

12 К вопросу о позитронных состояниях в металл-диэлектрических наносандвичах

© А.В. Бабич, П.В. Вакула, В.В. Погосов

Запорожский национальный технический университет,
Запорожье, Украина

E-mail: vpogosov@zntu.edu.ua

(Поступила в Редакцию 19 мая 2014 г.)

В рамках предложенных ранее нами моделей выполнены самосогласованные вычисления профилей потенциалов, волновых функций, энергий поверхностных подзон и времени жизни позитронов в нанопленках алюминия, граничащих с диэлектриками (твердые инертные газы и SiO₂). Исследованы размерные эффекты, влияние эффективных масс электронов и позитронов на энергетические и аннигиляционные характеристики в системах с двойными потенциальными ямами, обусловленными потенциалами изображения. Обсуждается возможность локализации атома позитрония в наносандвичах.

Работа выполнена при частичном финансировании Министерства науки и образования Украины (проект № 04313).

1. Пучки медленных позитронов используются для диагностики структуры твердых тел, нанообъектов, в том числе с помощью позитронного микроскопа. Инжектированные позитроны в приповерхностной области металлов и их окислов [1–3] способны образовывать атомы позитрония (Ps) со спектром экситонного типа.

Определенный интерес в литературе уделяется определению энергии связи и времени жизни атомов Ps вблизи поверхности α -SiO₂ [4–7], исследованию транспорта позитронов в системах металл-оксид-полупроводник [8,9], а также твердых инертных газов, которые используются в качестве модераторов для позитронных пучков.

В работе [10] сообщается об обнаружении молекулы Ps₂ в нанопорах Si, а в работе [11] — об образовании капель экситонов в охлажденном GaAs под действием лазерных импульсов. Это делает, например, привлекательным поиск условий и структур для возможной бозе-эйнштейновской конденсации атомов позитрония и электрон-позитронных капель [12]. Такими объектами могут быть металл-диэлектрические наносандвичи.

В настоящей работе проведены самосогласованные вычисления волновых функций, энергий связи и времен жизни позитронов, локализованных на потенциалах изображения нанопленок алюминия в контакте с диэлектриками. Обсуждается влияние эффективных масс электронов и позитронов на энергетические и аннигиляционные характеристики позитрона.

2. Диэлектрики по обе стороны металлической пленки (рис. 1) описываются диэлектрическими постоянными ϵ и глубинами залегания дна зоны проводимости электронов ($-\chi_e$) и позитронов ($-\chi_p$) по отношению к вакуумному уровню (в литературе величину χ называют работой выхода и часто обозначают как $-V_0$ или W). Состояние электронов металлической нанопленки в металл-диэлектрических наносандвичах моделируются в рамках

подхода работ [13,14]. На основании этой расчетной схемы, а также метода определения позитронных состояний вблизи плоской металлической поверхности [15], рассчитываются энергии связи и время жизни позитрона.

Эффективный одноэлектронный потенциал определяем в виде суммы электростатического и обменно-корреляционного потенциалов и стабилизационной компоненты:

$$v_{\text{eff}}^e = +e\phi(z) + v_{\text{xc}}^e(z) + \langle \delta v \rangle_{\text{face}}^e \theta(L/2 - |z|), \quad (1)$$

где $(-e)$ — заряд электрона, $\langle \delta v \rangle_{\text{face}}^e$ — стабилизационный потенциал для определенной кристаллической грани поверхности, $\theta(x)$ — единичная ступенчатая функция Хевисайда. Решая уравнения Кона–Шема совместно с уравнением Пуассона, находим оптимальные распределения электронов $n_e(z)$, электростатического $\phi(z)$ и эффективного $v_{\text{eff}}^e(z)$ потенциалов для системы диэлектрик/пленка/диэлектрик [14] в отсутствие позитрона.

