

# Оптические переходы для 2D электронов на границе твердый водород – пар

В. Шикин<sup>1)</sup>, С. Назин

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 17 октября 2005 г.

Обсуждаются детали задачи о “вертикальных” переходах между дискретными уровнями 2D электронов на поверхности жидких (твердых) диэлектриков при наличии конечной плотности газа над этой поверхностью (собственные пары, или искусственно созданные комбинации типа твердый водород-газообразный гелий). Уточнена структура взаимодействия электрона с газовой средой, где так называемая длина рассеяния оказывается зависящей от плотности газа. Отмечена роль в формировании спектра 2D электронов сил Ван-дер-Ваальса, притягивающих газовые атомы к поверхности диэлектрика. Введено понятие о квази-2D связанных электронных состояниях на газовых атомах. С использованием этой информации обсуждаются экспериментальные данные о влиянии газа на частоты оптических переходов для 2D электронов над поверхностью твердого водорода.

PACS: 67.55.Ig

Проблема квантового компьютера и дискутируемая в литературе возможность ее реализации с помощью 2D электронов над гелием возродили интерес к оптическим переходам между дискретными электронными уровнями на поверхности жидких (твердых) диэлектриков (см., например, [1, 2]). В этой связи имеет смысл обсудить ряд явлений, сопровождающих “вертикальное” возбуждение 2D электронов. Одним из них является эффект давления. Конечное давление газа меняет частоты переходов в дискретной электронной системе, погруженной в газ, если он по разному сдвигает основной и вышележащие уровни. Селективные “газовые” сдвиги уровней, известные для атомных систем еще со времен работ [3–5], имеют место и для “рыхлых” 2D электронных состояний на плоской границе жидкость – пар. Но причины газовой селекции несколько различны. В атомных системах контактное влияние газа на глубокие электронные уровни ничтожно. Его следует ожидать лишь для высоколежащих, квазиклассических состояний с масштабом, который оценивается в так называемом оптическом приближении, когда величина сдвига  $W_0$  определена выражением (см. [3–5])

$$W_0 = \frac{2\pi\hbar^2 a_0}{m} n_g, \quad (1)$$

где  $m$  – масса свободного электрона,  $n_g$  – средняя плотность газа,  $a_0$  – так называемая длина рассеяния ( $s$ -компоненты амплитуды рассеяния). А его наличие проявляется лишь в оптических сериях с участием

переходов из основного состояния на высокие уровни, расположенные вблизи границы сплошного спектра (детали см. в [3–5]).

Рыхлые 2D электронные состояния над жидким (твердым) диэлектриком имеют другой масштаб локализации (по сравнению с атомным). В результате основное и вышележащие 2D состояния “погружены” в газовую среду практически равновероятно (во всяком случае, в оптическом приближении (1)). И хотя газовые сдвиги каждого из электронных уровней, конечно, присутствуют, все они, посчитанные в оптическом приближении, одинаковы. Расстояние между уровнями не меняется, и, как следствие, давление не должно влиять на оптические частоты. Селективность взаимодействия 2D электронов с газовой средой оказывается возможной вне рамок оптического приближения. При этом выясняется важность вертикальной локализации 2D электрона в основном состоянии на длине  $\lambda_1$ , заметно меньшей структурной характеристики газа  $R \propto n_g^{-1/3}$ . 2D эффект давления становится реальным, если

$$\lambda_1 \leq R, \quad \text{и} \quad \lambda_l \geq R \text{ для } l > 1, \quad R = n_g^{-1/3}. \quad (2)$$

Здесь  $\lambda_1, \lambda_l$  – длины локализации волновой функции электрона над подложкой в основном и возбужденном состояниях,  $n_g$  – средняя плотность газа.

Таким образом, в “плоском” случае для наблюдения эффекта давления можно обойтись без высоколежащих электронных уровней, необходимых для эффекта давления в атомной оптике. Но требуется выполнение условий (2), позволяющих работать с минимальными номерами электронного спектра.

