

# Квантовая адсорбция атомов на поверхности, индуцированная лазерным светом

А. Е. Афанасьев, П. Н. Мелентьев, В. И. Балыкин

Институт спектроскопии РАН, 142190 Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 19 июня 2007 г.

Предложен и экспериментально реализован метод квантовой адсорбции атомов на поверхности. Загрузка атомов в поверхностную потенциальную яму (адсорбция) происходит за счет потери кинетической энергии при неупругом столкновении двух возбужденных лазерным излучением атомов. Реализация данной схемы производилась на примере нейтральных атомов Rb, адсорбированных на поверхности кристалла YAG. Экспериментально исследована зависимость процесса квантовой адсорбции от частоты лазерного излучения, а также продемонстрирована возможность создания микроструктур произвольной формы из локализованных атомов на поверхности диэлектрика.

PACS: 32.80.Lg, 34.50.Bw, 34.50.Dy, 81.16.Mk

Адсорбция атома (молекулы, кластера) на поверхности – естественный процесс захвата атома (молекулы, кластера) поверхностной потенциальной ямой (взаимодействие Ван-дер-Ваальса, образование химической связи). Вероятность захвата частицы поверхностью определяется как электронным строением частицы и поверхности, так и термодинамикой процесса столкновения частиц с поверхностью. Помимо общефизического интереса к процессу адсорбции частиц на поверхности [1], адсорбция частиц лежит в основе всей индустрии современной микро- и нанoeлектроники, построенной на основе методов молекулярно-лучевой эпитаксии или газовой эпитаксии [2, 3], поэтому контроль и управление элементарными процессами адсорбции частиц на поверхности имеет как фундаментальное, так и большое прикладное значение.

К настоящему времени известно одно предложение по управляемой загрузке атома в поверхностную потенциальную яму. Оно основано на эффекте фотоассоциации атома с поверхностью [4]. Этот процесс аналогичен фотоассоциации атомов, которая заключается в образовании молекулы из двух атомов при поглощении фотона в момент их столкновения. Эффективное “спаривание” атомов светом стало возможным после развития методов лазерного охлаждения атомов, позволивших значительно увеличить фазовую плотность атомных ансамблей [5] (вероятность тройного столкновения атом-атом-фотон пропорциональна фазовой плотности атомов  $\rho\lambda_B^3$ , где  $\rho$  – плотность атомов,  $\lambda_B$  – длина волны де Бройля). Вероятность процесса фотоассоциации частиц может быть также увеличена, если один из партнеров в тройном столкновении имеет макроскопический размер. Та-

кая ситуация возникает при столкновении атома с поверхностью твердого тела в лазерном поле. Скорость фотоассоциации атома с поверхностью может быть на много порядков (в отношении  $S/\lambda_B^2 \gg 1$ , где  $S$  – площадь поверхности, облучаемая светом) выше соответствующей скорости фотоассоциации атома с атомом. Несмотря на это, загрузка атомов в поверхностную потенциальную яму (его адсорбция) на основе эффекта фотоассоциации требует также ультрахолодных атомов, а теоретические оценки показывают, что эффективность процесса не высока [4].

В данной работе мы предлагаем новый механизм загрузки атома в поверхностную потенциальную яму (то есть его адсорбцию) и демонстрируем реализацию данной схемы на примере нейтральных атомов Rb, адсорбированных на поверхности кристалла YAG. Мы также показываем возможность создания микро- и наноструктур произвольной формы из локализованных атомов на поверхности диэлектрика. Предлагаемый механизм загрузки атомов в поверхностную ловушку основан на эффекте “столкновительного переноса энергии на высоковозбужденные уровни” (“the energy-pooling collision”), который заключается в неупругом столкновении двух возбужденных атомов с последующим переходом одного атома в основное состояние, а другого – в высоковозбужденное состояние [6–8]. Дефект внутренней энергии компенсируется за счет кинетической энергии атомов. Если столкновение атомов происходит внутри потенциальной поверхностной ямы, то это может приводить к локализации атома внутри этой ямы.

Рис.1а показывает диаграмму нижних уровней атома Rb. Уровень  $5^2P_{3/2}$  атома Rb заселяется при поглощении лазерного света на длине волны 780 нм.