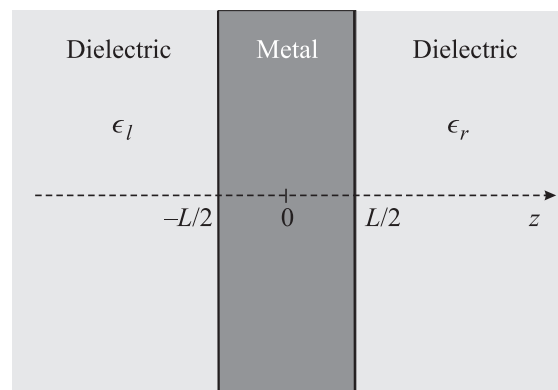


Рис. 1. Геометрическая схема сандвича.

Поместим в данную структуру позитрон. Его состояние описывается эффективным потенциалом

$$v_{\text{эф}}^p(z) = -e\phi(z) + E_0\theta(L/2 - |z|) + v_{\text{кор}}^{p-e}(z), \quad (2)$$

где второе слагаемое соответствует неэлектростатическому позитрон-ионному взаимодействию в каждой из ячеек Вигнера–Зейтца металла [15,16], а третье — позитрон-электронным корреляциям. Как и в работе [15], используются недеформированные позитроном распределения $n_e(z)$ и $\phi(z)$, т.е. $\phi(z)$ в выражениях (1) и (2) одинаковы. Конкуренция слагаемых в (2) приводит к тому, что на границах контактов реализуются потенциальные ямы для позитрона.

Схема учета потенциалов изображения в $v_{\text{xc}}^e(z)$ для сэндвичей взята из [14], а в $v_{\text{кор}}^{p-e}(z)$ для позитрона вблизи плоской поверхности полубесконечного металла — из [15]. Адаптируя подход [15] для сэндвичей (рис. 1), имеем

$$v_{\text{кор}}^{p-e}(z) = \begin{cases} -\chi_p^l - \frac{e^2}{4\epsilon_l(Z^l - z)}, & z \leq Z_{\text{cut}}^l, \\ v_{\text{кор,LD}}^{p-e}(Z^l), & Z_{\text{cut}}^l \leq z \leq Z^l, \\ v_{\text{кор,LD}}^{p-e}(z), & Z^l \leq z \leq Z^r, \\ v_{\text{кор,LD}}^{p-e}(Z^r), & Z^r \leq z \leq Z_{\text{cut}}^r, \\ -\chi_p^r - \frac{e^2}{4\epsilon_r(z - Z^r)}, & z \geq Z_{\text{cut}}^r, \end{cases} \quad (3)$$

где $Z^l = -L/2 - z_0^l$, $Z^r = L/2 + z_0^r$ — положения плоскостей изображений ($z_0^{l,r} > 0$), $v_{\text{кор,LD}}^{p-e}(z)$ — потенциал, рассчитанный в приближении локальной плотности. Выражения для радиусов обрезания имеют вид

$$Z_{\text{cut}}^{l,r} = \frac{\pm e^2}{4\epsilon_l[v_{\text{кор,LD}}^{p-e}(Z^{l,r}) + \chi_p^{l,r}]} + Z^{l,r},$$

где знаки (+) и (−) для Z_{cut}^l и Z_{cut}^r соответственно. Силы изображения для электрона и позитрона, согласно классической электродинамике, должны быть одинаковы. Поэтому мы предполагаем, что положения их плоскостей изображения также будут одинаковыми. Вследствие этого значения $z_0^{l,r}$ для $v_{\text{кор}}^{p-e}(z)$ совпадают с аналогичными, вычисленными в [14] для $v_{\text{xc}}^e(z)$.

Собственная энергия позитрона записывается в виде

$$\varepsilon_{jk\parallel}^p = \varepsilon_j^p + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_p}, \quad k_{\parallel}^2 = k_x^2 + k_y^2, \quad (4)$$

где ε_j^p — энергия j -й поверхностной позитронной подзоны, которой соответствует волновая функция $\psi_j^p(z)$.