<sup>1)</sup>e-mail: shikin@issp.ac.ru

Сценарий (2) был реализован в изящных экспериментах [6, 7]. Манипулируя подложками, авторы показали, что на границе пар – жидккий гелий для переходов 1–2 эффект давления практически незаметен (условия (2) сильно нарушены). Для границы пар – жидкый неон газовый эффект слабо выражен. Если же речь идет о комбинации пар – твердый водород (дейтерий), или твердый  $H_2$  + газообразный гелий, то условия (2) благоприятны, и эффект давления четко наблюдаем. При этом для задачи с водородом

$$d\omega_{12}/dn_g < 0, \quad \hbar\omega_{12} = |\Delta_2 - \Delta_1|, \quad (3)$$

а для пары  $H_2 + He$

$$d\omega_{12}^*/dn_g > 0, \quad \hbar\omega_{12}^* = |\Delta_2^* - \Delta_1^*|. \quad (4)$$

Здесь  $\Delta_l, \Delta_l^*$  – 2D электронные уровни над твердым водородом в парах водорода или в газообразном гелии, соответственно (комбинация твердый + газообразный  $H_2$  разрешена фазовой диаграммой водорода; что касается пары  $H_2 + газообразный гелий$ , то она реализуется при достаточно низких для газа  $H_2$  температурах, когда собственный пар водорода практически вымерз, а гелий над водородом чувствует себя вполне нормально).

Специфика взаимодействия основного 2D электронного состояния с газом, чему сами авторы [6, 7] не придали особого значения, а также результаты (3), (4) нуждаются в трактовке. И если неравенство (4) выглядит естественным (энергия взаимодействия электронов с плотным гелием положительна), то в случае  $H_2$  налицо парадокс: твердый  $H_2$ , как и гелий, выталкивает электроны из своего объема (этим, собственно, и объясняется наличие 2D электронных состояний на границе твердый водород – пар), а газообразная среда  $H_2$  притягивает (что объясняет отрицательный знак производной (3)). Детальное обсуждение перечисленных вопросов содержится в данной работе.

**1.** Начнем с вопроса об энергии взаимодействия  $W_0$  малоэнергичного электрона с газовой средой. Традиционным здесь является оптическое приближение (1). Определение  $W$  (1) верно, если взаимодействие электрона с атомами носит контактный характер

$$V_0(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) = \frac{2\pi\hbar^2 a_0}{m} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i), \quad (5)$$

где  $\mathbf{r}, \mathbf{R}_i$  – координаты электрона и данного атома,  $a_0$  – эффективная амплитуда рассеяния электрона на отдельном атоме, слабо зависящая от плотности газа. Но в интересующей нас задаче одним из участников является поляризационное притяжение

$$V(r) = \begin{cases} V_0, & r \leq a \\ -\alpha e^2 / 2r^4, & r > a \end{cases}, \quad (6)$$

