

PACS numbers: 68.65.Hb, 71.60.+z, 73.21.La, 78.67.Hc, 78.70.Bj

## **Поглощение и рассеяние света на электронных и позитронных состояниях в квазиульмерных наносистемах**

А. П. Шпак, С. И. Покутний, В. Н. Уваров, М. С. Покутний

*Институт металлофизики им. Г. В. Курдюмова НАН Украины,  
бульв. Акад. Вернадского, 36,  
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

Дан обзор результатов теоретических и экспериментальных исследований по взаимодействию электромагнитного поля с одночастичными электронными и позитронными квантоворазмерными состояниями, возникающими в квазиульмерных металлических и полупроводниковых наносистемах. Показано, что силы осцилляторов переходов, а также дипольные моменты переходов для одночастичных электронных и позитронных состояний в квазиульмерных наносистемах принимают гигантские значения, существенно превосходящие типичные значения соответствующих величин для объемных материалов. В рамках дипольного приближения установлено, что гигантские значения сечений поглощения света в изучаемых квазиульмерных наносистемах дают возможность использовать такие наносистемы в качестве новых сильно поглощающих материалов.

Дано огляд результатів теоретичних і експериментальних досліджень з взаємодії електромагнетного поля з одночастинковими електронними й позитронними квантоворозмірними станами, які виникають у квазиульвимірних металевих і напівпровідникових наносистемах. Показано, що сили осциляторів переходів, а також дипольні моменти переходів для одночастинкових електронних і позитронних станів у квазиульвимірних наносистемах набувають гігантських значень, що суттєво перевищують типові значення відповідних величин для об'ємних матеріалів. У рамках дипольного наближення встановлено, що гігантські значення перерізів вбирання світла в таких квазиульвимірних наносистемах дають можливість використовувати наносистеми в якості нових сильно вбираючих матеріалів.

We analyzed the results of theoretical and experimental research on the interaction of an electromagnetic field with electron and positron states arising in quasi-zero-dimensional metal and semiconductor nanosystems. As shown, the oscillator strengths and dipole moments for the transitions involving one-particle electron and positron in quasi-zero-dimensional nanosystems attain

gigantic values, substantially exceeding the corresponding typical values for bulk materials. As revealed within the scope of the dipole approximation, the giant optical absorption cross sections in the quasi-zero-dimensional nanosystems provide a possibility to use these nanosystems as new efficient absorbing materials.

**Ключевые слова:** поглощение и рассеяние света, электронные и позитронные состояния, квазиульмерные наносистемы, силы осцилляторов.

*(Получено 10 декабря 2007 г.; после доработки — 12 июня 2008 г.)*

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время интенсивно исследуются оптические [1–14] и электрооптические [15–18] свойства квазиульмерных структур, состоящих из металлических и полупроводниковых нанокристаллов, а также диэлектрических нанопор сферической формы с радиусами  $a \approx 1–10^2$  нм, выращенных в полупроводниковых, металлических и диэлектрических средах. Такие исследования вызваны тем обстоятельством, что подобные конденсированные наносистемы являются новыми перспективными материалами для создания новых элементов нелинейной нанооптоэлектроники (в частности, элементов для управления оптическими сигналами в оптических нанокomпьютерах [19–22] и в качестве активной области инжекционных полупроводниковых нанолазеров [4, 23–25]).

Оптические и электрооптические свойства таких квазиульмерных структур определяются энергетическим спектром пространственно ограниченной электронно-дырочной пары (экситона) [1–15]. Методами оптической спектроскопии в подобных гетерофазных наноструктурах были обнаружены эффекты размерного квантования энергетического спектра электронов [1, 2] и экситонов [3–7].

При таких наноразмерах  $a$  необходимо учитывать размерные квантовые эффекты, связанные с влиянием сферической границы раздела на энергетический спектр носителей заряда в наночастице [9–15]. Эти изменения оказываются существенными, например, в фотохимических поверхностных реакциях в коллоидных растворах полупроводников и металлов [26]. При этом в результате переноса одного из носителей заряда во внешнюю среду в полупроводниковой сферической наночастице образуется избыточный носитель (электрон и дырка) [23, 24].

Другими широко исследуемыми объектами, относящимися к квазиульмерным наноструктурам, являются баблонные состояния в жидком сверхтекучем гелии [27, 28]. Стабильное существование баблона (макроскопической сферической нанополости в жидком сверхтекучем гелии) обуславливается возможностью существо-

воваания внутри сферической нанополости двумерного слоя поверхностных электронов.

Нанокристаллические материалы, содержащие атомы одного сорта, состоят из упорядоченных зерен (кристаллитов) и межкристаллитных границ [29–33]. В работах [29–33] показано, что границы раздела компактированных нанокристаллических материалов содержат три типа дефектов: отдельные вакансии на границах раздела, вакансионные агломераты или нанопоры, образующиеся в тройных стыках кристаллитов, и большие поры на месте отсутствия кристаллитов. Захват позитронов такими дефектами, как вакансии, вакансионные скопления (нанопоры) или поры, приводил к увеличению времени жизни позитронов. Время жизни позитронов увеличивалось с увеличением размера нанопор [29]. Методом аннигиляции позитронов обнаружено существование трехмерных вакансионных агломератов (нанопор) с размерами  $a \approx 15\text{--}20$  нм, близкими к размерам кристаллитов металлов Al, Cu, Mo, Pd, Fe и Ni в нанокристаллических металлах [29–33].

В работах [34–46] использовалась простая модель квазинульмерной структуры. Эта модель представляла собой нейтральную сферическую наночастицу (диэлектрическую, полупроводниковую или металлическую) радиуса  $a$  с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$ , окруженную средой с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_1$ , и заряженную квазичастицу с зарядом  $e$ , движущуюся либо в среде с  $\varepsilon_1$  с эффективной массой  $m_1^*$  вблизи границы раздела, либо с эффективной массой  $m_2^*$  внутри сферической наночастицы в среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$ .