Решение задачи по нахождению спектра электрона в металлической пластинке детально описано в [13]. Данный метод непригоден для численного поиска позитронных состояний. Для позитрона уравнение Шредингера решено с помощью Т-матрицы переноса, связывающей волны, падающие на барьер справа налево и слева направо.

Для этого область неоднородности потенциального профиля $v_{\text{эф}}^p(z)$ была разбита на $N \approx 10^3$ частей, в каждой из которых потенциал считался неизменным.

Скорость аннигиляции позитрона λ определяется суммой скоростей в металлической пластинке λ^{A1} и диэлектриках λ^d ; $\lambda^d \ll \lambda^{A1}$ в силу отсутствия собственных свободных электронов в диэлектрике. Поэтому время жизни позитрона в наносэндвичах $\tau = \lambda^{-1}$ определяется только одномерными распределениями электронов проводимости металлической пленки $n_e(z)$ и локализованного позитрона $n_j^p(z) = |\psi_j^p(z)|^2$:

$$\tau_j^{-1} = \pi r_0^2 c \int dz n_e(z) n_j^p(z) \Gamma(n_e(z)), \quad (5)$$

где r_0 — классический радиус электрона, c — скорость света, Γ — фактор усиления для позитрона в квазиоднородном электронном газе концентрации $n_e(z)$. Напомним, что $n_e(z)$ рассчитывается самосогласованно с учетом электронных подзон, энергии которых ε_i^e [13].

Оценим влияние эффективных масс на расчетные характеристики, например, для системы вакуум/Al/SiO₂. Для такой системы $\epsilon_l = 1$ и $\chi_e^l = \chi_p^l = 0$.

3. Учет эффективной массы будем производить по аналогии с тем, как это принято в гетероструктурах.

В области вакуума ($z < -L/2$) $m_p^* = m_e^* = m$, m — масса электрона в вакууме.

В работе [17] для металлов с кубической решеткой вычислены значения эффективной массы $m_p^* = 1.15m$, а в работе [18] для всех твердых тел используется значение $m_p^* = 1.5m$. В случае металлических нанопленок для вычислений энергии основного состояния будет оправданным использование величины $m_p^* = m$, если речь идет о единичных позитронах. Причины такого выбора в следующем. Для вычисления энергий поверхностных подзон требуется решить одномерное волновое уравнение вдоль оси z с соответствующей компонентой тензора эффективной массы. Вследствие того, что наибольший интерес представляют пленки со счетным количеством монослоев (ML), т.е. с толщиной много меньше длины свободного пробега позитрона, в области $-L/2 < z < L/2$ выбираем $m_p^* = m_e^* = m$. В направлениях x и y отличные от m компоненты тензора массы повлияют только на плотность состояний позитронов, но не на энергии подзон.

Эффективная масса позитрона m_p^* в SiO₂ определялась нами по эффективной массе атома позитрония $M_{\text{Ps}}^* = m_e^* + m_p^*$. Следуя измерениям [19] и оценкам в [20], находим $M_{\text{Ps}}^* = 2.84m$. В области $z > L/2$, используя рекомендуемое в [21] значение $m_e^* = 0.42m$, имеем $m_p^* = 2.42m$. С целью тигирования этих значений можно определить энергию связи Ps в объеме SiO₂

$$E_B = \frac{\text{Ry}}{c^2} \frac{m_e^* m_p^*}{m_e^* + m_p^*}, \quad \text{Ry} = 13.6 \text{ eV}.$$

Полученная величина $E_B = 0.304 \text{ eV}$ примерно в два раза больше экспериментальной [4] и вычисленной в [7] для Ps на поверхности SiO₂.