для которого введение длины рассеяния проблематично (см. [8, 9]), а координатную зависимость трудно назвать короткодействующей. Здесь  $\alpha$  – поляризуемость атома,  $a$  – его радиус. Потенциал  $V(r)$  (6) весьма груб для аккуратного расчета энергии связи лишнего электрона с нейтральным атомом в благородных газах (см., например, [10]). Основная неточность связана с необходимостью моделировать граничное условие для волновой функции электрона на поверхности атома радиуса  $a$ , что позволяет избежать падения частицы на притягивающий центр и свести задачу о локализации электрона к одноточной. Несколько серьезна проблема граничных условий, видно хотя бы из того факта, что атом гелия, имеющий наименьшую среди благородных газов атомную поляризацию  $\alpha$ , связывает лишний электрон с энергией связи  $\sim 0.06$  эВ, а другие представители этого ряда с гораздо большими  $\alpha$  связанных состояний не имеют (подробнее см. [10]). Предложенный в [11] одноэлектронный формализм качественно учитывает это соображение. Речь идет о решении волнового уравнения в сферической ячейке Вигнера–Зейтца с данным атомом в ее центре и граничными условиями на волновую функцию  $\psi(r)$ , содержащими возможность перехода электрона из ячейки в ячейку, а также специфику поведения электрона вблизи атома (образование или нет данным атомом отрицательного иона). В итоге можно определить электронную энергию  $W$  в ячейке и, сравнивая ее с  $W_0$  (1), найти зависимость эффективной длины рассеяния  $a_0$  от плотности газа. Такая программа осуществлена в [11] для семейства инертных газов. Аналогичные расчеты с водородом  $H_2$  в модели, не содержащей локализации на отдельной молекуле  $H_2$ , представлены на рис. 1 и 2 (подробная книга [10] о разнообразных отрицательных ионах не приводит никаких данных относительно  $H_2^-$ ; кроме того, версия с обращением в ноль волновой функции электрона на сфере радиуса  $a$  центрального атома ячейки Вигнера наименее благоприятна для появления отрицательной части в энергии электрона  $W(n_g)$ , и потому результаты рис. 1, 2 имеют смысл оценок снизу). Величина  $\alpha = 5.52a_B^3$  взята из [12]. Производ в выборе эффективного радиуса  $a$  молекулы  $H_2$  использован для подгонки нулевой точки энергии  $W$  к плотности жидкого водорода. Область отрицательных значений  $a_0$ , необходимая для качественно правильной трактовки данных [6, 7], отмечена на рис. 2 стрелками.

**2.** Важной деталью, позволяющей авторам [6, 7] объяснить свои наблюдения, являлось отсутствие влияния газа на основное состояние электрона над водородной подложкой и его наличие для уровня 2

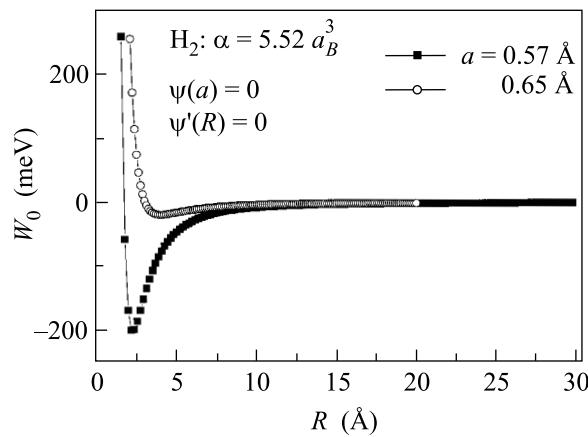


Рис.1. Поведение энергии  $W_0$  в функции от газовой плотности для молекулярного водорода с использованием граничных условий:  $\psi(a) = 0$ ,  $d\psi/dr|_{r=R} = 0$ ,  $R = n_g^{-1/3}$ . Постоянная  $a$  подбирается так, чтобы энергия  $W$  проходила через ноль в разумной области  $n_g$ , отвечающей жидкому состоянию водорода. При этом масштаб длины рассеяния  $a_0(n_g)$  (см. рис.2) однозначно определен

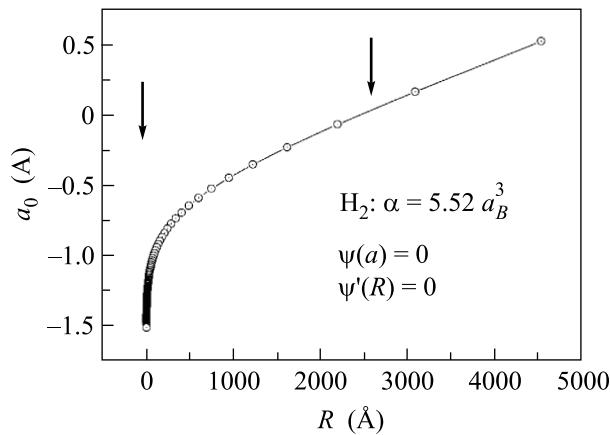


Рис.2. Длина рассеяния  $a_0$ , возникающая из сравнения энергий  $W_0$  (рис.1) и  $W_0$  (1). Стрелками отмечена область отрицательных значений  $a_0$ , необходимая для качественно правильной трактовки данных экспериментов [6, 7],  $R = n_g^{-1/3}$

(см. комментарии к (1), (2)). Но, с другой стороны, плотность газа  $n_g(z)$  заметно повышена именно вблизи подложки. Придерживаясь сценария [6, 7], надо разбираться с этим затруднением.