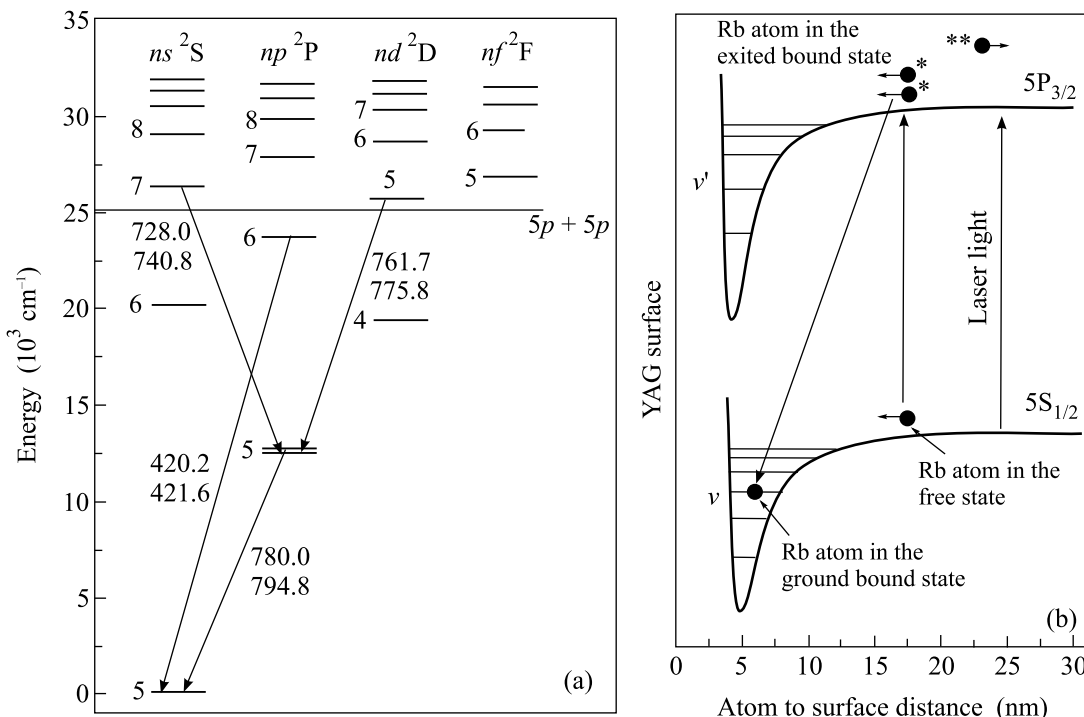
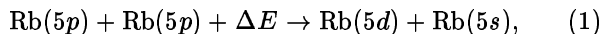


Рис.1. (а) Диаграмма нижних уровней атома Rb. Уровень  $5d$  близок по энергии к энергетической асимптоте  $5p + 5p$  молекулы  $Rb_2$  и, следовательно, он может заселяться при столкновении возбужденных атомов. (б) Потеря кинетической энергии при столкновении двух возбужденных атомов вблизи дна поверхностной потенциальной ямы может приводить к локализации атома в поверхностном потенциале

Уровень  $5d$  близок по энергии к энергетической асимптоте  $5p + 5p$  молекулы  $Rb_2$ , и, следовательно, он может заселяться при столкновении возбужденных атомов в результате процесса переноса энергии на высоковозбужденные уровни (“the energy-pooling collision”):



где  $\Delta E = 93 \text{ K}$  – разница между полной кинетической энергией до и после столкновения атомов (дефект энергии). В результате столкновения (1) двух атомов один из атомов переходит в основное состояние, а другой – в высоковозбужденное состояние  $5d$ . Дефект энергии компенсируется за счет поступательного движения атомов, то есть в процессе (1) кинетическая энергия двух атомов после акта столкновения уменьшается на величину  $93 \text{ K}$ . “Столкновительный процесс переноса энергии” легко наблюдается по голубой флуоресценции, возникающей из-за перехода атома из состояния  $5d$  в состояние  $6p$ , откуда атом распадается в основное состояние с испусканием фотонов на длинах волн  $420.2 \text{ нм}$  и  $421.6 \text{ нм}$  [6–8]. Если столкновение двух возбужденных атомов происходит вблизи дна поверхностной потенциальной ямы, то потеря кинетической энергии при атомном столкнове-

нии может приводить к локализации атома в поверхностном потенциале, то есть его адсорбции, как схематично показано на рис.1б.