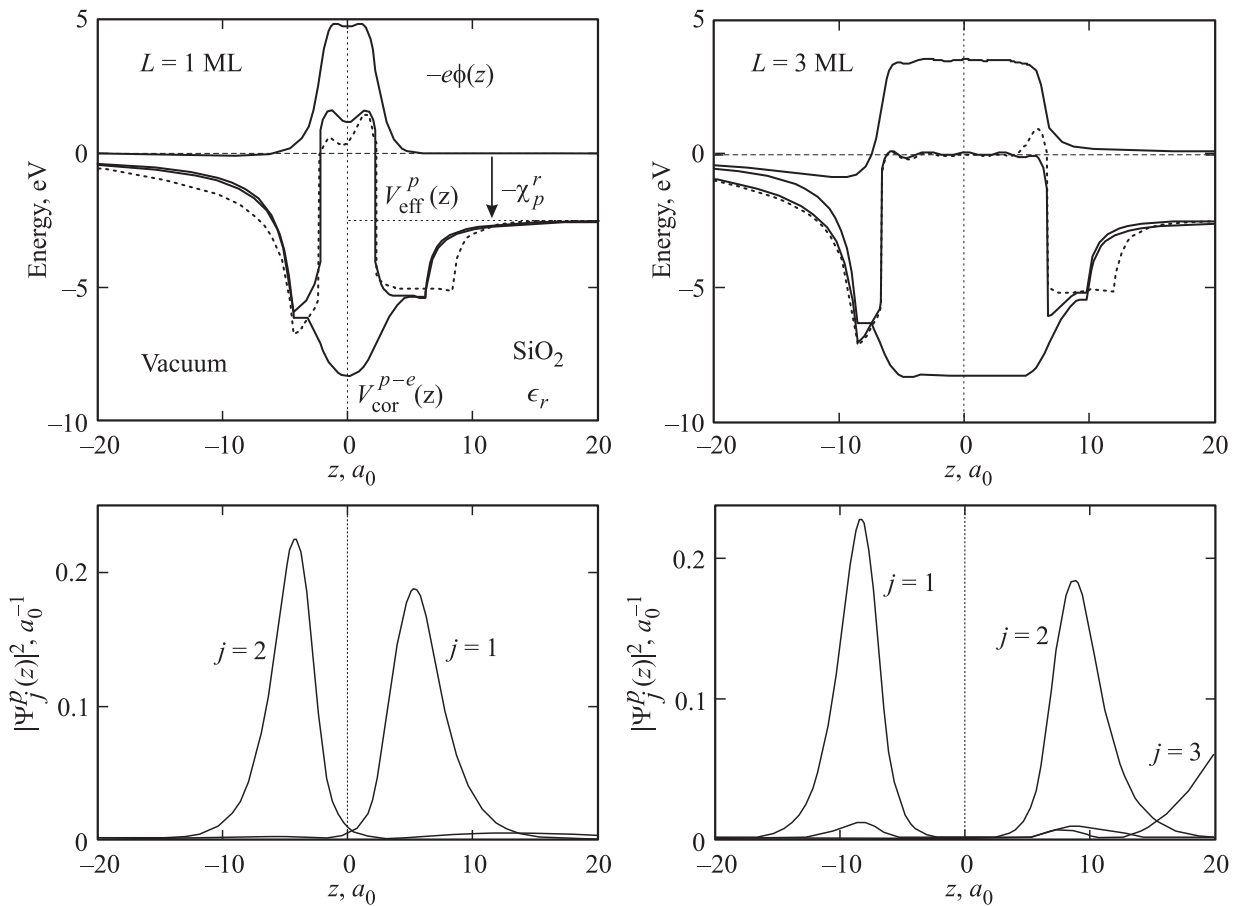


Рис. 2. Самоогласованные профили электростатического (с обратным знаком), корреляционного и эффективного потенциалов позитрона, а также его пространственного распределения $|\psi_j^p(z)|^2$ для пленки вакуум/Al(111)/SiO₂. j — номер подзоны. Толщина пленки Al $L = 1$ и 3 ML. Пунктирными линиями показан расчет с учетом эффективных масс.