Причиной локального уплотнения  $n_g(z)$  являются силы Ван дер Ваальса (ВдВ) между газовыми атомами и подложкой. В классическом приближении

$$n_g(z) = n_g \exp(f\Omega/Tz^3), \quad \Omega \simeq 4\pi a^3/3. \quad (7)$$

Здесь  $n_g$  – средняя плотность газа вдали от подложки,  $f$  – энергия Ван дер Ваальса (порядка 20 К),  $\Omega$  –

объем газового атома, ось  $Z$  направлена по нормали к подложке, ее положительное направление отвечает газовой фазе.

#### Комбинация энергий

$$V(z) = W_0(z) + V_{im}(z), \quad V_{im}(z) = -\Lambda/z, \quad (8)$$

$$\Lambda = (\epsilon - 1)e^2/4(\epsilon + 1),$$

где  $\epsilon$  – диэлектрическая постоянная диэлектрика (ее значение для водорода взято нами из [13]),  $W_0(z)$  – энергия из (1) с  $n_g(z)$  (7) (и возможной зависимостью  $a_0$  от  $n_g$ ) ответственна за локализацию электронов вблизи поверхности диэлектрика. В отличие от вакуумного предела с резкой границей, эта энергия не имеет сингулярности, и потому чисто “водородное” приближение для волновых функций и собственных энергий становится неоптимальным. Ясно лишь, что газовая неоднородность сдвигает электрон в область  $z > 0$ , то есть степень локализации электрона уменьшается по сравнению с “водородным” пределом. Масштаб сдвигки можно оценить, определив положение минимума потенциала  $V(z)$  (8)

$$z_{\min}^2 = \frac{6\pi\hbar^2 a_0}{m} n_g \frac{f\Omega}{\Lambda T}; \quad (9)$$

масштаб  $z_{\min}$  – несколько ангстрем.

Возмущение (8) может быть учтено приближенным известным способом (введение несингулярного потенциала  $U(z)$  по аналогии с [14]):

$$V(z) = \begin{cases} V_0, & z < 0 \\ -\Lambda/(z + z_{\min}), & z > 0 \end{cases}, \quad (10)$$

где  $z_{\min}$  из (9),  $V_0 > 0$  – энергия электрона в конденсированной фазе; предполагается, что эта энергия не зависит от плотности газа. Обычно величина  $z_{\min}$  выбирается для лучшего соответствия экспериментальных частот оптических переходов между 2D электронными уровнями над жидкостью (см. [14]). В данном случае масштаб  $z_{\min}$  задан, а сдвиги уровней подсчитываются с помощью

$$\Delta_l = \Delta_l^0 + \frac{\hbar^2}{2m} \left[ z_{\min} - \left( \frac{\hbar^2}{2mV_0} \right)^{1/2} \right] (df_l/dz)^2 \Big|_{z=0}. \quad (11)$$

Производные  $df_l/dz|_{z=0}$  уменьшаются с ростом  $l$ . Следовательно, оптические частоты должны падать при  $z_{\min} \neq 0$ . Качественно это понятно, так как пролойка  $z_{\min} \neq 0$  эффективно отодвигает электрон от основной подложки.

Вклад канала (11) будет учтен при построении общей зависимости  $\omega_{12}(n_g)$  для водорода. Ясно, однако, что он не чувствителен к знаку  $a_0$ .

