

# НЕЛИНЕЙНЫЕ РЕЗОНАНСЫ ПРИКОНТАКТНОЙ ФОТОИОНИЗАЦИИ В НЕОДНОРОДНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ

*Б. П. Кашиников, В. В. Макаров, Е. В. Макаров, Г. И. Смирнов\**

*Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук  
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 2 марта 2004 г.

Построена теория нелинейных интерференционных эффектов при гетерогенном переносе 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 и нелинейно-информационных системах. Нелинейные резонансы приконтактной фотоионизации асимметричны вследствие интерференции радиационного перехода в возбужденное состояние и перехода в индуцированный поверхностью металла континуум. Вероятность резонансной приконтактной фотоионизации резко снижается при увеличении расстояния между атомом в полупроводнике и металлом.

PACS: 02.50.-r, 05.40.-a, 32.80.-t, 73.40.Qv

## 1. 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 теория 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.

## 2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Предполагаем, что образующие фоточувствительную пленку кристаллиты обладают проводимостью  $n$ -типа 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

\*E-mail: smirnov.g.i@iae.nsk.su

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 полупроводнике, 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 полупроводника достаточно низкой, для того чтобы энергетические состояния у дна зоны проводимости и потолка валентной зоны можно было бы приближенно рассматривать как дискретные. Квантовомеханическому описанию процесса приконтактной фотоионизации при поглощении излучения на переходе между основным состоянием  $n$  атома 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. Гамильтонианы операторы двухуровневой подсистемы,

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

и невозмущенного металла,

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

выражаются через фермионные операторы рождения  $c_j^\dagger$ ,  $c_p^\dagger$  и уничтожения  $c_j$ ,  $c_p$  электронов в атомном и металлическом состояниях;  $E_j$ ,  $E_p$  — энергии электронных состояний, соответственно, в атоме и полубесконечном металле. Оператор

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

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  $V$ .

### 3. 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  $\Psi_j$ ,  $\Psi_p$  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:

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

Однако при расчете спектральных характеристик фотоионизации в поле бегущей волны удобно вместо системы уравнений для амплитуд вероятности состояний дискретного и сплошного спектров  $a_{j,p}$ , 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 работе [16]. Вывод квантового кинетического уравнения, пригодного при любом взаимодействии частицы с внешним полем, был дан ранее в работе [18].

Недиагональный элемент матрицы плотности  $\rho_{mn}$ , отвечающий борзовской частоте радиационного перехода  $\omega_{mn}$ , в резонансном приближении имеет осциллирующий вид:

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

где  $\omega = kc$  — 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  $\rho_{nn}$ , можно в этом случае ограничиться анализом системы уравнений для  $r_{mn}$  и населенности верхнего уровня  $\rho_{mm}$ :

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

$$\Omega' = \Omega - \delta_{mm} - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v},$$

$$(\partial_t + v_z \partial_z + \Gamma) \rho_{mm} = \text{Im}[(G_{mn} + \delta_{mn} + i\gamma_{mn}) r_{nm}], \quad (9)$$

$$\Gamma = \Gamma_{mn} + \gamma_{mm}, \quad \rho_{nn} = N, \quad (10)$$

где  $N$  — полное число атомов в единице объема.

Через  $\Gamma_{mn}$  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

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

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

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  $\gamma_{mj}$ ,  $\delta_{mj}$  зависят от расстояния  $z$  между атомом и поверхностью контакта.

#### 4. НЕЛИНЕЙНЫЕ ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ ПРИКОНТАКТНОЙ ФОТОИОНИЗАЦИИ

Линейная восприимчивость среды

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

и коэффициент резонансного поглощения света

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

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

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

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

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

$$\rho_{mm} = \rho_{nn} \gamma_{mn}^2 (1 + q_{mn}^2) [\Gamma^2 + (\Omega - \delta_{mm})^2]^{-1}, \quad q_{mn} = \frac{G_{mn} + \delta_{mn}}{\gamma_{mn}}. \quad (17)$$

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  $\gamma_{mm}$ , причем величина  $q_{mn}^2$  пропорциональна отношению вероятностей этих процессов. В пределе  $z \rightarrow \infty$ , когда  $\gamma_{mj}$ ,  $\delta_{mj} = 0$ , соотношения (16), (17) сводятся к известным результатам для частиц, невзаимодействующих 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 с 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,