Заметим, что в результате введения эффективной массы электрона заново пересчитывается „электронная“ часть задачи, т. е. потенциалы (1), а затем и (2) соответственно.

4. Вводимыми параметрами для вычислений являются величины ϵ_r , χ_e^r и χ_p^r : значения ϵ_r и χ_e^r для используемых диэлектриков приведены в [14], а $\chi_p^r = (0.6, 1.55, 2, 2.3)$ eV для Ne, Ag, Kr, Xe соответственно взяты из обзора [3].

Вследствие того, что экспериментальное значение χ_p для SiO₂ неизвестно, мы оценивали его, используя цикл Борна

$$\chi_{Ps} - \chi_e - \chi_p + Ry/2 = 0,$$

где χ_{Ps} — работа выхода атома позитрония из SiO₂ в вакуум. В качестве допущения здесь предполагается, что в SiO₂ электрон находится у дна зоны проводимости. Используя для SiO₂ экспериментальные значения работ выхода $\chi_{Ps} = -3.27$ eV [4] и $\chi_e = 1.1$ eV, получим $\chi_p^r = 2.43$ eV.

На рис. 2 и 3 сплошные линии соответствуют самоогласованному вычислению, выполненным с $m_e = m_p = m$, а пунктирные линии — с $m_e^* = 0.42m$ и $m_p^* = 2.42m$ в области SiO₂.

На рис. 2 приведены пространственные распределения компонент потенциалов позитрона (2) и самого позитрона для пленок алюминия толщины $L = 1$ и 3 ML, $1 \text{ ML} = 4.4a_0$.

Вследствие того, что распределение потенциала $\phi(z)$ в области вакуума ($z < -L/2$) имеет максимум (потенциальный бугор [14]), зависимость $-\phi(z)$ соответственно имеет минимум, что и наблюдается на рис. 2. Его глубина возрастает с увеличением разности между величинами ϵ_l и ϵ_r [13], и увеличением толщины пленки L .

Энергетическая диаграмма $v_{\text{eff}}^p(z)$ позитрона в системе вакуум/Al(111)/SiO₂ представляет собой две потенциальные ямы, разделенные барьером. В тех случаях, когда реализуются две и более позитронные подзоны, наблюдаются „квазидублетные“ состояния (ямы неодинаковы). На рис. 2 приведены также профили позитронных распределений $n_j^p(z)$ или квадраты волновых функций. Волновые функции квазидублетных состояний почти симметричны относительно начала координат и имеют близкие максимумы в разных ямах. Интересно отметить, что центры тяжести волновых функций для $j = 1$ и 2 меняются местами при переходе от толщины $L = 1 \text{ ML}$ к 3 ML. В пленке с $L = 3 \text{ ML}$ уже реализуется