**3.** Обсудив упрощения в описании взаимодействия удаленного от границы раздела жидкость – пар электрона с газовой средой (оно имеет вид (4) с  $a_0$  из данных рис.2) и выяснив, как реагирует 2D электрон на ВдВ уплотнение газа вблизи границы жидкость – пар, обратимся к вопросу о возможных причинах выделенности основного состояния 2D электрона в его взаимодействии с газовой средой на фоне аналогичной задачи вдали от границы. Напомним, в связи с этим, что если за основу электрон-газового взаимодействия брать выражение  $W_0$  (1) даже с перенормированной величиной длины рассеяния, то поправки первого порядка к энергиям основного,  $l = 1$ , и возбужденных,  $l > 1$ , уровней одинаковы в условиях постоянства газовой плотности вплоть до границы раздела. Соответствующие интегралы допускают вынесение энергии взаимодействия за знак интегралов, а остающиеся выражения имеют вид нормировочных, одинаковых для всех электронных состояний.

В альтернативных терминах “ячеек”, которым естественно воспользоваться и вблизи границы, возникают качественно новые обстоятельства, влияющие на формирование структуры ячейки. Во-первых, ее периферия должна иметь цилиндрическую форму, требование, навязываемое граничными условиями. Во вторых, при выполнении неравенства  $\lambda_1 \leq R$  центральный атом не распределен с равной вероятностью вдоль всей оси  $Z$  (как это было бы в оптическом приближении), а с хорошо определенной вероятностью находится на конечном расстоянии  $z_0$ , примерно совпадающем с положением максимума  $z$ -компоненты волновой функции электрона. Последнее утверждение не очевидно и должно доказываться в рамках предлагаемой модели.

Формально речь идет о решении волнового уравнения для электрона (с волновой функцией  $\psi(\rho, z)$ , где  $\rho$  – двумерный радиус вдоль поверхности подложки), находящегося в поле сил изображения  $V_{im}(z)$  из (8), удерживающих его вблизи поверхности с диэлектрической постоянной  $\epsilon = \epsilon_H = 1.2936$ , и поляризационного потенциала  $V(z - z_0, \rho)$  атома из (6), расположенного на высоте  $z_0$  над поверхностью,

$$V_{\text{total}}(z, \rho) = -\frac{\alpha e^2}{2((z - z_0)^2 + \rho^2)^2} + V_{im}(z). \quad (12)$$

Границные условия

$$\psi|_{z=0} = 0, \quad \psi|_{z=h} = 0, \quad \psi|_{(z-z_0)^2 + \rho^2 = a^2} = 0, \quad (13)$$

$$\left. \frac{\partial \psi}{\partial \rho} \right|_{\rho=R_c} = 0, \quad R_c = n_g^{-1/3} / \sqrt{\pi}$$

имеют “сферический” вид на газовом атоме с центром в точке  $z = z_0, \rho = 0$  и цилиндрическую структу-

ру на внешних поверхностях ячейки (высота цилиндра  $h = z_0 + 2R_c$ , где  $R_c$  – радиус цилиндра, была достаточно большой для того, чтобы волновая функция основного состояния в поле сил изображения практически обращалась в ноль при  $z = h$ ).

Полная энергия электрона при фиксированной плотности газа (то есть заданном значении  $R_c$ ) и варьировании параметра  $z_0$  проходит через глубокий минимум в области  $z_0 = z_0^*$ , коррелирующей с положением максимума невозмущенной волновой функции электрона  $\psi_1(\rho, z)$  над поверхностью диэлектрика в задаче без газовой плотности. Наличие такого экстремума, слабо зависящее от  $R_c$ , иллюстрируется рис.3 с двумя значениями этого радиуса. Пола-

