

05;06;07;12

Гетерогенный перенос заряда на основе резонансной приконтактной фотоионизации

© Б.П. Кашников,¹ В.В. Макаров,² Е.В. Макаров,² Г.И. Смирнов²¹ Институт физики полупроводников СО РАН,
630090 Новосибирск, Россия² Сибирское отделение Международного института нелинейных исследований РАН,
630090 Новосибирск, Россия
e-mail: smirnov.g.i@iae.nsk.su

(Поступило в Редакцию 26 февраля 2004 г.)

Предложена качественная модель гетерогенного переноса заряда между атомами в поликристаллических пленках или неоднородных наноструктурах типа полупроводник–диэлектрик, взаимодействующими с резонансным излучением и металлической поверхностью контакта. Определена вероятность процесса резонансной приконтактной фотоионизации в неоднородных твердотельных наноструктурах, что позволяет использовать данный процесс в нанотехнологиях для измерений и передачи информации.

Введение

Интерес к исследованиям процессов гетерогенного переноса заряда в поле резонансного излучения стимулируется открывшимися в последнее время многообразными возможностями их использования в нанотехнологиях, нелинейно-информационных системах, технологиях зарядовой связи, коллективных лазерных ускорителях ионов, лазерно-плазменных технологиях, оптоэлектронике [1–4]. Весьма активно изучаются поверхностные эффекты в спектрах фотоабсорбции и фотодесорбции для частиц, взаимодействующих с поверхностью (см., например, [5–7]). Интересным примером такого рода эффектов служит появление асимметрии колебательного спектра вследствие передачи энергии между молекулой и поверхностью по механизму электронно-дырочных пар [5]. О наблюдении эффектов резонансной поверхностной фотоионизации впервые сообщалось в работах [8,9]. Богатую информацию о проблеме электрон-атомного взаимодействия, важной для физики твердого тела, оптоэлектроники и ряда разделов атомной физики, могут дать также исследования процесса приконтактной фотоионизации атомов в поликристаллических пленках или твердотельных гетероструктурах. В данной работе построена качественная модель перезарядки между атомами в полупроводниковых кристаллитах или неоднородных наноструктурах типа полупроводник–диэлектрик, резонансно взаимодействующими с излучением, и металлической поверхностью контакта. Определена вероятность приконтактной лазерной фотоионизации атомов, локализованных в поликристаллических пленках или наноструктурах полупроводник–диэлектрик вблизи металлической поверхности.

Модель

Предполагаем, что образующие фоточувствительную пленку кристаллиты обладают n -типом проводимости и окружены туннельно-прозрачными диэлектрическими

окисными прослойками. Если возбужденное состояние атома n -полупроводника соответствует области разрешенной полосы металла выше уровня Ферми, то основным механизмом фотоионизации является безактивационная перезарядка между этим атомом и металлом. В работе [10] задача вычисления вероятности безактивационной перезарядки между приповерхностным атомом и металлом была сведена к задаче об ионизации атома внешним электрическим полем [11]. В рамках рассматриваемой далее модели приконтактной фотоионизации показано, что возбужденное фотоном с энергией, примерно равной ширине запрещенной зоны, состояние атома в кристаллите, расположенного в непосредственной близости от металлической поверхности, уподобляется автоионизационному уровню на фоне континуума, образуемого квазинепрерывным электронным спектром нормальных металлов [12]. Заметим, что подобным образом осуществляется также резонансная приконтактная фотоионизация в неоднородных наноструктурах типа полупроводник–диэлектрик, контактирующих с металлической поверхностью.

Спектры резонансного фотопоглощения и поверхностной фотоионизации в этой ситуации определяются нелинейными интерференционными эффектами взаимодействия данного континуума и энергетических состояний кристаллитов, соответствующих потолку валентной зоны и дну зоны проводимости. При фотопоглощении в легированных полупроводниках роль основного или возбужденного состояний могут выполнять уровни примесных донорных центров в запрещенной зоне.

Далее анализируется зависимость нелинейных интерференционных эффектов резонансной приповерхностной фотоионизации от расстояния между атомом в полупроводнике и металлом. Аналогичные интерференционные эффекты возникают при резонансном рассеянии лазерного излучения [13].

