

П.М. ТОМЧУК, В.М. СТАРКОВ

Інститут фізики НАН України, відділ теоретичної фізики  
(Просп. Науки, 46, Київ 03028; e-mail: vjachnikstar@gmail.com)

УДК 537.632.5, 539.219.1

## ЕЛЕКТРОН-ҐРАТКОВИЙ ЕНЕРГООБМІН І ГАРЯЧІ ЕЛЕКТРОНИ В ОСТРІВКОВИХ МЕТАЛЕВИХ ПЛІВКАХ

*В роботі розглядаються завершальні тези теорії автора, яка описує гарячі електрони в острівкових металевих плівках. Детально досліджено, як розмірні залежності електрон-ґраткового енергообміну впливають на електронні температури гарячих електронів при наближенні системи до критичних розмірів. Виявлено високу чутливість електронної температури до розмірів металевої наночастинки в околі критичних значень. Отримано результати обчислювальних експериментів, які підтверджують основні положення теорії.*

*Ключові слова:* тонкі плівки, металеві наночастинки, гарячі електрони, електрон-ґратковий енергообмін, обчислювальний експеримент.

### 1. Вступ

У 1965 році була опублікована стаття [1], в якій повідомлялося про спостереження в золотих і срібних острівкових плівках під дією прикладеного до них електричного поля явищ електролюмінесценції і електронної емісії. Автори спостережень цих явищ отримали диплом на відкриття № 31, який мовою оригіналу поданий в такому формулюванні: “Установлено ранее неизвестное явление, заключающееся в том, что при прохождении электрического тока через тонкие металлические пленки с островной структурой толщиной несколько десятков (от 40 до 60 для золота) ангстрем возникает эмиссионный ток, обусловленный тем, что часть электронов, осуществляющих перенос заряда между металлическими островками в пленке, имеет компоненту скорости, нормальную к поверхности пленки”. (Приоритет от 26 июня 1963 г.) Десь приблизно в 1965 році керівник авторів роботи [1] П.Г. Борзяк звернувся до П.М. Томчука з проханням розробити теорію експериментально спостережуваних явищ в острівкових металевих плівках. Отримані П.М. Томчуком результати відрізнялися від інтерпретації авторів відкриття. А саме, вони зводились до того, що тунельний струм розігріває електрони (вони стають “гарячими”). (Варто відзначити, що крім розігріву тунельним струмом гарячі електрони в острівкових

плівках можна отримати лазерним опромінюванням). А вже гарячі електрони, не пружно тунелюючи і не пружно відбиваючись від потенціальних бар’єрів, зумовлюють світіння плівки. Крім того, гарячі електрони зумовлюють електронну емісію (річардсонівська емісія гарячих електронів). Якщо прийняти концепцію гарячих електронів, то крім вже згаданих явищ має також спостерігатися нелінійна вольт-амперна характеристика. Обґрунтування концепції гарячих електронів і нелінійності вольт-амперних характеристик в острівкових металевих плівках дано в опублікованих в 1966 році роботах [2, 3].

Ще одним наслідком наявності гарячих електронів є те, що такі явища, як електронна і фотонна емісія можуть спостерігатись незалежно від способу отримання гарячих електронів (розігрів електронів струмом чи лазерним опроміненням). Зокрема, емісія гарячих електронів із острівкових металевих плівок під дією лазерного опромінення спостерігалась колективом авторів в роботах [4, 5]. Таким чином, теорія гарячих електронів в острівкових металевих плівках пояснювала електронну і фотонну емісію (незалежно від способу розігріву електронів), а також виникнення нелінійних вольт-амперних характеристик. Не ясним залишається тільки питання: чому гарячі електрони можна отримати в стаціонарних (квазістаціонарних) умовах і при порівняно низьких електричних полях (або низьких інтенсивностях опромінення)

© П.М. ТОМЧУК, В.М. СТАРКОВ, 2020

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2020. Т. 65, № 11

973

тільки в острівкових металевих плівках і не вдається в суцільних плівках і масивних металах?

Гарячі електрони суцільних металевих плівках і масивних металах можна отримати тільки при опроміненні їх потужними ультракороткими лазерними імпульсами, тобто в імпульсному режимі.