В [34–42] решена в конечном виде электростатическая задача о поле, индуцированном зарядом в окрестности диэлектрической наночастицы радиуса  $a$ , и были найдены простые аналитические выражения для энергии поляризационного взаимодействия  $U(r, a)$ .

Спектроскопические исследования таких одночастичных электронных, дырочных и позитронных состояний наночастиц могут давать новую информацию о влиянии границы раздела на энергетический спектр носителей заряда разной природы в наносистемах [8–15].

В работах [34–42] с использованием такой простой модели квазинульмерной наноструктуры были проанализированы условия локализации носителей заряда (электронов, дырок и позитронов) в окрестности сферической поверхности раздела двух диэлектрических сред. Возникающее при этом поляризационное взаимодействие  $U(r, a)$  (где  $r$  — расстояние носителя заряда до центра диэлектрической наночастицы,  $a$  — радиус наночастицы) носителя заряда с индуцированным на сферической поверхности раздела поверхностным зарядом зависело от величины относительной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon = \varepsilon_1/\varepsilon_2$  (где  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$  соответственно диэлектрические проницаемости среды и погруженной в нее диэлектрической

наночастицы).

Для носителей заряда, движущихся вблизи диэлектрической наночастицы, существуют две возможности:

1) поляризационное взаимодействие  $U(r, a)$  приводит к притяжению носителя заряда к поверхности наночастицы (при  $\varepsilon < 1$  — к внешней поверхности частицы, при  $\varepsilon > 1$  — к внутренней поверхности наночастицы) и образованию соответственно внешних поверхностных состояний [35, 36] и внутренних поверхностных состояний [37];

2) при  $\varepsilon < 1$  поляризационное взаимодействие  $U(r, a)$  вызывает отталкивание носителя заряда от внутренней поверхности диэлектрической наночастицы и возникновение в ее объеме объемных локальных состояний [38–40]. При этом спектр низколежащих объемных состояний имел осцилляторный вид.

Условия локализации носителя заряда в окрестности сферической поверхности раздела двух сред были проанализированы в работах [34–39]. В [34–39], в частности, показано, что с уменьшением радиуса диэлектрической наночастицы  $a$  возникал размерный квантовый эффект, препятствующий локализации носителя заряда из-за относительного уменьшения вклада потенциальной энергии по сравнению с кинетической. Наименьший критический размер  $a_c$ , при котором появлялось локальное состояние, был близок к величине  $b$  — среднему расстоянию носителя заряда, локализованного над плоской поверхностью в основном состоянии [34–37]:

$$a_c \approx b = 6 \left| \frac{\varepsilon_2 + \varepsilon_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \right| a_B, \quad (1)$$

где  $a_B = \varepsilon_2 \hbar^2 / (m_0 e^2)$  — боровский радиус электрона в среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$ ,  $m_0$  — масса электрона в вакууме.

При этом носитель заряда, находящийся внутри диэлектрической наночастицы с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$ , меньшей, чем диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon_1$  окружающей ее среды (т.е.  $\varepsilon_2 < \varepsilon_1$ ), отталкивался силами электростатического изображения от сферической поверхности раздела двух сред, что приводило к возникновению внутренних поверхностных состояний [34–37].

В [43, 44] теоретически исследовано взаимодействие электромагнитного поля с вышеуказанными одночастичными локальными квантоворазмерными состояниями носителей заряда, возникающими вблизи границы диэлектрической наночастицы. Были получены частотные и размерные зависимости сечения резонансного поглощения и рассеяния на таких состояниях.

В работах [45, 46] развита теория взаимодействия электромагнитного поля с одночастичными квантоворазмерными состояниями носителей заряда, возникающими в объеме полупроводниковой

сферической наночастицы.

Данный обзор посвящен анализу результатов теоретических и экспериментальных исследований по взаимодействию электромагнитного поля с одночастичными электронными и позитронными квантоворазмерными состояниями, возникающими в квазинульмерных металлических, диэлектрических и полупроводниковых наносистемах. Показано, что силы осцилляторов переходов, а также дипольные моменты переходов для одночастичных электронных и позитронных состояний в квазинульмерных наносистемах принимают гигантские значения, существенно превосходящие типичные значения соответствующих величин для объемных материалов. В рамках дипольного приближения установлено, что гигантские значения сечений поглощения света в изучаемых квазинульмерных наносистемах дают возможность использовать такие наносистемы в качестве новых сильно поглощающих материалов.

## 2. ДИПОЛЬНЫЕ МОМЕНТЫ ПЕРЕХОДОВ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В КВАЗИНУЛЬМЕРНЫХ НАНОСИСТЕМАХ

Вариационным методом в работах [34, 37, 47] был найден энергетический спектр внутренних поверхностных состояний  $E_{nl}(S)$  носителей заряда (электронов, дырок и позитронов), локализованных на внутренней поверхности сферической наночастицы. При этом для внутренних поверхностных состояний  $n = 1, l$  (где  $n$  и  $l$  — главное и орбитальное квантовые числа) была использована вариационная волновая функция в таком виде:

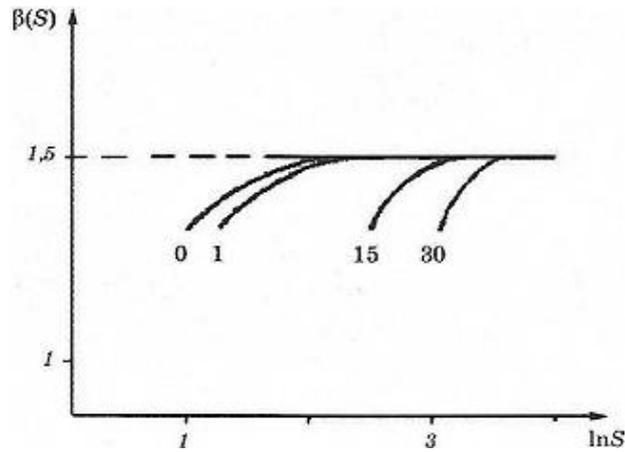
$$\chi_l(x, S) = A_l(S - x)^{l+1} x(2S - x) \exp(-\beta_l x), \quad (2)$$

