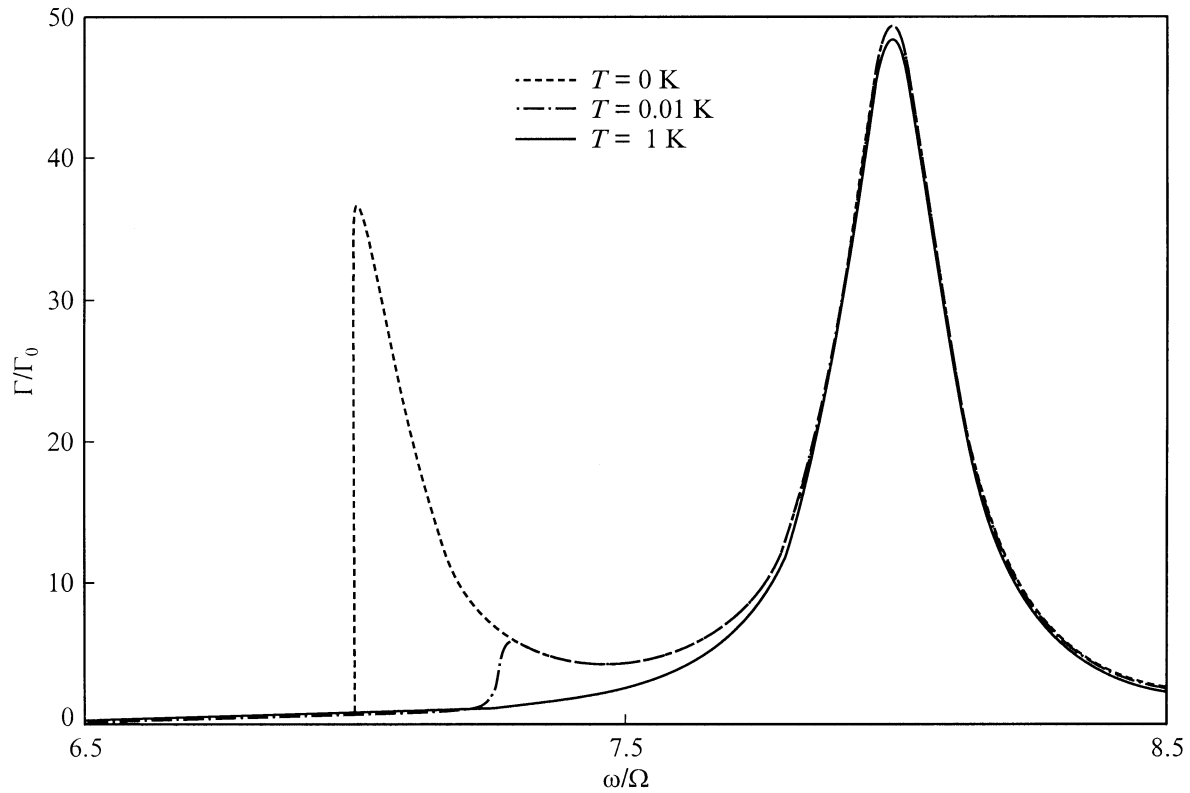


Рис. 6. Изменение положения излома на кривой поглощения при различных значениях температуры (случай полностью заполненной верхней электронной оболочки); $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $N = 128$.