Считаем для определенности температуру поликристаллической пленки достаточно низкой для того, чтобы энергетические состояния у дна зоны проводимости и

потолка валентной зоны можно было бы приближенно рассматривать как дискретные. Квантово-механическому описанию процесса приконтактной фотоионизации при поглощении излучения на переходе между основным состоянием атома n и возбужденным m , расположенным в отличие от основного выше уровня Ферми металла, отвечает полный гамильтониан

$$H = H_a + H_M + \hbar(U + V), \quad (1)$$

где сумма трех слагаемых H_a , H_M и $\hbar U$ представлена модельным гамильтонианом Андерсона [14,15], которым определяются электронные состояния системы, состоящей из металла и взаимодействующей с ним двухуровневой подсистемы.

Гамильтоновы операторы двухуровневой подсистемы

$$H_a = \sum_{j=m,n} E_j \quad (2)$$

и невозмущенного металла

$$H_M = \sum_p E_p c_p^+ c_p \quad (3)$$

выражаются через фермионные операторы рождения c_j^+ , c_p^+ и уничтожения c_j , c_p электронов в атомном и металлическом состояниях; E_j , E_p — энергии электронных состояний в атоме и полубесконечном металле соответственно; оператор

$$U = \sum_{p,j} U_{pj} c_p^+ c_j + h.c. \quad (4)$$

описывает туннельное взаимодействие между состоянием металла p и состояниями кристаллита $j = m, n$. Оно аналогично конфигурационному взаимодействию Фано между континуумом и автоионизационным состоянием [16,17]. Предполагается, что электромагнитное излучение взаимодействует только с атомными состояниями; это взаимодействие учитывает оператор V .

Квантовое кинетическое уравнение

Общее решение уравнения Шредингера для данной задачи

$$i\hbar\partial_t\Psi = H\Psi \quad (5)$$

можно представить в виде линейной комбинации волновых функций Ψ_j , Ψ_p стационарных состояний невозмущенной системы с гамильтонианом $H_0 = H_a + H_M$, причем с учетом квазинепрерывности электронного спектра металла суммирование по состояниям, различающимся энергией E_p , приближенно заменяется интегрированием

$$\Psi = \sum_j a_j \Psi_j + \int d\omega_p a_p \Psi_p; \omega_p = E_p/\hbar. \quad (6)$$

Однако при расчете спектральных характеристик фотоионизации в поле бегущей волны удобно вместо системы уравнений для амплитуд вероятности состояний дискретного и сплошного спектра $a_{j,p}$ использовать аппарат матрицы плотности. Специфические черты процедуры перехода от данной системы уравнений к кинетическому уравнению для матрицы плотности, обусловленные наличием континуума электронных состояний, нашли отражение в [16]. Вывод квантового кинетического уравнения, пригодного при любом взаимодействии частицы с внешним полем, был дан ранее в работе [18].

Недиагональный элемент матрицы плотности ρ_{mn} , отвечающий боровской частоте радиационного перехода ω_{mn} , в резонансном приближении имеет осциллирующий вид

$$\rho_{mn} = r_{mn} \exp[-i(\Omega t - \mathbf{kr})], \quad \Omega = \omega - \omega_{mn}, \quad (7)$$

$\omega = kc$ — частота светового поля.

Считается, что атом в основном состоянии, лежащем ниже уровня Ферми, взаимодействует с металлом заметно слабее, чем возбужденный атом. Соответствующие матричные элементы гибридизации удовлетворяют неравенству $|U_{pm}| > |U_{pn}|$.

Пренебрегая влиянием излучения на населенность нижнего уровня атома ρ_{mm} , можно в этом случае ограничиться анализом системы уравнений для r_{mn} и населенности верхнего уровня ρ_{nn}

$$(\partial_t + v_z \partial_z + \Gamma - i\Omega') r_{mn} = -i(G_{mn} + \delta_{mn} + i\gamma_{mn}) \rho_{nn}, \quad (8)$$

$$\Omega' = \Omega - \delta_{mn} - \mathbf{kv},$$

$$(\partial_t + v_z \partial_z + \Gamma) \rho_{nn} = \text{Im} [(G_{mn} + \delta_{mn} + i\gamma_{mn}) r_{mn}],$$

$$\Gamma = \Gamma_{mn} + \gamma_{mn}, \quad (9)$$

$$\rho_{nn} = N, \quad (10)$$

где N — полное число атомов в единице объема.