Нормировочные постоянные  $A_l$  приведем только для случая  $l = 0, 1$ :

$$\begin{aligned} A_0 &= 2^{3/2} \beta_0^{7/2} b^{-1/2} [2\mu_0^4 - 12\mu_0^2 + 45 - (8\mu_0^4 + 36\mu_0^3 + \\ &\quad + 78\mu_0^2 + 90\mu_0 + 45) \exp(-2\mu_0)]^{-1/2}, \\ A_1 &= 2^{5/2} \beta_1^{9/2} b^{-1/2} [\mu_1^6 - 10\mu_1^4 + 315 - (4\mu_1^6 - 30\mu_1^5 + \\ &\quad + 123\mu_1^4 - 330\mu_1^3 + 585\mu_1^2 - 630\mu_1 + 315) \exp(-2\mu_1)]^{-1/2}, \end{aligned} \quad (3)$$

где безразмерный радиус наночастицы  $S = (a/b)$ ,  $x = (r/b)$  — расстояние носителя заряда до поверхности наночастицы в единицах  $b$  (1),  $\beta_l(S)$  — вариационный параметр, а параметры  $\mu_0$  и  $\mu_1$  соответственно равнялись  $\mu_0 = \beta_0(S)S$  и  $\mu_1 = \beta_1(S)S$ .

Результаты вариационных расчетов параметра  $\beta_l(S)$ , а также энергетического спектра внутренних поверхностных состояний но-



**Рис. 1.** Зависимость вариационного параметра  $\beta_l(S)$  от радиуса сферической наночастицы  $S = a/b$ . Цифры при кривых указывают значение  $l$ .

сителя заряда  $E_{1l}(S)$  при  $l = 0, 1, 15, 30$  изображены соответственно на рис. 1 и 2. Критические размеры наночастиц для указанных  $l$  имели соответственные значения [37, 47]:

$$S_c(1, 0) = 2,34; S_c(1, 1) = 3,1; S_c(1, 15) = 12,1; S_c(1, 30) = 21,3. \quad (4)$$

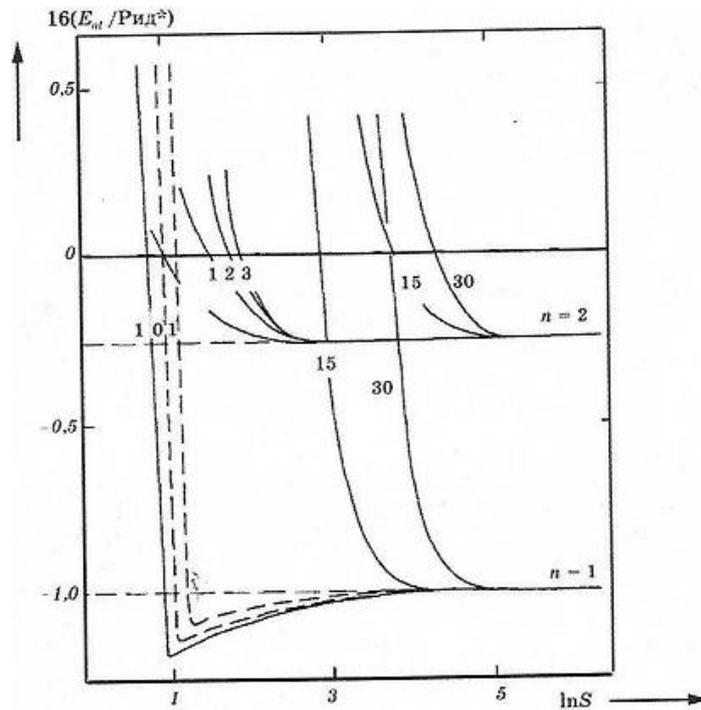
В области частот

$$\omega_{nl}(a) = E_{nl}(a)/\hbar, \quad (5)$$

соответствующих рассмотренным здесь внутренним поверхностным квантоворазмерным состояниям  $(n, l)$  носителей заряда в наночастице, длина световой волны намного больше размеров этих состояний ( $\sim b(1)$ ). Поэтому поведение таких квантоворазмерных состояний  $(n, l)$  в электромагнитном поле хорошо описывается дипольным приближением [43–46]. При этом оператор дипольного момента для внутренних поверхностных состояний в наночастице принимал вид [48]:

$$D(r) = \Lambda D^0(r), \quad D^0(r) = er, \quad \Lambda = \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}. \quad (6)$$

Для оценки величины дипольного момента достаточно рассмотреть переход между нижайшими дискретными состояниями  $(n, l)$  (например, между основными  $|1s\rangle = (n=1, l=0)$  и  $|1p\rangle = (n=1, l=1)$  состояниями). Для вычисления матричного элемента дипольного момента перехода  $D_{1,0}(a)$  носителя заряда из  $1s$ - в  $1p$ -состояние предположим, что однородное поле световой волны  $E(\omega, t)$  направ-



**Рис. 2.** Энергетический спектр внутренних поверхностных состояний носителя заряда  $E_{nl}(S)$ , как функция радиуса нанопоры  $S$ . Сплошные линии —  $E_{nl}(S)$  в приближении ВКБ, пунктир —  $E_{nl}(S)$  в вариационном методе. Цифры на кривых указывают значение  $l$ .

лено только по оси  $Z$  (где  $\omega$  — частота волны). При этом в качестве возмущения, вызывающего такой дипольный переход, возьмем индуцируемый полем  $E(\omega, t)$  дипольный момент  $D(r)$  (6).