когда для контура частотной зависимости коэффициента резонансного поглощения согласно (14), (16) получаем

$$\alpha = 8\pi\hbar k N \frac{G_{mn}\gamma_{mn}(q_{mn} - x)}{|E_0|^2 \Gamma(1 + x^2)}, \quad (20)$$

$$x = \frac{\Omega - \delta_{mm}}{\Gamma}.$$

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 формулами (15)–(17) определяется соотношением

$$\sigma = 16\pi\hbar |E_0|^{-2} \times \gamma_{mn}^2 \Gamma^{-1} \frac{\theta(1 + q_{mn}^2) + 2 - 2q_{mn}x}{1 + x^2}, \quad (21)$$

$$\theta = \gamma_{mn}\Gamma^{-1}.$$

Форма резонанса поверхностной фотоионизации  $\sigma(x)$  существенно зависит от величины параметров  $q_{mn}$  и  $\theta$ . В целом частотный контур сечения поверхностной фотоионизации  $\sigma(x)$  подобен профилю автоионизационного резонанса Фано [19, 20]. В зависимости от расстояния между поглощающими атомами и металлической поверхностью значение параметра  $\theta$  может меняться в интервале от 0 до 1 (в частности, при  $\Gamma_{mn} \ll \gamma_{mm}$  имеем  $\theta \approx 1$ ).

Как правило, уменьшение значений релаксационных констант  $\gamma_{mj}$  и энергетических сдвигов  $\delta_{mj}$  при удалении атома от металлической поверхности аппроксимируется экспоненциальной моделью [14, 20]:

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

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

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

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 полупроводника:

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

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

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

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

$$\langle W \rangle = 2 \left[ \left( \tilde{\delta}_{mn}^2 - \tilde{\gamma}_{mn}^2 \right) \times (\cos \beta - \tilde{x} \arctg \tilde{\varphi} \cos 2\beta + \tilde{x} \sin 2\beta \ln r) - \tilde{\gamma}_{mn} \tilde{\delta}_{mn} (\sin \beta - \tilde{x} \arctg \tilde{\varphi} \sin 2\beta - \tilde{x} \ln r \cos 2\beta) \right] / \gamma a, \quad (27)$$

$$\gamma = \left( \tilde{\gamma}_{mm}^2 + \tilde{\delta}_{mm}^2 \right)^{1/2}, \quad \tilde{x} = \frac{\Omega}{\gamma},$$

$$\tilde{\varphi} = \tilde{\gamma}_{mm} \left( \Omega - \tilde{\delta}_{mm} \right)^{-1},$$

$$r = \left[ \tilde{\gamma}_{mm}^2 + \left( \Omega - \tilde{\delta}_{mm} \right)^2 \right]^{1/2} |\Omega|^{-1}, \quad (28)$$

$$\beta = \arctg \frac{\tilde{\delta}_{mm}}{\tilde{\gamma}_{mm}}.$$

Предложенная модель резонансной приконтактной фотоионизации непосредственно реализуется, например, при использовании кремния в качестве полупроводникового образца и металлического контакта из натрия. Для параметров фотоионизации достаточно мощным излучением атомов полупроводника на расстоянии  $z < a^{-1} \sim 1$  нм от металлической поверхности имеем соотношение  $\tilde{\gamma}_{mn} \sim \tilde{\delta}_{mn} \lesssim \tilde{\gamma}_{mm}$ ,  $\tilde{\delta}_{mm} \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$  [15, 21], и контур резонансного фотопоглощения представлен на рис. 1 графиком 2 функции

$$f(x) = \frac{1 - x/q_{mn}}{1 + x^2} \propto \alpha(x) \quad (29)$$

при  $q_{mn} = 4$ . Симметричная кривая 1 отвечает при этом предельному случаю  $q_{mn}^{-1} \rightarrow 0$ , когда ширина слоя диэлектрика существенно превышает характерную ширину фотоионизационного слоя  $a^{-1}$ . На рис. 2 показан график функции

$$\varphi(x) = \frac{1 - 2q_{mn}x [\theta(1 + q_{mn}^2) + 2]^{-1}}{(1 + x)^2} \propto \sigma(x), \quad (30)$$

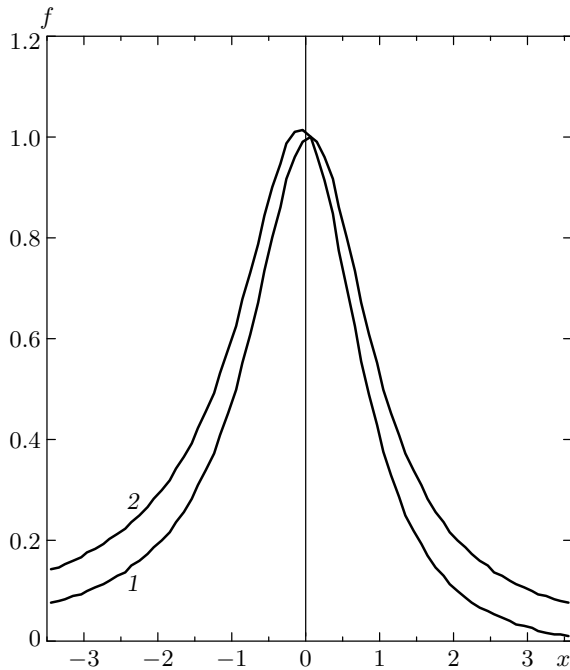


Рис. 1. Спектр резонансного фотопоглощения: 1 —  $q_{mn}^{-1} = 0$ , 2 —  $q_{mn} = 4$