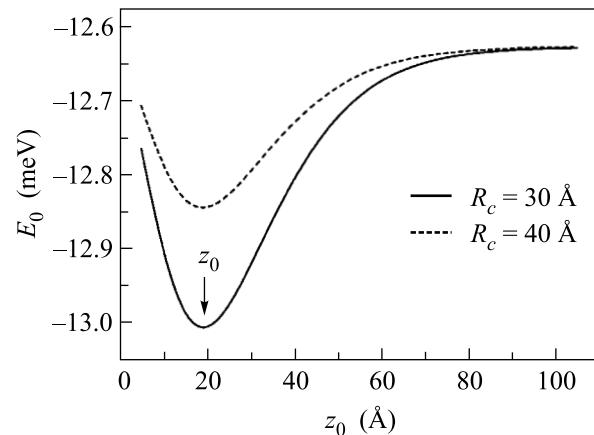


Рис.3. Зависимость энергии основного состояния электрона  $W_1(z_0, n_g)$  в цилиндрической ячейке (12), (13) от положения  $z_0$  центрального атома. Отчетливо виден экстремум в точке  $z_0 = z_0^*$

гая, что газовый атом находится в основном, именно в таком экстремуме, мы добиваемся однозначности в определении минимальной энергии электрона  $W_1(z_0^*, n_g)$  как функции газовой плотности.

Таким образом, в наших руках – характерная энергия сдвига  $W_l(n_g)$  высоколежащих уровней, которую мы оцениваем в оптическом приближении формулой (1), величина  $W_1(z_0^*, n_g)$ , следующая из численного решения задачи (12), (13) с фиксацией положения центрального атома ячейки в точке  $z_0$ , отвечающей экстремуму энергии рис.3 и сдвиги уровней ВдВ происхождения из (11). Располагая этой информацией, можно построить сдвиг частоты  $\omega_{21}(n_g)$ , пригодный для сравнения теории с данными [6, 7]:

$$\omega_{21}(n_g) = (\delta\Delta_{21}^0 + \delta\Delta_{21}^{VdW} + \delta\Delta_2 - \delta\Delta_1)/\hbar, \quad (14)$$

где  $\delta\Delta_{21}^0$  – исходная разность уровней энергии электрона без газа,  $\delta\Delta_{21}^{VdW} = \Delta_2 - \Delta_1$  с  $\Delta_{1,2}$  из (11),  $\delta\Delta_2$  – сдвиг уровня 2 в оптическом приближении,  $\delta\Delta_1$  –

сдвиг уровня 1 в модели, описываемой уравнениями (12), (13).

На рис.4, иллюстрирующем конечные результаты, представлены следующие зависимости: штрихова-

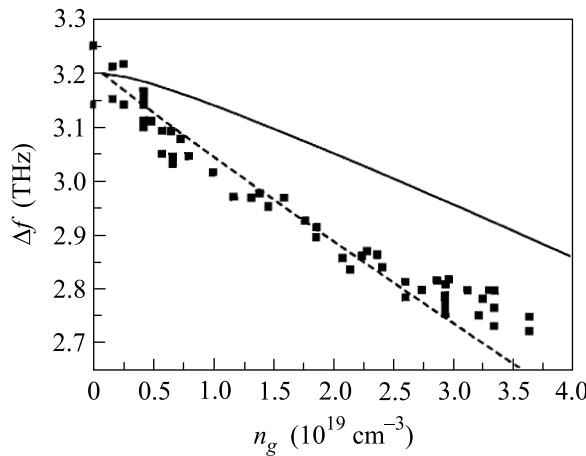


Рис.4. Эффект давления (влияние газовой плотности на “вертикальные” переходы) для перехода 1–2 в 2D электронной системе на границе твердый водород – собственный пар в пренебрежении (штриховая линия) и с учетом (сплошная кривая) зависимости энергии основного состояния 2D электрона от плотности газа (детали см. в тексте). Черные квадраты – экспериментальные точки из [6, 7]. Величина  $a_0$  для экспериментальных условий [6, 7] имеет масштаб  $a_0 \simeq -1.4a_B$