Запишем выражение для дипольного момента перехода  $D_{1,0}(a)$  в таком виде [43]:

$$D_{1,0}(a) = \Lambda D^0_{1,0}(a), \tag{7}$$

где

$$D^0_{1,0}(a) = \langle 1s | D^0(r) | 1p \rangle = e \langle 1s | r | 1p \rangle \tag{8}$$

— дипольный момент перехода в вакууме. При этом вариационные волновые функции состояний  $|1s\rangle$  и  $|1p\rangle$  с учетом (2), (3) принимали вид:

$$\langle 1s | = \chi_0(x, S), \tag{9}$$

$$|1p\rangle = \chi_1(x, S). \quad (10)$$

После подстановки (9) и (10) в формулы (7) и (8) и проведенном в них интегрировании получим выражение для дипольного момента перехода [43]:

$$\begin{aligned} D_{1,0}(S) = \Lambda \cdot 16 \cdot 3^{-1} \cdot 6^{-1/2} S \frac{\mu_0^{7/2} \mu_1^{9/2}}{\mu_0 + \mu_1} & \left[ (\mu_0 + \mu_1)^5 - 16(\mu_0 + \mu_1)^4 + \right. \\ & + 125(\mu_0 + \mu_1)^3 - 570(\mu_0 + \mu_1)^2 + 1470(\mu_0 + \mu_1) - 1680 \left. \right] \times \\ & \times \left( 8\mu_0^4 - 36\mu_0^3 + 78\mu_0^2 - 90\mu_0 + 45 \right)^{-1/2} \left( 4\mu_1^6 - 30\mu_1^5 + 123\mu_1^4 - \right. \\ & \left. - 330\mu_1^3 + 585\mu_1^2 - 630\mu_1 + 315 \right)^{-1/2} eb. \end{aligned} \quad (11)$$

### 3. ПОГЛОЩЕНИЕ И РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ОДНОЧАСТИЧНЫХ КВАНТОВОРАЗМЕРНЫХ СОСТОЯНИЯХ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В КВАЗИНУЛЬМЕРНЫХ НАНОСИСТЕМАХ

Полученные в [43] результаты, относящиеся к величинам матричных элементов дипольных моментов переходов  $D_{1,0}(a)$  (11) для внутренних поверхностных квантоворазмерных локальных состояний, позволяют выяснить поведение рассматриваемых квазинульмерных наносистем при поглощении энергии электромагнитного поля в области частот  $\omega_{nl}(a)$  (5), соответствующих энергиям таких состояний  $E_{1,1}(S)$  и  $E_{1,0}(S)$  (рис. 2). Сечение поглощения на наночастице радиусом  $a$  выражается через ее поляризуемость  $A''(\omega, a)$  [49]:

$$\sigma_{abs}(\omega, a) = 4\pi(\omega/c) A''(\omega, a), \quad (12)$$

где  $c$  — скорость света в вакууме,  $\omega$  — частота внешнего электромагнитного поля.

Классическая теория без учета размерного квантования энергетического спектра внутренних локальных состояний дает следующее выражение для  $A''(\omega, a)$  (без учета эффектов действующего поля [50] в среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_i$  (где  $i = 1, 2$ )) [49]:

$$A''(\omega, a) = (4\pi/3)a^3\alpha''(\omega, a), \quad (13)$$

где  $\alpha''(\omega, a)$  — мнимая часть поляризуемости среды с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$  в объеме сферической наночастицы.

Если же состояния носителя заряда в наночастице квантованы, то ее поляризуемость  $A''(\omega, a)$  может быть легко найдена, если рассматривать сферическую наночастицу как один гигантский ион [43–46]. В этом случае поляризуемость заряженной наночастицы

$A''(\omega, a)$  можно выразить через матричный элемент дипольного момента перехода  $D_{1,0}(a)$  (11) между внутренними поверхностными квантоворазмерными состояниями  $(n, 1)$  [44].

При низких температурах

$$T < E_b/k \quad (14)$$

(меньших энергии связи  $E_b = \hbar^2/(2m_2^*a_B^{*2})$  таких квантоворазмерных состояний, где  $k$  — постоянная Больцмана,  $a_B^* = \epsilon_2 \hbar^2/(2m_2^*e^2)$  — боровский радиус носителя заряда с эффективной массой  $m_2^*$  в среде с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_2$  в объеме сферической наночастицы) поляризуемость  $A''(\omega, a)$  заряженной наночастицы дается выражением [44]:

$$A''(\omega, a) = \frac{e^2}{m_2^*} \sum_{\gamma} \frac{f_{0\gamma}(a)}{\omega_{\gamma}^2(a) - \omega^2 - i\omega\Gamma_{\gamma}(a)}, \quad (15)$$

где

$$f_{0\gamma}(a) = \frac{2m_2^*}{\hbar^2 e^2} [E_{1,\gamma}(a) - E_{1,0}(a)] |D_{\gamma 0}(a)|^2, \quad (16)$$

— сила осциллятора перехода носителя заряда с эффективной массой  $m_2^*$ , из основного  $1s$ - в  $1\gamma$ -состояние, которая выражается через матричный элемент дипольного момента перехода  $D_{\gamma 0}(a)$ ,  $E_{1,\gamma}(a) = \hbar\omega_{\gamma}(a)$  и  $E_{1,0}(a) = \hbar\omega_0(a)$  — энергии  $1\gamma$ - и  $1s$ -состояний,  $\Gamma_{\gamma}(a)$  — ширина возбужденного  $1\gamma$ -уровня [36].