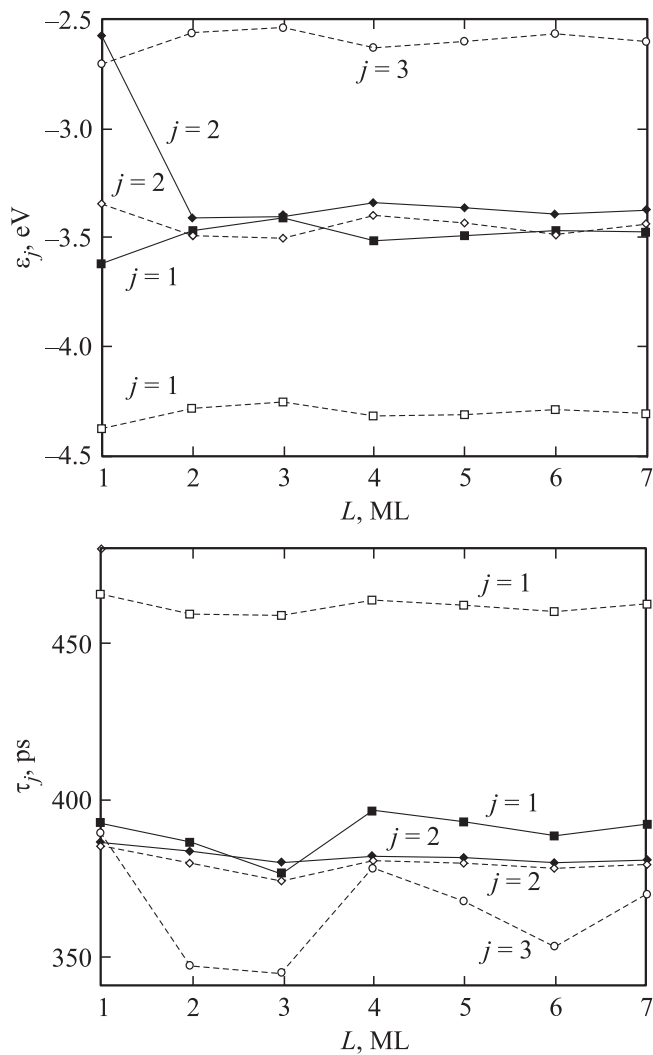


Рис. 3. Размерные зависимости энергий подзон и времен жизни позитрона для пленки вакуум/Al(111)/SiO₂. Пунктирными линиями показан расчет с учетом эффективных масс.

три подзоны; верхняя подзона с энергией $\varepsilon_3^p \approx -\chi_p^r$ располагается чуть ниже дна зоны проводимости позитрона в SiO₂, поэтому максимум распределения $n_3^p(z)$ сдвинут в глубину SiO₂. Размерное поведение энергий подзон проиллюстрировано на рис. 3. Энергии квазидублетных состояний $j = 1$ и 2 имеют тенденцию к сближению по мере увеличения L .

Введение эффективных масс $m_e^* \neq m$ и $m_p^* \neq m$ разрушает дублетность состояний, и между ними возникает значительная энергетическая щель (пунктирные линии на рис. 3). При этом энергии с нечетными j смещаются вниз, а с четными j — вверх по шкале энергий, т.е. выталкиваются из ямы. На рис. 2 приведен профиль эффективного потенциала $v_{\text{eff}}^p(z)$ (пунктирная линия) для этого варианта вычислений. Введение эффективных масс приводит к деформации потенциального барьера и увеличению обеих ям вблизи поверхности пленки. Обнаруженные размерные зависимости энергий пози-

тронных подзон могут быть в дальнейшем предметом экспериментальных оптических исследований.

На рис. 3 приведены также размерные зависимости времен жизни позитрона для двух подзон: $j = 1$ и 2 . Во-первых, здесь следует отметить, что зависимости энергий $\varepsilon_j^p(L)$ и времен жизни $\tau_j(L)$ асимметричны, а во-вторых, что время жизни является измеряемой характеристикой, поэтому заметное размерное поведение и существенное влияние эффективных масс может быть детально исследовано экспериментально. Интересно сравнить полученные значения с расчетом в [15] для контакта алюминий–вакуум ($\tau_1 = 334$ ps). Разница составляет десятки пикосекунд, при экспериментальной точности измерений в 1 ps.