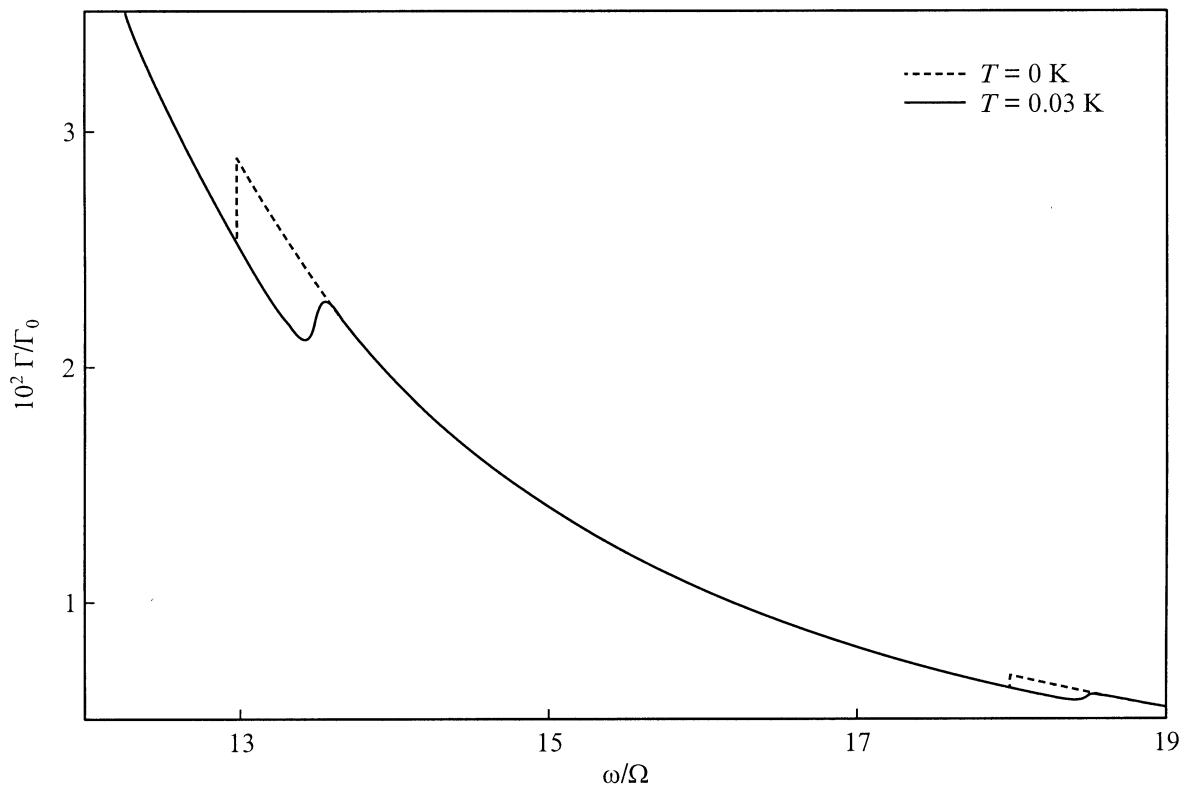


Рис. 7. Сдвиг изломов на кривой поглощения в высокочастотную область с увеличением температуры (случай полностью заполненной верхней электронной оболочки); $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $N = 128$.

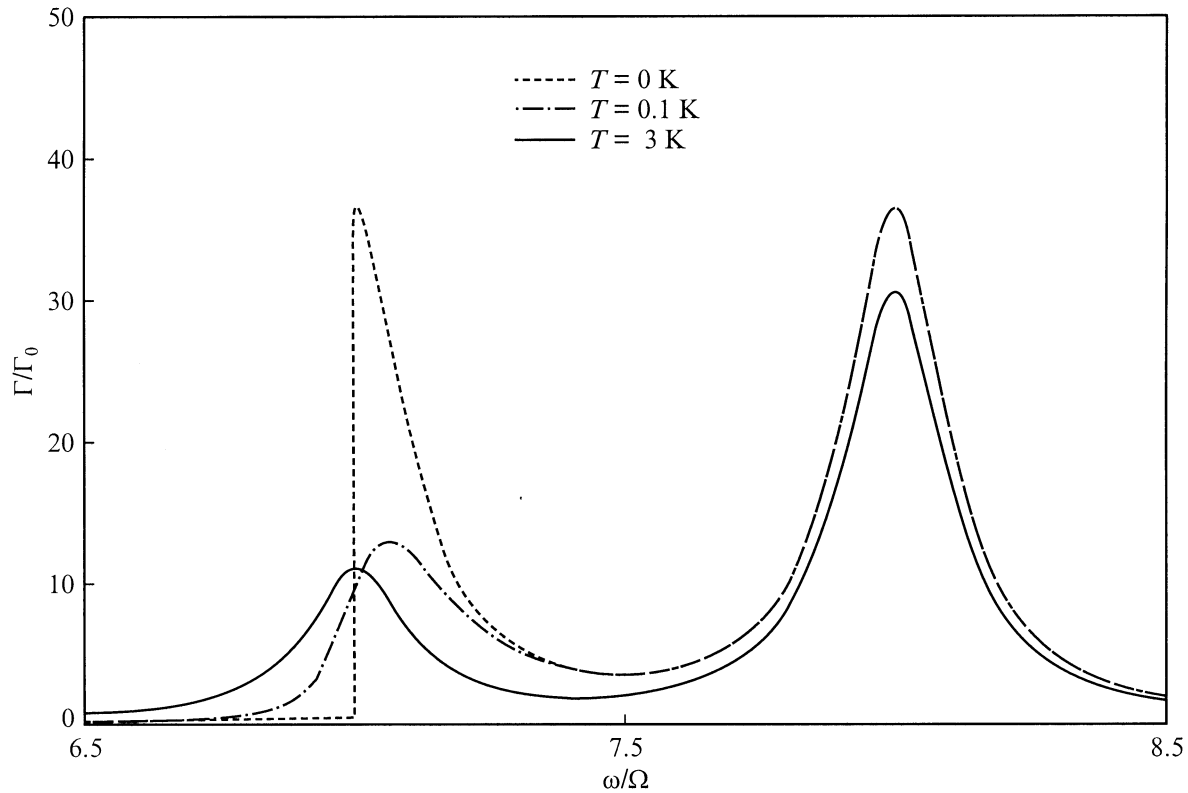


Рис. 8. Кривые поглощения при различных значениях температуры электронного газа на наносфере (случай частично заполненной верхней электронной оболочки); $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $N = 120$.