В отсутствие связанных состояний носителей заряда величина  $(D_{\gamma 0}(a)/e)$  пропорциональна размеру области делокализации носителя заряда  $\sim a$  (при больших значениях  $\gamma$  величина  $D_{\gamma 0} = \gamma^{-1}ea$  [50]), а сила осциллятора перехода  $f_{0\gamma}(a)$  (16) будет пропорциональной  $f_{0\gamma}(a) \sim |D_{\gamma 0}(a)/e|^2 \sim a^2$ . Тогда поляризуемость  $A''(\omega, a)$  (15) и сечение поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  (12) наночастицы радиуса  $a$  имеют вид [50]:

$$\begin{aligned} A''(\omega, a) &= \omega f(\omega) a^2, \\ \sigma_{abs}(\omega, a) &= (4\pi/c) \omega^2 f(\omega) a^2, \end{aligned} \quad (17)$$

где функция  $f(\omega)$  не зависела от  $a$  и слабо зависела от частоты  $\omega$  так, что

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega^2 a^2. \quad (18)$$

Если же реализуются условия, при которых образуются связанные квантоворазмерные состояния носителя заряда вблизи сферической поверхности раздела двух различных диэлектрических сред, то при температурах (14), меньших энергии связи  $E_b$  таких состоя-

ний, основной вклад в поляризуемость  $A''(\omega, a)$  (15) наночастицы вносят переходы в дискретном спектре таких квантоворазмерных состояний. Выделяя в  $A''(\omega, a)$  (15) вклад одного такого резонансного состояния, поляризуемость наночастицы запишем в виде [44]:

$$A''(\omega, a) = f_{01}(a)F(\omega_1, \omega), \quad (19)$$

где функция

$$F(\omega_1, \omega) = \frac{e^2}{m_2^*} \frac{1}{\omega_1^2(a) - \omega^2 - i\omega\Gamma_1(a)} \quad (20)$$

имеет обычный резонансный вид и вблизи резонанса не зависит от  $a$  [50]. Здесь выделен резонансный член, соответствующий переходу между основными  $s$ - и  $p$ -квантоворазмерными состояниями, рассмотренными выше, для которых  $f_{01}(a)$  определяется выражениями (16) и (11).

Ясно, что ограничение указанными квантоворазмерными состояниями не влияет на выяснение поведения поляризуемости  $A''(\omega, a)$  (13) и поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  (12) в зависимости от размера наночастицы  $a$  при учете других состояний и для других резонансных частот, поскольку, как следует из (16), зависимость сил осцилляторов  $f_{01}(a)$  переходов в эти состояния от  $a$  является общей. Как следует из (12), (19) и (20), сечение резонансного поглощения наночастицей определяется выражением [44]:

$$\sigma_{abs}(\omega, S) = (4\pi/c)\omega f_{01}(S)F(\omega_1, \omega), \quad (21)$$

а сила осциллятора перехода  $f_{01}(S)$ , согласно (16) и (11), для внутренних поверхностных квантоворазмерных состояний имеет вид [44]:

$$f_{01}(S) = S^2 L \omega_1 (m_2^* b^2 / \hbar), \quad (22)$$

где параметр  $L$  для внутренних поверхностных состояний определяется выражением

$$L = 3^{-1} \cdot 2^{10} \cdot \Lambda^2 \frac{\mu_0^7 \mu_1^9}{(\mu_0 + \mu_1)^{18}} \left[ (\mu_0 + \mu_1)^5 - 16(\mu_0 + \mu_1)^4 + 125(\mu_0 + \mu_1)^3 - \right. \\ \left. - 570(\mu_0 + \mu_1)^2 + 1470(\mu_0 + \mu_1) - 1680 \right] (8\mu_0^4 - 36\mu_0^3 + 78\mu_0^2 - 90\mu_0 + 45)^{-1} \times \\ \times (4\mu_1^6 - 30\mu_1^5 + 123\mu_1^4 - 330\mu_1^3 + 585\mu_1^2 - 630\mu_1 + 315)^{-1}. \quad (23)$$

Сравнение выражений (21)–(23) показывает различный характер частотной и размерной зависимости сечения поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  электромагнитного поля наночастицей с локализованными в наночастице одночастичными квантоворазмерными состояниями носи-

телей заряда в различных физических условиях.

В отсутствие связанных состояний вблизи сферической поверхности раздела двух сред сечение поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  определялось формулой (18).

Для объемных квантоворазмерных состояний носителей заряда сечение поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  определялось формулой [44]:

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega F(\omega_1, \omega) a^{3/2}. \quad (24)$$

На поверхностных внутренних и внешних состояниях сечение поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  согласно (21)–(23), имеет одинаковую зависимость от радиуса наночастицы  $a$  [44]:

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega F(\omega_1, \omega) a^2. \quad (25)$$

Таким образом, локализация носителей заряда на сферической поверхности раздела и внутри наночастицы, согласно формулам (21)–(25), имеет различное проявление размерной и частотной зависимости в поглощении электромагнитного поля [43–46]. Это обстоятельство дает дополнительную возможность для спектроскопического обнаружения и исследования таких квантоворазмерных локальных состояний электронов, дырок и позитронов в наносистемах.

Следует отметить, что такую возможность дает и упругое рассеяние электромагнитной волны частоты  $\omega$  на наночастице с размером  $a$ , сечение которого [49]

$$\sigma_{sc}(\omega, a) = 2^7 \cdot 3^{-3} \cdot \pi^3 (\omega/c)^4 |A''(\omega, a)|^2, \quad (26)$$

в соответствии с формулами (19), (20), (22), (23) и (17), имеет различную размерную и частотную зависимость для разных типов рассмотренных здесь квантоворазмерных состояний носителей заряда.