Рис. 4 содержит информацию для структур вакуум/Al(111)/твердые инертные газы, аналогичную представленной на рис. 3 для $j = 1$ и 2 при условии $m_e = m_p = m$. Дублетность состояний для данных изоляторов менее выражена, однако размерная зависимость

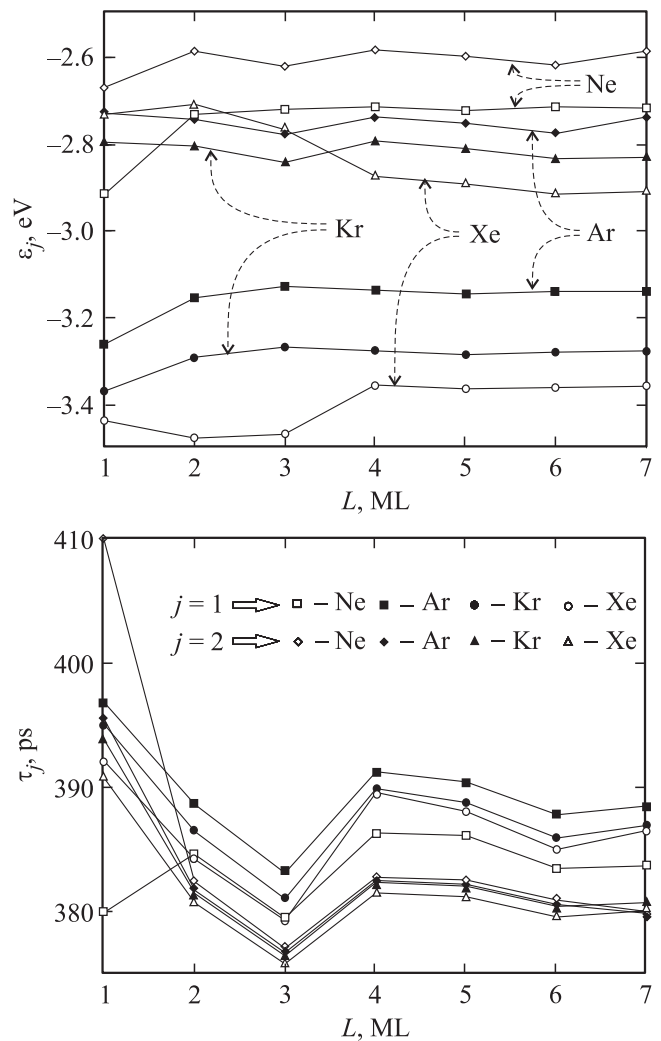


Рис. 4. Размерные зависимости энергий подзон и времен жизни позитрона для пленки Al(111) в контакте с твердыми инертными газами.

времен жизни более значительна, чем на рис. 2. При толщинах пленки $L > 1 \text{ ML}$ и контакте с Ne, Ar, Kr и Xe значения τ_j отличаются примерно на 10 ps.

Если пленку поместить между двумя изоляторами, то результаты вычислений определяются соотношением характеристик диэлектриков и Al, и вряд ли претерпят принципиальные изменения. От сорта металла зависит величина барьера между двумя ямами. Если заменить Al, например, на Na, барьер фактически исчезает, и ямы объединяются.

Отметим также, что при протекании тока в неидеальных металл-диэлектрических контактах часть внешних электронов захватывается ловушками вблизи поверхности металла. Создаваемый ими дополнительно потенциал будет содействовать локализации позитронов.

В заключение определим работу выхода атома позитрония W_{Ps} в вакуум, например, для системы вакуум/Al(111)/SiO₂, воспользовавшись циклом Борна: $W_{\text{Ps}}(L) = W_e(L) - \varepsilon_1^p(L) - Ry/2$. Здесь $W_e(L)$ — работа выхода электронов для этой же системы в отсутствие позитрона. Воспользовавшись табл. 2 из нашей работы [14], имеем $W_e(L) = 3.43, 3.26, 2.94, 3.17 \text{ eV}$ для $L = 1, 2, 3, 7 \text{ ML}$ соответственно. Значения энергии основного состояния позитрона $\varepsilon_1^p(L)$ приведены на рис. 3. В результате имеем $W_{\text{Ps}}(L) = +0.25, -0.08, -0.45, -0.16 \text{ eV}$ для $L = 1, 2, 3, 7 \text{ ML}$ соответственно. Напомним, что если $W_{\text{Ps}} > 0$, то атом Ps локализуется в системе, что и происходит при $L = 1 \text{ ML}$. Сравнение значения W_{Ps} для $L = 1 \text{ ML}$ с экспериментальным значением работы выхода $\chi_{\text{Ps}} = -3.27 \text{ eV}$ [4] для системы вакуум/SiO₂ указывает на то, что позитронный заперт и со стороны SiO₂. Эти оценки сделаны в предположении $m_p^* = m_e^* = m$. Введение эффективных масс $m_e^* \neq m$ и $m_p^* \neq m$ делает возможной локализацию при любых L .