Исходя из (17), оценим интенсивности пиков поглощения

$$\frac{\Gamma(\omega = \Omega l_0)}{\Gamma_0} \approx \frac{(N - 2l_0^2)l_0(l_0 + 1)}{2(2l_0 + 1)[1 + (\tau\Omega)^2]} + \frac{[2(l_0 + 1)^2 - N](l_0 - 1)^2}{2(2l_0 + 1)},$$

$$\frac{\Gamma(\omega = \Omega(l_0 + 1))}{\Gamma_0} \approx \frac{N - 2l_0^2}{2(2l_0 + 1)} l_0^2 + \frac{l_0(l_0 - 1)^2}{(l_0 + 1)[1 + (\tau\Omega)^2]}.$$

Следует отметить, что при нулевой температуре вместо первого пика имеется излом с величиной скачка $\Gamma_0(l_0 - 1)^2$ (рис. 8). Из оценок интенсивностей пиков следует, что в области линейной зависимости химического потенциала от температуры, т.е. в области, где справедлива формула (16), интенсивность второго пика не зависит от температуры. Дальнейшее увеличение T приводит к уменьшению интенсивности второго пика поглощения (рис. 8).

4. Обсуждение результатов

Вначале рассмотрим результаты для случая постоянного химического потенциала системы. Как отмечалось выше, при нулевой температуре на кривой поглощения

имеется один резонансный пик при $\omega = \Omega(l_0 + 1)$. Интенсивность пика определяется орбитальным квантовым числом верхней занятой оболочки l_0 , радиусом сферы R и временем релаксации τ . При увеличении температуры высота этого пика уменьшается и появляются новые резонансные пики из-за электронных переходов с уровня E_{l_0-1} на E_{l_0} , а также с уровня E_{l_0-2} на E_{l_0-1} или с E_{l_0+1} на E_{l_0+2} и так далее (рис. 1). При нулевой температуре на кривой поглощения имеются резкие изломы, возникающие при пересечении электронных энергетических уровней с уровнем $\mu - \hbar\omega$. Положение изломов зависит от величины химического потенциала и номера электронного уровня. Если при изменении величины химического потенциала не изменяется квантовое число l_0 , то изменяются только положение излома и величина скачка на изломе, поэтому по обе стороны от изломов кривые поглощения при разной μ совпадают (рис. 3). С ростом температуры положение изломов не изменяется, но даже небольшое увеличение температуры приводит к заметному сглаживанию изломов (рис. 2).

Различное поведение поглощения в случаях μ и $N = \text{const}$ в основном является следствием двух обстоятельств. Во-первых, химический потенциал в случае постоянного числа частиц зависит от температуры. В случае изолированной сферы и полностью заполненной верхней электронной оболочки интенсивность пика при резонансной частоте $\omega = \Omega(l_0 + 1)$ при $T = 0$