Через Γ_{mn} обозначена константа спонтанного распада возбужденного состояния атома; $G_{mn} = E_0 d_{mn}/\hbar$, E_0 — амплитуда бегущей волны; d_{mn} — матричный элемент момента электрического дипольного перехода.

Параметры

$$\gamma_{mj} = \pi U_{mp} U_{pj} \Big|_{\omega_p=\omega}, \quad (11)$$

$$\delta_{mj} = \sum_l \frac{2G_{ml} G_{lj} \omega_l}{\omega^2 - \omega_l^2} + \frac{1}{\pi} \int \frac{\gamma_{mj}(\omega_p) d\omega_p}{\omega - \omega_p} \quad (12)$$

учитывают релаксационные процессы и энергетические сдвиги, обусловленные интерференционным эффектом туннельного взаимодействия состояний $j = m, n$ с металлической поверхностью. В выражении (12) суммирование распространяется на все нерезонансные состояния, величины γ_{mj} , δ_{mj} зависят от расстояния z между атомом и поверхностью [19].

Нелинейные интерференционные эффекты приконтактной фотоионизации

Линейная восприимчивость среды

$$\chi = 2\hbar|E_0|^{-2}G_{mn}\langle r_{mn} \rangle \quad (13)$$

и коэффициент резонансного поглощения света

$$\alpha = 4\pi k \operatorname{Im} \chi \quad (14)$$

выражаются через элемент матрицы плотности r_{mn} , усредненный по ансамблю частиц. Для вычисления сечения поверхностной фотоионизации

$$\sigma = 16\pi\hbar r|E_0|^{-2}N^{-1}\langle \gamma_{mn}\rho_{mm} + 2\operatorname{Re}(\gamma_{mn}r_{nm}) \rangle \quad (15)$$

необходимо наряду с r_{mn} определить также заселенность возбужденного состояния ρ_{mm} . Решения уравнений (8), (9) имеют вид

$$r_{mn} = i\rho_{nn}(G_{mn} + \delta_{mn} + i\gamma_{mn})[\Gamma - i(\Omega - \delta_{mn})]^{-1}, \quad (16)$$

$$\rho_{mm} = \rho_{nn}\gamma_{mn}^2(1 + q_{mn}^2)[\Gamma^2 + (\Omega - \delta_{mn})^2]^{-1},$$

$$q_{mn} = (G_{mn} + \delta_{mn})/\gamma_{mn}. \quad (17)$$

Параметр q_{mn} отражает наличие двух интерферирующих каналов при поглощении излучения, таких как переход в возбужденное состояние m и переход в полосу сплошного спектра шириной γ_{mn} , причем величина q_{mn}^2 пропорциональна отношению вероятностей этих процессов. В пределе $z \rightarrow \infty$, когда γ_{mj} , $\delta_{mj} = 0$, соотношения (16), (17) сводятся к известным результатам для частиц, не взаимодействующих с поверхностью,

$$r_{mn} = i\rho_{nn}G_{mn}(\Gamma_{mn} - i\Omega)^{-1}, \quad (18)$$

$$\rho_{mm} = \rho_{nn}G_{mn}^2(\Gamma_{mn}^2 + \Omega^2)^{-1}. \quad (19)$$

Рассмотрим процесс резонансного взаимодействия излучения в атомами, расположенными на одинаковом расстоянии $z = \text{const}$ от металлической поверхности. Этот вариант реализуется также при осаждении поглощающих атомов на тонкой диэлектрической пленке, нанесенной на металл [19], когда для контура частотной зависимости коэффициента резонансного поглощения, согласно (14), (16), получаем

$$\alpha = 8\pi\hbar k N G_{mn}\gamma_{mn}(q_{mn} - x)|E_0|^2\Gamma(1 + x^2),$$

$$x = (\Omega - \delta_{mn})/\Gamma. \quad (20)$$

Асимметрия контура $\alpha(\Omega)$ обусловлена интерференцией процессов перехода электрона в дискретное состояние m и континуум, образуемый металлической поверхностью.