Действительно, для поверхностных внутренних и внешних состояний, согласно формулам (19), (20) и (22), (23), сечение упругого рассеяния электромагнитного поля  $\sigma_{sc}(\omega, a)$  (26) описывается функциональной зависимостью от частоты  $\omega$  и размера наночастицы  $S$ , вида [44]:

$$\sigma_{sc}(\omega, S) = 2^7 \cdot 3^{-1} \cdot \pi^3 (\omega/c)^4 F^2(\omega_1, \omega) L^2 (m_2^* b^2 \omega_1 / \hbar)^2 S^4. \quad (27)$$

Для объемных локальных состояний носителей заряда сечение рассеяния  $\sigma_{sc}(\omega, S)$  (26) имеет зависимость от  $\omega$  и  $S$  вида [44]:

$$\sigma_{sc}(\omega, S) \sim (\omega/c)^4 F^2(\omega_1, \omega) (m_2^* b^2 \omega_1 / \hbar)^2 S^3. \quad (28)$$

В случае отсутствия связанных состояний вблизи наночастицы,

согласно (17), сечение рассеяния  $\sigma_{sc}(\omega, a)$  (26) описывается зависимостью от частоты  $\omega$  электромагнитной волны и радиуса наночастицы  $S$  вида [44]:

$$\sigma_{sc}(\omega, S) = 2^7 \cdot 3^{-1} \cdot \pi^3 (b/c)^4 \omega^6 f^2(\omega) S^4. \quad (29)$$

#### 4. СРАВНЕНИЕ ТЕОРИИ С ЭКСПЕРИМЕНТАМИ

В заключение кратко обсудим возможные физические ситуации, для которых актуальны полученные результаты.

В баблоне (макроскопической сферической нанополости в жидком сверхтекучем гелии) могут возникнуть связанные состояния электрона, начиная с размеров нанопоры ( $a \geq a_c(n, l)$ ), определяемого формулой [37]:

$$a \geq a_c(n, l) = [2(\varepsilon+2)/(3(\varepsilon+1))](n^2+nL)b, \quad (30)$$

где  $L = (l(1+l))^{1/2}$ . Поскольку значение  $\varepsilon = \varepsilon_1/\varepsilon_2 = 0,94$ , то критический радиус нанопоры, согласно формуле (30), равнялся  $a_c(1,0) = 10,9$  нм. При этом энергия связи локального состояния электрона в баблоне  $\approx 7,2$  мэВ [37].

В работе [47] показано, что в нанокристаллических металлах [29–33] возможно существование внутренних поверхностных состояний позитрона, локализованного в нанопорах. Характерной особенностью этих квантоворазмерных состояний является существование макроскопического критического размера  $a_c(n, l) \approx b$  (1), начиная с которого в нанопоре радиуса  $a \geq a_c(n, l)$  возникали локальные состояния  $(n, l)$  позитрона.

В работе [47] изучен энергетический спектр нижайших состояний  $(n, l)$  позитрона, локализованного в объеме сферической нанопоры радиуса  $a \approx (15–20)$  нм, находящейся в нанокристаллических металлах Al, Cu, Mo, Pd, Fe и Ni [30–33]. При этом предполагалось, что энергии таких состояний ( $E_{nl}(a) \ll V$ ) являлись малыми по сравнению с высотой потенциального барьера  $V \approx 6$  эВ, возникающего на границе раздела нанопора–металл [32, 33].

Для такой наноструктуры приведем оценки характерных размеров  $b \approx 0,32$  нм (1), энергии связи плоскостного состояния  $(n, l)$  позитрона [47]:

$$|E_{nl}| \approx 8,5 \cdot 10^{-1} / n^2 \text{ [эВ]}$$

и критических радиусов нанопоры  $a_c(n, l) = S_c(n, l)b$ . Согласно формуле (4) в [47] было получено, что позитрон может связываться в основном состоянии ( $n=1, l=0$ ) в объеме нанопоры радиусом  $a > a_c(1,0) \approx 0,75$  нм. Более того, в условиях экспериментов [29–33]

позитрон может находиться в связанном состоянии с квантовыми числами  $n = 1$  и  $l \leq 30$  (например, состоянию  $(n = 1, l = 30)$  соответствует нанопора размером  $a > a_c(1, 30) \approx 7$  нм), а также в связанном состоянии с квантовыми числами  $(n = 2, l \leq 30)$  (состоянию  $n = 2$  и  $l = 30$  отвечает нанопора радиусом  $a > a_c(2, 30) \approx 13,5$  нм).

Следует отметить, что если сферическая наночастица, в которой могут возникнуть внутренние поверхностные состояния носителя заряда, является полупроводником или диэлектриком [1–15], то энергия таких локальных состояний отсчитывается от края соответствующей зоны  $E_{nl}(S) = 0$  (зоны проводимости или валентной зоны).

В случае если наночастица заполнена газом (например, для баблонных состояний [27, 28, 36], или нанопор в нанокристаллических металлах [29–33, 47]), энергия внутренних поверхностных состояний  $E_{nl}(S) = 0$  совпадает с вакуумным уровнем.

Исследования изучаемых здесь внутренних поверхностных состояний позитрона и электрона, локализованных в объеме сферической нанопоры радиусом  $a$  (см. рис. 2), находящейся в нанокристаллических металлах, возможны в процессах поглощения (и излучения) на переходах с частотами [10, 13, 14, 34–39]:

$$\omega_{nl}^{n'l'}(a) = \frac{E_{nl}(a) - E_{n'l'}(a)}{\hbar},$$

лежащими в инфракрасной области спектра. Правилами отбора разрешены переходы с изменением (или сохранением) главного квантового числа  $n$ ; при этом орбитальное квантовое число меняется на единицу:  $(l' - l) = 1$  [34–39]. В нанопорах малых размеров  $a < a_c(n, l)$  такие процессы отсутствуют. В нанопорах больших размеров  $a > a_c(n, l)$  в поглощение будут давать вклад новые состояния позитрона  $(n, l)$ , начиная с состояния  $(1, 0)$  при  $a > a_c(1, 0)$  [47]. Поэтому спектроскопически можно контролировать, например, возникновение нанопор с размерами  $a \approx b$  (1) в нанокристаллических металлах, фиксируя стадию образования нанопор начиная с размеров  $a \approx 1$  нм [47].