В данной работе исследовалась адсорбция атома Rb вблизи поверхности кристалла YAG. Атомно-поверхностный потенциал рассматривается как сумма дальнедействующего притягивающего ван-дер-ваальсовского потенциала и короткодействующего отталкивающего потенциала [9]:

$$V(z) = V_0 \exp[a\psi(\mathbf{R}) - z], \quad (2)$$

где  $\psi(\mathbf{R}) = \psi(G_0, x, y)$  – функция, описывающая поверхностный рельеф (corrugation),  $G_0$  – вектор обратной решетки поверхности (surface reciprocal lattice vector),  $x, y$  – координаты в плоскости поверхности.

Экспериментальная реализация квантовой адсорбции атомов Rb проводилась с использованием сапфировой ячейки с парами атомов Rb. Окна ячейки изготовлены из кристалла YAG. Температура ячейки могла изменяться от комнатной до  $240 \text{ }^\circ\text{C}$ , при этом температура окон ячейки оставалась выше основной части ячейки на  $30 \text{ }^\circ\text{C}$ . При таком режиме нагрева ячейки окна ячейки из кристалла YAG свободны от атомов Rb. Лазерное излучение настраивалось

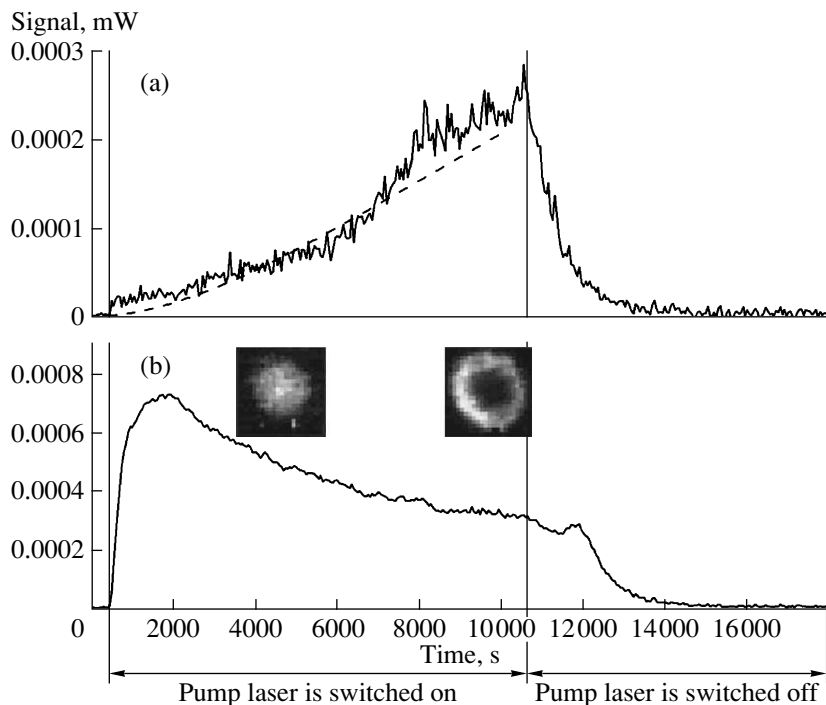


Рис.2. Процесс адсорбции атомов и последующего роста монослоя на поверхности в зависимости от времени облучения ячейки с парами Rb. (а) Режим медленной адсорбции (интенсивность лазерного излучения  $I = 150 \text{ мВт/см}^2$ ); (б) режим быстрой адсорбции атомов (интенсивность лазерного излучения  $I = 1.26 \text{ Вт/см}^2$ )

вблизи резонанса с переходом  $5^2S_{1/2} - 5^2P_{3/2}$  и лазерный луч проходил через ячейку перпендикулярно окнам ячейки. Размер лазерного луча варьировался между 0.5 и 2 мм, максимальная мощность лазерного излучения составляла величину 70 мВт. “Столкновительный процесс переноса энергии” (the energy-pooling process) наблюдался по голубому свечению атомов Rb ( $\lambda = 420.2$  и  $421.6 \text{ нм}$ ) из области лазерного луча в ячейке. Голубое свечение регистрировалось через монохроматор с помощью фотодиода.