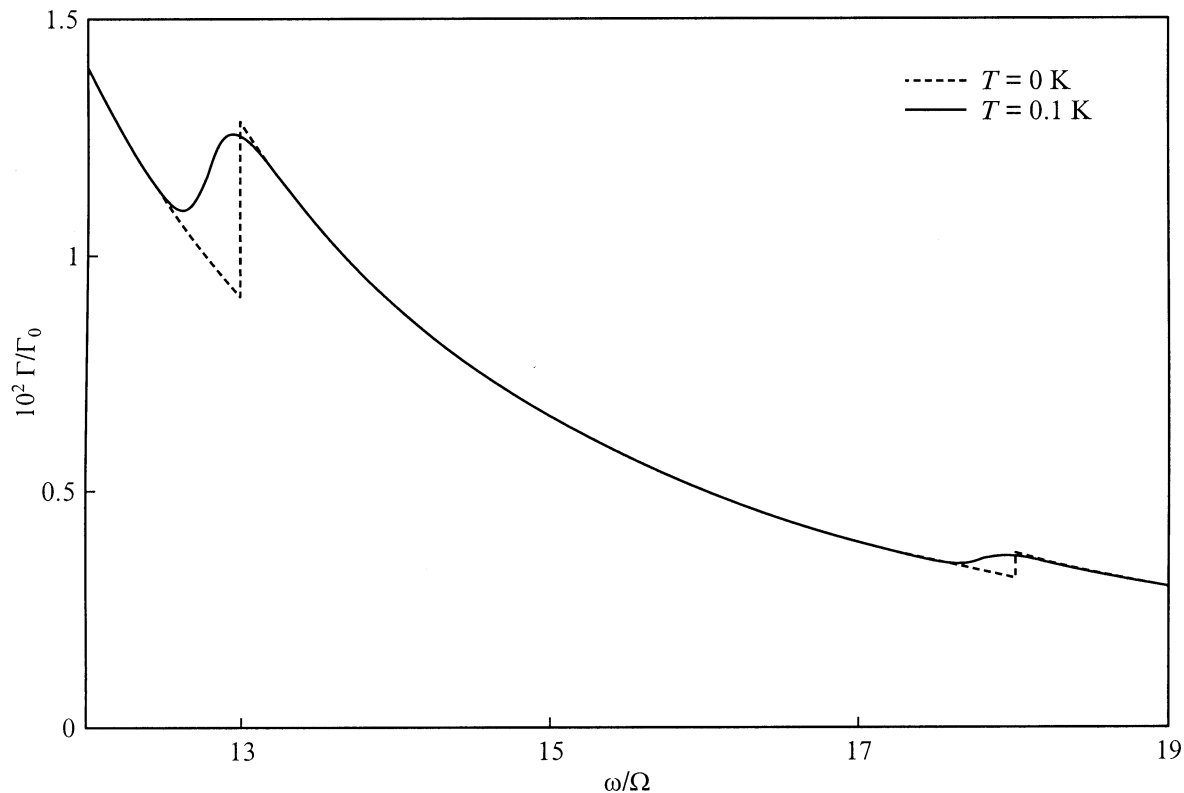


Рис. 9. Сдвиг изломов на кривой поглощения в низкочастотную область с увеличением температуры (число электронов на уровне E_{l_0} меньше половины кратности вырождения уровня); $R = 10^{-5}$ см, $\tau = 5 \times 10^{-11}$ с, $N = 100$.

такая же, как и для случая сферы в термостате при $\mu < E_{l_0} + \hbar\Omega$ (формула (12)). Увеличение температуры приводит к увеличению величины химического потенциала (рис. 5). Из-за этого в области линейной зависимости $\mu(T)$ интенсивность пика при $\omega = \Omega(l_0 + 1)$ практически не зависит от температуры в отличие от сферы в термостате (рис. 1 и 6). Поскольку при заполненной верхней электронной оболочке химический потенциал возрастает с увеличением температуры, с ростом температуры изломы сдвигаются в высокочастотную область (рис. 6 и 7). Заметим, что в случае $\mu = \text{const}$ положение изломов не зависит от температуры (рис. 2).

Во-вторых, в отличие от случая постоянного химического потенциала при постоянном числе частиц верхний, занятый электронами энергетический уровень, может быть частично заполненным при нулевой температуре. Если электронная оболочка с $l = l_0$ частично заполнена, то при нулевой температуре интенсивность пиков поглощения зависит от числа электронов в этой оболочке, равного $N - 2l_0^2$. В случае когда $N - 2l_0^2 < 2l_0 + 1$ (число электронов на уровне E_{l_0} меньше половины кратности вырождения уровня), с увеличением температуры химический потенциал убывает, следовательно, изломы сдвигаются в низкочастотную область (рис. 9). При $N - 2l_0^2 > 2l_0 + 1$ изломы ведут себя так же, как в случае заполненной верхней оболочки (рис. 6 и 7).

Если уровень E_{l_0} заполнен наполовину ($N = 2l_0^2 + 2l_0 + 1$), то $\mu \approx E_{l_0}$ и положение изломов не изменяется с температурой.