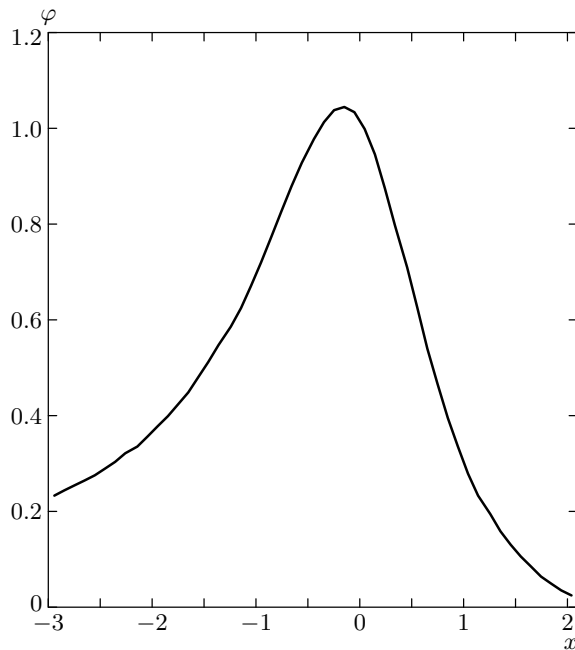


Рис. 2. Контур сечения резонансной приконтактной фотоионизации:  $q_{mn} = 4$ ,  $\theta = 0.8$

задающий, соответственно, профиль сечения резонансной приконтактной фотоионизации при параметрах  $q_{mn} = 4, \theta = 0.8$ .

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

$$N_e = N \left[ \tilde{\gamma}_{mm} \left( \tilde{\delta}_{mn}^2 - \tilde{\gamma}_{mn}^2 \right) - 2\tilde{\gamma}_{mn}\tilde{\delta}_{mn}\tilde{\delta}_{mm} \right] / \gamma^2 a. \quad (31)$$

В частности, такого рода резонансное туннелирование фотоэлектронов из контактного слоя в короткопериодных сверхрешетках может приводить к появлению резонансов фототока [22].

### 5. 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 в образуемую металлом полосу сплошного спектра.

Спектральные контуры фотопоглощения и фотоионизации в полупроводниковых кристаллитах, расположенных вблизи металлической поверхности, асимметричны подобно профилю резонанса Фано [19, 20]. 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 свойства резонансной приконтактной фотоионизации могут использоваться для создания новых технологий преобразования и передачи информации по типу фотон-зарядовой связи.

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).

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. В. Анциферов, Г. И. Смирнов, Г. Г. Телегин, Письма в ЖТФ **20**, 74 (1994).
2. В. В. Анциферов, Г. И. Смирнов, Г. Г. Телегин, Письма в ЖТФ **21**, 43 (1995).
3. V. V. Antsiferov and G. I. Smirnov, *Coherent Radiation Processes in Plasma*, CISP, Cambridge (1998), p. 236.
4. В. В. Анциферов, Б. П. Кашников, Г. И. Смирнов, Письма в ЖТФ **25**, 14 (1999).
5. D. C. Langreth, Phys. Rev. Lett. **54**, 126 (1985).
6. D. Agassi, Phys. Rev. B **3**, 3873 (1986).
7. P. T. Leung and T. F. George, Chem. Phys. Lett. **134**, 375 (1987).
8. B. Auschwitz and K. Lasmann, Chem. Phys. Lett. **113**, 230 (1985).
9. Г. Ф. Малышев, Г. Г. Телегин, ЖТФ **56**, 1195 (1986).
10. А. В. Чаплик, ЖЭТФ **54**, 332 (1968).
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, Наука, Москва (1974), с. 702.
12. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Статистическая физика*, Наука, Москва (1978), с. 448.
13. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, Новосибирск (1979), с. 311.
14. P. W. Anderson, Phys. Rev. **124**, 41 (1961).
15. Л. А. Большов, А. П. Напартович, А. Г. Наумовец, А. Г. Федорус, УФН **122**, 125 (1976).
16. Ю. И. Геллер, А. К. Попов, *Лазерное индуцирование резонансов в сплошных спектрах*, Наука, Новосибирск (1981), с. 160.
17. В. В. Анциферов, А. С. Вартазарян, Г. И. Смирнов, ЖЭТФ **93**, 762 (1987).
18. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, ЖЭТФ **74**, 1295 (1978).
19. V. Fano, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
20. S. Ravi and G. S. Agarval, Phys. Rev. A **35**, 3354 (1987).
21. M. L. Yu and N. D. Lang, Phys. Rev. Lett. **50**, 127 (1983).
22. Л. А. Альперович, Н. Т. Мошегов, А. С. Терехов и др., ФТТ **41**, 159 (1999).