Индукцированная лазерным светом адсорбция атомов Rb на поверхности сопровождалась появлением тонкого поверхностного слоя атомов на окне ячейки в месте пересечения лазерным лучом окна ячейки. В настоящее время используются два основных метода диагностики динамики адсорбции атомов на поверхности: а) метод, основанный на дифракции быстрых электронов [10], и б) диагностика поверхности с помощью сканирующего туннельного микроскопа [11]. В силу сложности применения обоих методов в схеме нашего эксперимента, мы использовали иной подход к диагностике адсорбции атомов, основанный на рассеянии некогерентного света адсорбированными на поверхности атомами. Окно ячейки с адсорбированными атомами освещалось параллельным световым пучком, сформированным от лампы накали-

вания, и рассеянное атомами излучение собиралось с помощью линзы на матрицу CCD. Схема позволяла измерять как интегральный рассеянный атомами сигнал, так и получать форму и структуру пятна адсорбированных на поверхности атомов.

Процесс адсорбции атомов и последующего роста монослоя на поверхности состоит из нескольких этапов: 1) адсорбция индивидуальных атомов; 2) диффузия адсорбированных атомов (atoms diffusion) по поверхности; 3) образование центров роста атомных островов на поверхности (nucleation of atoms on surface); 4) рост островов (growth of islands); 5) срастание островов (coalescence of islands); и 6) образование атомного монослоя (finally, appearance of monolayer) [12]. Чувствительность нашего метода регистрации атомов на поверхности по рассеянию света позволяла наблюдать эффекты роста островов и появление монослоя (of the growth of islands and coalescence of islands into monolayer).

Рис.2 иллюстрирует процесс адсорбции атомов и последующего роста монослоя на поверхности в зависимости от времени облучения ячейки с парами Rb: по вертикальной оси отложена интегральная интенсивность рассеянного света от адсорбированных на поверхности атомов Rb, по горизонтальной оси – время облучения ячейки лазерным излучением. Рис.2а соответствует режиму медленной адсорбции, на ко-

тором показано изменение числа адсорбированных атомов при относительно медленной скорости захвата атомов в поверхностном потенциале. Такой режим достигался при использовании невысокой интенсивности лазерного излучения  $I = 150 \text{ мВт/см}^2$ . Начальный участок кривой соответствует первым четырем стадиям роста монослоя: от адсорбции индивидуальных атомов до роста островов. При выключении лазерного излучения в момент  $t = 10^4 \text{ с}$  сигнал начинает уменьшаться из-за процесса тепловой десорбции атомов с поверхности с характерным временем (зависимым от температуры)  $t_d = 10^3 \text{ с}$ .

Рис.2б соответствует режиму быстрой адсорбции атомов, что достигалось увеличением интенсивности лазерного излучения до величины  $I = 1.26 \text{ Вт/см}^2$ . За время  $t_s = 2 \cdot 10^3 \text{ с}$  интенсивность рассеянного света от адсорбированных атомов достигает насыщения. При дальнейшем облучении ячейки с парами атомов Rb лазерным излучением рассеянный сигнал падает из-за перехода процесса адсорбции атомов в режим срастания островов (coalescence of islands) и появления монослоя, которой уже не рассеивает свет, а зеркально отражает его.

Изображение пятна адсорбированных атомов Rb на поверхности состоит из отдельных рассеивающих точек. Вставка на левой стороне рис.2 показывает фото (полученное с помощью ССД) пятна адсорбированных атомов Rb на начальной стадии адсорбции. Пятно образовано отдельными рассеивающими центрами с максимумом рассеивающих центров соответствующему центру лазерного пятна, где интенсивность излучения максимальна и, соответственно, скорость адсорбции максимальна. Вставка на правой стороне того же рисунка показывает фото адсорбированных атомов на более поздней стадии адсорбции атомов и роста монослоя, когда уже происходит перекрытие отдельных островов и образование в центре пятна монослоя атомов, что приводит (из-за уменьшения рассеяния света) к появлению “дырки” в изображении адсорбированного пятна атомов. Монослой отражает зеркально атомы, что приводит к появлению в изображении пятна “дырки” (из-за уменьшения рассеяния света).