вая линия – расчет сдвига частоты перехода 1–2 в оптическом приближении (1) для уровня 2 с длиной расстояния, приведенной на рис.2, и в пренебрежении газовым возмущением уровня 1; сплошная кривая – более реалистический сдвиг того же перехода при наличии газовой коррекции также и основного состояния 2D электрона, следующей из решения волновой задачи (12), (13). В обоих случаях наклон  $d\omega_{12}/dn_g < 0$  и масштаб эффекта коррелируют с данными [6, 7] – факт, позволяющий говорить о качественно правильной трактовке причин отрицательности длины расстояния и механизма селекции во взаимодействии 2D электронов с газовыми атомами. Что касается численного различия в наклонах штриховой и сплошной линии, оно может быть уменьшено дополнительными манипуляциями с граничными условиями на поверхности ячейки Вигнера–Зейтца. Обсуждение этих деталей будет приведено в отдельной работе.

**Резюме.** Обсуждаются детали эффекта давления для оптических переходов в системе 2D электронов на границе твердый водород – газ. Это явление линейно по взаимодействию электрона с газовыми атомами и потому дает информацию о знаке амплитуды рассеяния электрона на отдельном атоме. Эффект

становится наблюдаем, если 2D электронные состояния селективно взаимодействуют с газовой средой. Для относительно мелких 2D электронных уровней на границе двух сред природа селективности требует специальной дискуссии, выходящей за рамки оптического приближения (1). В нашей трактовке обсуждаемая селективность определяется, в основном, разной структурой ячейки Вигнера–Зейтца для электронов вдали от фазовой границы и на ее поверхности. В первом случае речь идет о сферически симметричной конфигурации с отдельным атомом водорода в центре ячейки и минимальной энергией  $W_0(n_g)$  из рис.1. Ячейка вблизи границы в условиях  $\lambda_1 \ll R$  имеет вид цилиндра радиуса  $R_c$  и высоты  $h = z_0 + R_c$  с центральным атомом, расположенным на оси цилиндра в специальной точке  $z_0 = z_0^*$ , где энергия  $W_1(z_0, n_g)$  рис.3 проходит через минимум. Минимальная энергия  $W_1(z_0^*, n_g) = \delta\Delta_1$  ведет себя не так, как  $W(n_g) = \delta\Delta_2$  из рис.1, что обеспечивает, в конечном итоге, разницу энергий  $W(n_g) - W_1(z_0^*, n_g)$ , представленную на рис.4 как разницу частот  $\omega_{21}(n_g)$  (14). Использованный формализм содержит дополнительные возможности улучшения соответствия между теорией и экспериментом, которые будут рассмотрены в более подробной работе.

Авторы благодарны С. В. Иорданскому за обсуждение результатов работы.

Работа частично поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований № 03-02-16121 и Программой Президиума РАН П28.

1. P. Platzman and M. Dykman, *Science* **284**, 1967 (1999).
2. E. Collin, W. Bailey, P. Fazoli et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 245301 (2002).
3. E. Fermi, *Nuovo Cim.* **11**, 157 (1934).
4. E. Amaldi and E. Segre, *Nuovo Cim.* **11**, 145 (1934).
5. H. Margenau and W. Watson, *Rev. Mod. Phys.* **8**, 22 (1936).
6. В. Завьялов, И. Смольянинов, *ЖЭТФ* **92**, 339 (1987).
7. И. Смольянинов, Дисс. канд. физ.-мат. наук, ИФП АН СССР, М., 1989.
8. E. Vogt and G. Wannier, *Phys. Rev.* **95**, 1190 (1954).
9. T. O’Malley, L. Spruch, and L. Rosenberg, *J. of Math. Phys.* **2**, 491 (1961).
10. Б. Смирнов, *Отрицательные ионы*, М.: Атомиздат, 1978.
11. С. Назин, В. Шикин, *Письма в ЖЭТФ* **82**, 255 (2005).
12. T. O’Malley, *Phys. Rev.* **130**, 1020 (1963).
13. *Физический энциклопедический словарь*, М.: Советская Энциклопедия, 1960.
14. C. Grimes, T. Brown, M. Burns, and C. Zipfel, *Phys. Rev. B* **13**, 140 (1976).