Проведем оценку сечений поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  (21) и рассеяния  $\sigma_{sc}(\omega, a)$  (27) света на вышеуказанных квантоворазмерных состояниях электрона в баблоне [37, 28, 37] и позитрона в нанопоре нанокристаллических металлов [29–33, 47] в случае выделенного перехода  $(1s \rightarrow 1p)$  в условиях экспериментов [27–33]. Предположим, что частота  $\omega$  световой волны находилась вдали от резонансной частоты  $\omega_1$  дискретного состояния электрона (позитрона), а также что уширение  $\Gamma_1(a)$  уровня с энергией  $E_{1,1}(a) = \hbar\omega_1(a)$  мало (т.е.  $(\Gamma_1/\omega_1) \ll 1$ ) [36].

В таблице приведены оценки сил осцилляторов переходов  $f_{0,1}(a)$  (22), дипольных моментов переходов  $D_{1,0}(a)$  (11), поляризуемостей  $A''(a)$  (19), сечений поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  (21) световой волны с частотой  $\omega$  и с энергией кванта  $\hbar\omega = 8,5 \cdot 10^{-1}$  мэВ (при этом отношение

**ТАБЛИЦА.** Параметры связанных состояний электронов и позитронов, локализованных внутри нанопор с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_2$  в диэлектрических (металлических) средах с  $\varepsilon_1$ .

Среда	Нанопора				$(E_{1,1} - E_{1,0})$ , мэВ	$f_{01}$ , $10^{-1}$	$D_{1,0}$ ( $D = e\text{Å}$ )	$A''$ , $10^{-24}$ см <sup>3</sup>	$\sigma_{abs}$ , $10^{-24}$ см <sup>2</sup>
	$\varepsilon_1$	$a$ , нм	$\varepsilon_2$	$\frac{m_{e(p)}}{m_0}$					
He	1,06	4,2	1,0	1	6,5	3,81	$1,5 \cdot 10^4$	$4,8 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^4$
Металл	$\infty$	2,0	1,0	1	8,5	4,2	4,34	$5,3 \cdot 10^3$	$1,8 \cdot 10^4$

Примечание.  $a$  — радиус наночастицы,  $m_{e(p)}$  — эффективная масса электрона (позитрона) в нанопоре,  $(E_{1,1}(a) - E_{1,0}(a))$  — разница энергий электрона (позитрона), находящихся в  $1p$ - и  $1s$ -состояниях,  $f_{01}$  — силы осциллятора перехода,  $D_{1,0}$  — дипольные моменты перехода, выраженные в единицах [Дебай] ( $D = e\text{Å}$ ),  $A''$  — поляризуемость наночастицы,  $\sigma_{abs}$  — сечение поглощения света наночастицей.

$(\omega/\omega_1)^2 = 10^{-2}$ , а частота волны  $\omega$  лежит в инфракрасной области) на вышеуказанных квантоворазмерных состояниях электрона (позитрона), возникающих в объеме нанопоры в квазиульмерных системах.

Если учесть (см. таблицу), что силы осцилляторов переходов  $f_{0,1}(a) \approx 0,4$ , а вместе с ними и дипольные моменты переходов  $D_{0,1} \approx \approx 10D$  (где  $D = e\text{Å}$  — [Дебай]) в нанопорах радиусами  $a \approx (2,0-4,0)$  нм принимают гигантские значения (во много раз превосходящие типичные значения дипольных моментов переходов для неограниченных полупроводниковых  $A_3B_5$  и диэлектрических материалов, в которых они  $\sim 10^{-1}D$  [51]), а дипольные переходы в электромагнитном поле между ближайшими квантоворазмерными уровнями  $E_{nl}(a)$  в нанопорах разрешены правилами отбора с изменением орбитального квантового числа  $l$  на единицу [52], то, очевидно, что рассматриваемые нами квазиульмерные системы являются сильно нелинейными средами для инфракрасного излучения.

Из оценок, приведенных в таблице, следует, что величина сечения поглощения света в нанопорах радиусами  $a \approx (2,0-4,0)$  нм достигает гигантских значений ( $\sigma_{abs}(\omega, a) \approx 10^{-20}$  см<sup>2</sup>). При этом она на четыре порядка превышает типичные значения атомных сечений поглощения [51]. Поскольку значения сечений рассеяния  $\sigma_{sc}(\omega, a)$  (27), по сравнению с соответствующими значениями сечений поглощения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  (21), в условиях экспериментов [27–33], пренебрежимо малы ( $(\sigma_{sc}/\sigma_{abs}) \cong 10^{-12}$ ), то значения  $\sigma_{abs}(\omega, a)$  не внесены в таблицу.

Таким образом, гигантские значения сечений поглощения света в изучаемых квазиульмерных системах дают возможность использовать такие наноструктуры в качестве новых сильно поглощающих материалов в широкой области длин волн, которая может ши-

роко варьироваться в зависимости от природы контактирующих материалов.