Спектр резонансной поверхностной фотоионизации в соответствии с (15)–(17) определяется соотношением

$$\sigma = 16\pi\hbar|E_0|^{-2}\gamma_{mn}^2\Gamma^{-1}[\theta(1 + q_{mn}^2) - 2 + 2q_{mn}x]/(1 + x^2),$$

$$\theta = \gamma_{mn}/\Gamma. \quad (21)$$

Форма резонанса поверхностной фотоионизации $\sigma(x)$ существенно зависит от величины параметров q_{mn} и θ . В целом частотный контур сечения поверхностной фотоионизации $\sigma(x)$ подобен профилю автоионизационного резонанса Фано [20,21]. В зависимости от расстояния между поглощающими атомами и металлической поверхностью значение параметра θ может меняться в интервале от 0 до 1 (в частности, при $\Gamma_{mn} \ll \gamma_{mn}$ имеем $\theta \approx 1$).

Как правило, уменьшение значений релаксационных констант γ_{mj} и энергетических сдвигов δ_{mj} при удалении атома от металлической поверхности аппроксимируется экспоненциальной моделью [14,21]

$$\gamma_{mj} = \tilde{\gamma}_{mj}e^{-az}, \quad \delta_{mj} = \tilde{\delta}_{mj}e^{-az}. \quad (22)$$

В этой ситуации асимптотика падения сечения поверхностной фотоионизации при $z \rightarrow \infty$ также представлена экспонентой

$$\sigma(x) \propto e^{-az}. \quad (23)$$

Используя приближение (22), определим поток электронов

$$N_e = N \int_0^\infty W(z) dz = N\langle W \rangle, \quad (24)$$

индуцируемый излучением вблизи поверхности контакта. Он пропорционален усредненному значению вероятности перезарядки между металлом и резонансно-возбуждаемыми атомами кристаллитов

$$W(z) = |E_0|^2\sigma(z)/8\pi\hbar k, \quad (25)$$

где сечение $\sigma(z)$ дается формулой (21).

С учетом неравенства

$$\gamma_{mj}, \delta_{mj} \gg \Gamma_{mn}, G_{mn}, \quad (26)$$

которое выполняется обычно в приповерхностном фотоионизационном слое шириной a^{-1} , асимметричное распределение по спектру средней вероятности $\langle W \rangle$ можно представить в виде

$$\langle W \rangle = 2 \left[(\tilde{\delta}_{mn}^2 - \tilde{\gamma}_{mn}^2)(\cos\beta - x \operatorname{arctg} \varphi \cos 2\beta + \tilde{x} \sin 2\beta \ln r) - \gamma_{mn}\delta_{mn}(\sin\beta - \tilde{x} \operatorname{arctg} \varphi \sin 2\beta - \tilde{x} \ln r \cos 2\beta) \right] / \gamma a,$$

$$\gamma = (\tilde{\gamma}_{mn}^2 + \tilde{\delta}_{mn}^2)^{1/2}, \quad \tilde{x} = \Omega/\gamma, \quad \varphi = \tilde{\gamma}_{mn}(\Omega - \tilde{\delta}_{mn})^{-1},$$

$$r = [\tilde{\gamma}_{mn}^2 + (\Omega - \tilde{\delta}_{mn})^2]^{1/2} |\Omega|^{-1},$$

$$\beta = \operatorname{arctg}(\tilde{\delta}_{mn}/\tilde{\gamma}_{mn}). \quad (28)$$

По частотной шкале резонанс фотоионизации имеет ширину порядка $\tilde{\gamma}_{mn}$, а степень его асимметрии определяется отношением $\tilde{\delta}_{mn}/\tilde{\gamma}_{mn}$. Из (25), (27) следует простое выражение для электронного потока N_e , отвечающего центру линии поглощения ($|\Omega| \ll \gamma$),

$$N_e = N \left[\tilde{\gamma}_{mn}(\tilde{\delta}_{mn}^2 - \tilde{\gamma}_{mn}^2) - 2\tilde{\gamma}_{mn}\tilde{\delta}_{mn}\tilde{\delta}_{mn} \right] / \gamma^2 a. \quad (29)$$

В частности, такого рода резонансное туннелирование фотоэлектронов из контактного слоя в короткопериодных сверхрешетках может приводить к появлению резонансов фототока.