Для расчета адсорбции атомов использовалась простая модель скоростных уравнений, описывающих адсорбцию атомов на ее начальной стадии, когда степень покрытия поверхности атомами  $Q \ll 1$  [13]. Скорость адсорбции атомов Rb на поверхности определяется скоростью процесса столкновительного переноса энергии на высоковозбужденные уровни (the energy-pooling process) [6–8]:

$$F = \frac{1}{2} K n_{5p}^2 \Delta R, \quad (3)$$

где  $K$  – скорость данного процесса,  $n_{5p}$  – плотность атомов Rb в возбужденном состоянии  $5p$ ,  $\Delta R$  – характерный размер поверхностного потенциала в перпендикулярном к поверхности направлении. Величина рассеянного света от адсорбированных атомов определялась, исходя из модели рассеяния света на малых по сравнению с длиной волны металлических частицах. Соответствующее сечение рассеяния [14]

$$d\sigma = \frac{\omega^4}{2c^4} V^2 |\alpha|^2 (1 + \cos^2 \vartheta) d\Omega. \quad (4)$$

В скоростных уравнениях использовались соотношение (3) для скорости осаждения атомов на поверхность и соотношение (4) для сечения рассеяния света от адсорбированных атомов. На рис.2а пунктирной кривой показана рассчитанная на основе скоростных уравнений скорость адсорбции атомов. Как видно, характер поведения рассчитанной зависимости хорошо совпадает с экспериментальной кривой.

Мы исследовали также зависимость эффективности процесса квантовой адсорбции от частоты лазерного излучения. Лазерное излучение сканировалось через  $D_2$ -линию поглощения паров атомов Rb в диапазоне  $\Delta\nu = 24 \text{ ГГц}$ . Контроль режима сканирования частоты лазерного излучения осуществлялся по спектру поглощения излучения в дополнительной ячейке с парами атомов Rb, рис.3а. Одновременно при таком сканировании частоты измерялась зависимость флуоресценции от паров Rb в исследуемой ячейке, соответствующей переходу  $6p-5s$  на длине волны  $\lambda = 420 \text{ нм}$  (голубое свечение). Эта зависимость приведена на рис.3б. Характерной особенностью частотной зависимости голубого свечения является уменьшение интенсивности флуоресценции на резонансных частотах. Подавление сигнала флуоресценции и, соответственно, эффективности процесса столкновительного переноса энергии на высоковозбужденные уровни (the energy-pooling process) объясняется девозбуждением атомов на уровне  $5p$  из-за столкновения со стенкой. Известно [15], что при высоких концентрациях атомных паров длина проникновения лазерного излучения в область атомных паров существенно зависит от его частоты. При частотах лазера вблизи резонанса излучение проникает всего лишь на глубину порядка длины волны света  $\lambda$  и девозбуждение возбужденного состояния атомов за счет столкновений со стенкой происходит за характерное время  $t = \lambda/V \sim 1 \text{ нс}$ , что на порядок меньше значения времени спонтанного излучения атома Rb ( $\sim 28 \text{ нс}$ ). При больших отстройках лазерное излучение проникает на большую глубину, создавая в этом