Следовательно, можно сделать оптимистичный вывод о способности металл-диэлектрических наносандвичей к конденсации атомов позитрония.

Эффекта локализации позитронов и атомов позитрония в поверхностном потенциале можно ожидать и для кластеров металлов, внедренных в диэлектрические матрицы.

Список литературы

- [1] R. Paulin, G. Ambrosino. J. Phys (Paris) **29**, 263 (1968).
- [2] S.M. Curry, A.L. Schawlow. Phys. Lett. A **37**, 5 (1971).
- [3] P.J. Schultz, K.G. Lynn. Rev. Mod. Phys. **60**, 3 (1988).
- [4] P. Sferlazzo, S. Berko, K.F. Canter. Phys. Rev. B **35**, 5315 (1987).
- [5] Y. Nagashima, Y. Morinaka, T. Kurihara, Y. Nagai, T. Hyodo, T. Shidara, K. Nakahara. Phys. Rev. B **58**, 12676 (1998).
- [6] H. Saito, T. Hyodo. Phys. Rev. Lett. **90**, 193401 (2003).
- [7] R. Saniz, B. Barbiellini, P.M. Platzman, A.J. Freeman. Phys. Rev. Lett. **99**, 096101 (2007).
- [8] M. Clement, J.M.M. de Nijs, P. Balk, H. Schut, A. van Veen. J. Appl. Phys. **81**, 1943 (1997).
- [9] M.P. Petkov, K.G. Lynn, A. van Veen. Phys. Rev. B **66**, 045322 (2002).
- [10] D.B. Cassidy, S.H.M. Deng, R.G. Greaves, T. Maruo, N. Nishiyama, J.B. Snyder, H.K.M. Tanaka, A.P. Mills, Jr. Phys. Rev. Lett. **95**, 195006 (2005).
- [11] A.E. Almand-Hunter, H. Li, S.T. Cundiff, M. Mootz, M. Kira, S.W. Koch. Nature **506**, 471 (2014).
- [12] А.Н. Ипатов, В.К. Иванов, Р.Г. Полозков. ЖЭТФ **144**, 727 (2013).
- [13] А.В. Бабич, В.В. Погосов. ФТТ **55**, 177 (2013).
- [14] В.В. Погосов, А.В. Бабич, П.В. Вакула. ФТТ **55**, 2004 (2013).
- [15] А.В. Бабич, П.В. Вакула, В.В. Погосов. ФТТ **56**, 1671 (2014).
- [16] C.H. Hodges, M.J. Stott. Phys. Rev. B **7**, 73 (1973).
- [17] P. Kubica, M.J. Stott. J. Phys. F **4**, 1969 (1974).
- [18] O.V. Boev, M.J. Puska, R.M. Nieminen. Phys. Rev. B **36**, 7786 (1987).
- [19] H. Ikari, K. Fujiwara. J. Phys. Soc. Jpn. **46**, 92 (1979).
- [20] И.В. Бондарев. ФТТ **38**, 2038 (1996).
- [21] М.И. Векслер, С.Э. Тягинов, Ю.Ю. Илларионов, Yew Kwang Sing, Ang Ding Shen, В.В. Федоров, Д.В. Исаков. ФТП **47**, 675 (2013).