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. А. И. Екимов, А. А. Онущенко, *Письма в ЖЭТФ*, **40**, № 8: 337 (1984).
2. А. И. Екимов, А. А. Онущенко, Ал. Л. Эфрос, *Письма в ЖЭТФ*, **43**, № 6: 292 (1986).
3. V. M. Agronovich et al., *Sol. State Commun.*, **102**: 631 (1997).
4. Ж. И. Алферов, *ФТП*, **32**, № 1: 3 (1998).
5. Н. Р. Кулиш, В. П. Кунец, М. П. Лисица, *УФЖ*, **35**, № 12: 1817 (1990).
6. Н. Р. Кулиш, В. П. Кунец, М. П. Лисица, *УФЖ*, **41**, № 11, 12: 1075 (1996).
7. Н. Р. Кулиш, В. П. Кунец, М. П. Лисица, *ФТТ*, **39**, № 10: 1865 (1997).
8. В. Ф. Венгер, А. В. Гончаренко, М. Л. Дмитрук, *Оптика малих частинок і дисперсних середовищ* (Київ: Наукова думка: 1999).
9. С. И. Покутний, *Теория экситонов в квазинульмерных полупроводниковых системах* (Одесса: Астропринт: 2003).
10. А. П. Шпак, С. И. Покутний, *Спектроскопия электронных и экситонных состояний в низкоразмерных системах* (Киев: Академперіодика: 2005).
11. А. П. Шпак, С. И. Покутний, *УФМ*, **6**, № 2: 105 (2005).
12. С. І. Покутній, *УФЖ. Огляди*, **3**, № 3: 23 (2006).
13. А. П. Шпак, С. І. Покутній, *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*, **3**, № 3: 667 (2005).
14. А. П. Шпак, С. И. Покутний, В. Н. Уваров, *УФМ*, **8**, № 1: 1 (2007).
15. С. І. Покутній, *УФЖ*, **46**, № 7: 701 (2001).
16. А. И. Екимов, П. А. Скворцов, Т. В. Шубина, *ЖТФ*, **59**, № 3: 202 (1989).
17. K. Vajema and R. Marlin, *Phys. Rev. B*, **36**: 1300 (1987).
18. С. И. Покутний, *ФТП*, **34**, № 9: 1120 (2000); idem, *J. Appl. Phys.*, **96**, No. 2: 1115 (2004).
19. P. Zanardi and F. Rossi, *Phys. Rev Lett.*, **81**, No. 21: 4752 (1998).
20. D. Loss and D. P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A*, **51**, No. 1: 120 (1998).
21. A. Imamoglu et al., *Phys. Rev. Lett.*, **83**, No. 20: 4204 (1999).
22. C. H. Bennett and D. P. DiVincenzo, *Nature*, **404**: 247 (2000).
23. С. В. Зайцев, Н. Ю. Гордеев, В. М. Устинов и др., *ФТП*, **31**, № 5: 539 (1997).
24. В. Я. Грабовскис, Я. Я. Дзенис, А. И. Екимов, *ФТТ*, **31**, № 1: 272 (1989).
25. S. I. Pokutnyi, *Phys. Lett. A*, **342**: 347 (2005).
26. N. H. March and M. Parrinello, *Collective Effects in Solids and Liquids* (Bristol: Adam Hilger Ltd: 1999).
27. А. П. Володин, М. С. Хайкин, В. С. Эдельман, *Письма в ЖЭТФ*, **26**: 707 (1977).
28. В. Б. Шикин, *Письма в ЖЭТФ*, **27**: 44 (1978).
29. М. М. Нищенко, С. П. Лихторович, *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*, **1**, № 1: 193 (2003).
30. H. E. Shaefer, *Mechanical Properties and Deformation Behavior of Materials Having Ultrafine Microstructure* (Ed. M. A. Nastasi) (Dordrecht, Netherlands: Kluwer Academic Press: 1993).
31. H. E. Shaefer, *Mater. Sci. Forum*, **15–18**: 955 (1987).
32. H. E. Shaefer, *Phys. Rev. B*, **38**, No. 14: 9545 (1988).
33. H. E. Shaefer, *Nanostruct. Mater.*, **6**, No. 18: 869 (1995).
34. Н. А. Ефремов, С. И. Покутний, *ФТТ*, **27**, № 1: 48 (1985); idem, *Sov. Phys.*

- Solid State*, **27**, No. 1: 27 (1985).
35. Н. А. Ефремов, С. И. Покутний, *ФТТ*, **32**, № 10: 2921 (1990); idem, *Sov. Phys. Solid State*, **32**, No. 10: 1697 (1990).
  36. Н. А. Ефремов, С. И. Покутний, *ФТТ*, **33**, № 10: 2845 (1991); idem, *Sov. Phys. Solid State*, **33**, No. 10: 1607 (1991).
  37. S. I. Pokutnyi, *Phys. Stat. Sol. (b)*, **165**, No. 1: 109 (1991).
  38. S. I. Pokutnyi, *Phys. Stat. Sol. (b)*, **172**, No. 2: 573 (1992).
  39. С. И. Покутний, *ФТТ*, **35**, № 2: 257 (1993); idem, *Phys. Solid State*, **35**, No. 2: 129 (1993).
  40. С. И. Покутний, *ФТП*, **31**, № 12: 1443 (1997); idem, *Semiconductors*, **31**, No. 12: 1247 (1997).
  41. S. I. Pokutnyi, *Phys. Low Dim. Struct.*, **7/8**: 39 (2002).
  42. S. I. Pokutnyi, *Phys. Semicond., Quantum Electr., Optoelectron.*, **7**, No. 9: 838 (2004).
  43. С. И. Покутний, *ФТТ*, **39**, № 4: 720 (1997); idem, *Phys. Solid State*, **39**, No. 4: 634 (1997).
  44. С. И. Покутний, *ФТТ*, **39**, № 4: 606 (1997); idem, *Phys. Solid State*, **39**, No. 4: 528 (1997).
  45. С. И. Покутний, *ФТП*, **40**, № 2: 223 (2006); idem, *Semiconductors*, **40**, No. 2: 217 (2006).
  46. S. I. Pokutnyi, *Ukr. J. Phys.*, **51**, № 5: 506 (2006).
  47. А. П. Шпак, С. И. Покутний, Ю. А. Куницкий, *Металлофиз. новейшие технол.*, **29**, № 2: 225 (2007).
  48. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред* (Москва: Наука: 1982).
  49. В. Гайтлер, *Квантовая теория излучения* (Москва: Наука: 1956).
  50. В. М. Агранович, В. Л. Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов* (Москва: Наука: 1979); idem, *Crystral Optics with Spatial Dispersion and Excitons* (Springer: New York: 1984).
  51. Ю. И. Уханов, *Оптические свойства полупроводников* (Москва: Наука: 1977).
  52. А. С. Давыдов, *Квантовая механика* (Москва: Наука: 1973).