Список литературы

- [1] C.B. Murray, D.J. Norris, M.G. Bawendi. *J. Am. Chem. Soc.* **11**, 8706 (1993).
- [2] R.C. Salvarezza, L. Vázquez, H. Miguez, R. Mayoral, C. López, F. Meseguer. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 22, 4572 (1996).
- [3] Yu.A. Vlasov, V.N. Astratov, O.Z. Karimov, A.A. Kaplyanskii, V.N. Bogomolov, A.V. Prokofiev. *Phys. Rev.* **B55**, 20, R13357 (1997).
- [4] J.B. Xia, J. Li. *Phys. Rev.* **B60**, 16, 11 540 (1999).
- [5] S.S. Martinos. *Phys. Rev.* **B39**, 2, 1363 (1989).
- [6] R. Ruppin. *Phys. Rev.* **B45**, 19, 11 209 (1992).
- [7] Б.М. Смирнов, X. Вайделе. *ЖЭТФ* **116**, 6, 1903 (1999).
- [8] G. Mie. *Ann. Phys. (Leipzig)* **25**, 377 (1908).
- [9] V. Albe, C. Jouanin, D. Bertho. *Phys. Rev.* **B58**, 8, 4713 (1998).
- [10] F. Claro, R. Fuchs. *Phys. Rev.* **B33**, 12, 7956 (1986).
- [11] A. Taleb, V. Russier, A. Courty, M.P. Pileni. *Phys. Rev.* **B59**, 20, 13 350 (1999).
- [12] D.J. Bergman, O. Levy, D. Stroud. *Phys. Rev.* **B49**, 1, 129 (1994).
- [13] H. Miguez, A. Blanco, F. Meseguer, C. López, H.M. Yates, M.E. Pemble, V. Fornés, A. Mifsud. *Phys. Rev.* **B59**, 3, 1563 (1999).

- [14] V. Yannopoulos, A. Modinos, N. Stefanou. Phys. Rev. **B60**, 8, 5359 (1999).
- [15] K. Ohtaka, Y. Suda, S. Nagano, T. Ueta, A. Imada, T. Koda, J.S. Bae, K. Mizuno, S. Yano, Y. Segawa. Phys. Rev. **B61**, 8, 5267 (2000).
- [16] M.A. Hines, P. Guyot-Sionnest. J. Phys. Chem. **100**, 468 (1996).
- [17] H.S. Zhou, I. Honma, H. Komiyama, J.W. Haus. Phys. Rev. **B50**, 16, 12 052 (1994).
- [18] R.D. Averitt, D. Sarkar, N.J. Halas. Phys. Rev. Lett. **78**, 22, 4217 (1997).
- [19] R.D. Averitt, S.L. Westcott, N.J. Halas. Phys. Rev. **B58**, 16, R10203 (1998).
- [20] J.J. Diao, G.D. Chen. J. Phys. D: Appl. Phys. **34**, L79 (2001).
- [21] N. Kalyaniwalla, J.W. Haus, R. Inguva, M.H. Birnboim. Phys. Rev. **A42**, 9, 5613 (1990).
- [22] L. Fu, L. Resca. Phys. Rev. **B56**, 17, 10 963 (1997).
- [23] R. Rojas, F. Claro, R. Fuchs. Phys. Rev. **B37**, 12, 6799 (1988).
- [24] L. Brey, N.F. Johnson, B.I. Halperin. Phys. Rev. **B40**, 15, 10 647 (1989).
- [25] В.А. Маргулис. ЖЭТФ **111**, 3, 1092 (1997).
- [26] Н.Г. Галкин, В.А. Маргулис, А.В. Шорохов. ФТТ **43**, 3, 511 (2001).
- [27] V.A. Geyler, V.A. Margulis, A.V. Shorokhov. Phys. Rev. **B63**, 245 316 (2001).
- [28] В.Я. Демиковский, А.А. Перов. ЖЭТФ **114**, 5, 1795 (1998).
- [29] D.N. Aristov. Письма в ЖЭТФ **70**, 6, 405 (1999).
- [30] P. Malits, I.D. Vagner. J. Phys. A: Math. Gen. **32**, 1507 (1999).
- [31] H. Aoki, H. Suezawa. Phys. Rev. **A46**, 3, R1163 (1992).
- [32] Ju.H. Kim, I.D. Vagner, B. Sundaram. Phys. Rev. **B46**, 15, 9501 (1992).
- [33] D.N. Aristov. Phys. Rev. **B59**, 9, 6368 (1999).
- [34] D.V. Bulaev, V.A. Geyler, V.A. Margulis. Phys. Rev. **B62**, 17, 11 517 (2000).
- [35] C.L. Foden, M.L. Leadbeater, M. Pepper. Phys. Rev. **B52**, 12, R8646 (1995).
- [36] A. Wójs, J.J. Quinn. Physica **E3**, 181 (1998).
- [37] M.V. Entin, L.I. Magarill. Phys. Rev. **B64**. 085 330 (2001).
- [38] Ф.Г. Басс, И.Б. Левинсон. ЖЭТФ **49**, 3, 914 (1965).
- [39] И.А. Квасников. Термодинамика и статистическая физика. Теория равновесных систем. МГУ, М. (1991).