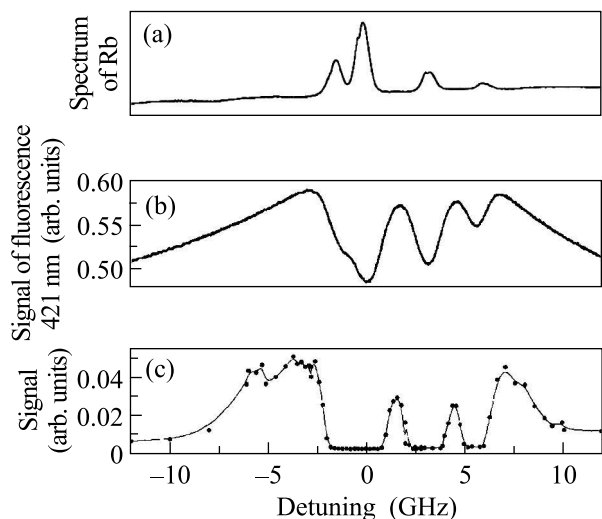


Рис.3. (а) Спектр поглощения излучения в ячейке с парами атомов Rb при комнатной температуре. (b) Зависимость флуоресценции от паров Rb в исследуемой ячейке, соответствующей переходу  $6p-5s$  на длине волны  $\lambda = 420$  нм (голубое свечение), от частоты лазера. (c) Сигнал рассеянного света от адсорбированных на поверхности атомов Rb в зависимости от частоты лазера, характеризующий эффективность загрузки атомов в поверхностный потенциал

случае существенно большую концентрацию возбужденных атомов вблизи поверхности окна ячейки.

На рис.3с приведен сигнал рассеянного света от адсорбированных на поверхности атомов Rb в зависимости от частоты лазера, характеризующий эффективность загрузки атомов в поверхностный потенциал. Измерения проводились при температуре ячейки  $215^\circ\text{C}$ . Температура ячейки в этом измерении подбиралась, исходя из требования достаточно быстрого создания атомной структуры на поверхности (характерное время составляло  $\sim 2$  мин) и, в то же время, достаточно быстрого разрушения структуры из-за тепловой десорбции после выключения лазерного излучения (характерное время жизни структуры  $\sim 10$  мин). Режим данного измерения был следующим: 1) устанавливалась фиксированная частота лазерного излучения; 2) создавалось адсорбированное на поверхность пятно атомов Rb и измерялось количество адсорбированных атомов по рассеянному сигналу; 3) выключалось лазерное излучение и атомное пятно за счет тепловой десорбции разрушалось. Далее измерение повторялось на другой частоте лазера и т.д. Данная зависимость приведена на рис.3с. Из сравнения спектральной зависимости адсорбции атомов (рис.3с) со спектральной зависимостью *energy pooling collisions* (рис.3b) видно, что характер поведения обоих процессов идентичен, что являет-

ся доказательством ответственности “*energy-pooling collisions*” за процесс загрузки атомов в поверхностную потенциальную яму.

Квантовая адсорбция открывает возможность создания атомных микро- и наноструктур заданной геометрии на поверхности диэлектрика. Рис.4 иллюст-

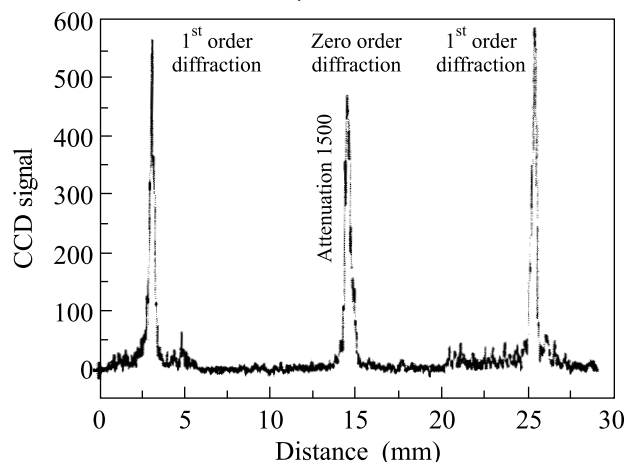
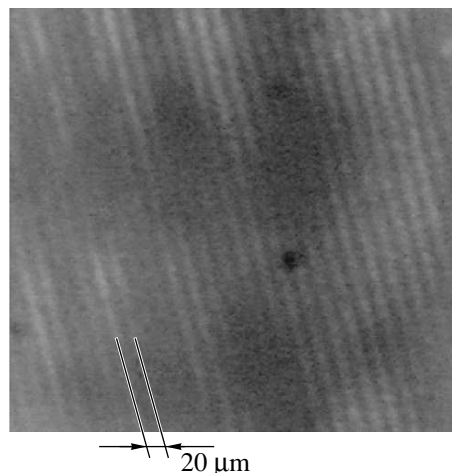


Рис.4. Амплитудная дифракционная решетка из адсорбированных на поверхности атомов Rb и сигнал дифракции зондирующего лазерного излучения

рирует такую возможность на примере создания на поверхности окна ячейки решетки напыленных атомов Rb. Для создания такой атомной решетки пространственный профиль лазерного луча модулировался отражением его от зеркала Френеля. Освещение таким пространственно модулированным лазерным лучом окна ячейки создавало на окне ячейки интерференционную картину максимумов и минимумов интенсивности. Адсорбция атомов на поверхности происходила в местах максимума интенсивности, а области минимума интенсивности оставались свободными от атомов. Таким способом на поверхности окна ячейки была создана регулярная

система атомных полос. Период решетки составлял 20 нм.