Заключение

Таким образом, основным результатом данной работы является вычисление вероятности перезарядки между атомами в полупроводниковых кристаллитах или неоднородных наноструктурах типа полупроводник–диэлектрик, резонансно-взаимодействующими с излучением, и металлической поверхностью при учете нелинейных интерференционных эффектов, обусловленных переходами в возбужденное состояние полупроводника и образуемую металлом полосу сплошного спектра.

Спектральные контуры фотопоглощения и фотоионизации в полупроводниковых кристаллитах, расположенных вблизи металлической поверхности, асимметричны подобно профилю резонанса Фано [20,21]. Степень асимметрии резонансов фотопоглощения и фотоионизации задается отношением вероятности радиационного перехода в возбужденное состояние к вероятности перехода в индуцированный поверхностью металла континуум. Вполне естественно, что для удаленных от металлической поверхности атомов резонанс фотопоглощения становится симметричным, а вероятность фотоионизации резко снижается.

Рассмотренные технические свойства резонансной приконтактной фотоионизации могут использоваться для создания новых технологий преобразования и передачи информации.

Авторы признательны Е.А. Кузнецову и Г.Г. Телегину за полезные обсуждения.

Работа выполнена при частичной поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН „Математические методы в нелинейной динамике“ и Программы государственной поддержки молодых российских ученых и ведущих научных школ РФ (грант № НШ-1716.2003.1).

Список литературы

- [1] Анциферов В.В., Смирнов Г.И., Телегин Г.Г. // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. Вып.8. С. 74–77.
- [2] Анциферов В.В., Смирнов Г.И., Телегин Г.Г. // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. Вып. 14. С. 43–46.
- [3] Antsiferov V.V., Smirnov G.I. Coherent Radiation Processes in Plasma. Cambridge: CISP, 1998. 236 p.
- [4] Анциферов В.В., Кашников Б.П., Смирнов Г.И. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. Вып. 3. С. 14–18.
- [5] Langreth D.C. // Phys. Rev. Lett. 1985. Vol. 54. N 2. P. 126–129.
- [6] Agassi D. // Phys. Rev. B. 1986. Vol. 33. N 6. P. 3873–3884.
- [7] Leung P.T., George T.F. // Chem. Phys. Lett. 1987. Vol. 134. N 4. P. 375–378.
- [8] Auschwitz B., Lactann K. // Chem. Phys. Lett. 1985. Vol. 113. N 1. P. 230–233.
- [9] Малышев Г.Ф., Телегин Г.Г. // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 6. С. 1195–1198.
- [10] Чаплик А.В. // ЖЭТФ. 1968. Т. 54. Вып. 1. С. 332–338.
- [11] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика. М.: Наука, 1974. 702 с.
- [12] Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. Статистическая физика. М.: Наука, 1978. 448 с.
- [13] Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск: Наука, 1979. 311 с.
- [14] Anderson P.W. // Phys. Rev. 1961. Vol. 124. N 1. P. 41–53.
- [15] Большой Л.А., Напартович А.П., Наумовец А.Г. и др. // УФН. 1976. Т. 122. N 1. С. 125–158.
- [16] Геллер Ю.И., Попов А.К. Лазерное индуцирование резонансов в сплошных спектрах. Новосибирск: Наука, 1981. 160 с.
- [17] Анциферов В.В., Вартазарян А.С., Смирнов Г.И. // ЖЭТФ. 1987. Т. 93. Вып. 2(8). С. 762–767.
- [18] Раутиан С.Г., Смирнов Г.И. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. Вып. 4. С. 1295–1306.
- [19] Yu M.L., Lang N.D. // Phys. Rev. Lett. 1983. Vol. 50. N 2. P. 127–130.
- [20] Fano V. // Phys. Rev. 1961. Vol. 124. N 6. P. 1866–1878.
- [21] Ravi S., Agarval G.S. // Phys. Rev. A. 1987. Vol. 35. N 8. P. 3354–3367.