Система атомных полос является амплитудной дифракционной решеткой для падающего на него зондирующего лазерного излучения. Следовательно, зондирующий лазерный луч при отражении от созданной атомной структуры будет испытывать дифракцию. На рис.4 показано пространственное распределение интенсивности отраженного от системы атомных полос на поверхности окна ячейки зондирующего лазерного луча, полученное при помощи ССД. Эффективность атомной дифракционной решетки невысока, поэтому для одновременной регистрации трех порядков дифракции сигнал нулевого порядка дифракции уменьшен в 1500 раз при помощи нейтральных фильтров. На графике рис.4 видны, кроме нулевого порядка, также первые дифракционные максимумы.

Отметим, что при использовании лазерного излучения с пространственными нанометровыми размерами [16, 17] появляется возможность создания методом квантовой адсорбции на поверхности атомных наноструктур произвольной формы.

Таким образом в данной работе исследован механизм контролируемой лазерным светом квантовой адсорбции атомов Rb на поверхности кристалла YAG на основе эффекта "the energy-pooling process". Показана возможность построения на основе квантовой адсорбции микроструктур произвольной формы.

Работа выполнена при поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований # 06-02-16301-а, # 06-08-01299-а, # 05-02-16370-а.

В заключение авторы выражают благодарность проф. В.Г. Миногину и проф. В.С. Летохову за полезное обсуждение результатов работы и статьи, группе проф. О. Саркисяна за изготовление ячейки с парами Rb.

1. Z. Zang and M.G. Lagally, *Science* **276**, 377 (1997).
2. Special issue of *Phys. Today*, *Physics of Quantum Electronic Devices*, Ed. F. Capasso, Springer-Verlag, 1990.
3. А.Л. Ацев, *Российские нанотехнологии* **1**, 97 (2006).
4. T. Passerat de Silans, B. Farias, M. Oriá, and M. Chevrollier, *Appl. Phys. B* **82**, 367 (2006).
5. M. Mackie and J. Javanainen, *Phys. Rev. A* **60**, 3174 (1999).
6. Z.J. Jabbour, R.K. Namiotka, J. Huenekens et al., *Phys. Rev. A* **54**, 1372 (1996).
7. L. Barbier and M. Cheret, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **16**, 3213 (1983).
8. T. Ban, D. Aumiler, R. Beuc, and G. Pichler, *Eur. Phys. J. D* **30**, 57 (2004).
9. M. C. Vargas and W. L. Mochau, *Surf. Sci.* **409**, 130 (1998).
10. *Reflection High-Energy Electron Diffraction and Reflection Imaging of Surfaces*, Eds. P.K. Larsen and P. J. Dobson, NATO ASI Series B: Physics: Vol. **188**, Plenum Press, New York, 1987.
11. J. A. Stroschio, D. T. Pierce, and R. A. Dragoset, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3615 (1993).
12. P. Jensen, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 1695 (1999).
13. P. Jensen, H. Larralde, and A. Pimpinelli, *Phys. Rev. B* **55**, 2556 (1997).
14. L. Landau and E. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Medium*, Pergamon, New York, (1975).
15. A. Bambini and S. Geltman, *Phys. Rev. A* **50**, 5081 (1994).
16. V.I. Balykin, V. V. Klimov, and V. S. Letokhov, *OPN* **16**, 33 (2005).
17. V.I. Balykin, V. V. Klimov, and V. S. Letokhov, *Atom Nano-Optics*, in *Handbook of Theoretical and Computational Nanotechnology*, Eds. M. Riech and W. Schommers, Vol. **7**, ASP (2006).