Щоб розібратись в тому, яке відношення острівкова структура металеві плівки має до проблеми появи гарячих електронів, розглянемо рівняння, яке визначає температуру гарячих електронів:

$$\frac{\partial}{\partial t} (C_e T_e) + \alpha(T_e - T) = W, \quad (1)$$

де  $C_e$  – теплоємність електронного газу,  $T_e$  – його температура,  $T$  – температура ґратки,  $\alpha$  – стала електрон-ґраткового енергообміну,  $W$  – енергія, яка вводиться в одиницю об'єму і одиницю часу у металевий острівок. Зауважимо, що у випадку розмірів острівка, значно більших довжини вільного пробігу електрона, в (1) потрібно ще додати градієнтну складову. Крім того, коли тепловий контакт металевого острівка з підкладкою не достатній, то ґратка острівка також розігрівається і потрібно записати ще рівняння для її визначення. Оскільки, як побачимо, особливості розігріву електронів в малих острівках пов'язані в основному з електрон-ґратковим енергообміном, то відмічені вище можливі уточнення будуть для нас неістотними.

В стаціонарному випадку із (1) отримуємо:

$$T_e - T = W/\alpha. \quad (2)$$

Отже, бачимо, що при заданій потужності  $W$  електронна температура  $T_e$  буде тим вище, чим менш інтенсивний електрон-ґратковий енергообмін (менша стала  $\alpha$ ).

Відомо, що в масивному металі [6] основним механізмом релаксації гарячих електронів являється генерація електронами, згідно з механізмом Черенкова, акустичних мод. В малих металевих острівках (завдяки дискретному характеру акустичних мод) черенковський механізм електрон-ґраткового енергообміну істотно модифікується і при певних розмірах острівків може зовсім зникати. А це означає, що згідно з (1) розігрів електронів в острівковій плівці може відбуватися при значно менших потужностях, що вводяться, чим в масивних металах і без термічної руйнації.

## 2. Генерація акустичних мод гарячими електронами

При класичному опису електрон-ґраткового енергообміну вихідним може служити рівняння руху для вектора зміщень ґратки  $\mathbf{u}(\mathbf{R}, t)$ , пов'язаних з поздовжніми акустичними коливаннями ґратки, які генеруються електроном, що рухається по траєкторії  $\mathbf{r}_0(t)$ :

$$\frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} - s^2 \Delta \mathbf{u} = -\frac{\Lambda}{\rho} \nabla \delta(\mathbf{r}_0(t) - \mathbf{R}). \quad (3)$$

В (3)  $s$  – швидкість поздовжнього звуку,  $\rho$  – густина,  $\Lambda$  – енергетична константа деформаційного потенціалу. Вивід (3) з перших принципів можна знайти, наприклад, в [7]. Затрати енергії електроном на генерацію звуку можна обчислити як роботу сили, яка діє зі сторони електрона на середовище:

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} = \frac{\Lambda}{\rho} \int \frac{\partial \mathbf{u}(\mathbf{R}, t)}{\partial t} \nabla \delta(\mathbf{r}_0(t) - \mathbf{R}) d\mathbf{R}. \quad (4)$$

Відмінність випадку металеві наночастинки від випадку масивного металу полягає в тому, що траєкторія електрона замість прямолінійного рівномірного руху у випадку об'ємного металу ( $\mathbf{r}_0(t) = \mathbf{v}t$ ,  $\mathbf{v}$  – швидкість) стає осциляційною (електрон рухається від однієї потенціальної стінки до протилежної і назад). Якщо напрямку руху електрона прийняти за вісь  $OZ$ , то траєкторію електрона можна представити у вигляді

$$\mathbf{r}_0(t) = \{0, 0, z_0(t)\}, \quad (5)$$

$$z_0(t) = \begin{cases} vt, & \text{при } t < \tau/2, \\ L - vt, & \text{при } t \geq \tau/2, \end{cases}$$

де  $\tau = 2L/v$  – період осциляції електрона;  $L$  – відстань між потенційними стінками.

У випадку необмеженого металу для компоненти Фур'є вектора зміщень із (3) отримуємо:

$$\mathbf{u}_{\mathbf{q}} = \frac{i\Lambda}{\rho} \mathbf{q} \frac{e^{-i(\omega t - \mathbf{q}\mathbf{R})}}{\omega^2 - q^2 s^2}; \quad \omega = \mathbf{q}\mathbf{v}. \quad (6)$$

Полос в (6) при  $\omega = qs$  дає основний внесок в визначені величини вектора зміщень (механізм Черенкова), а, значить, основний внесок в електрон-ґратковий енергообмін. Із умови резонансу  $\omega = qs$  для компоненти хвильового вектора вздовж напрямку швидкості електрона ( $q_{||}$ ) отримуємо

$$q_{||} = \frac{s}{v} q. \quad (7)$$

Оскільки  $s \ll v$  (для типових металів  $s \sim 10^5$  см/сек,  $v \sim 10^8$  см/сек), то з (7) бачимо, що звук генерується електроном в основному в напрямку, перпендикулярному до руху електрона ( $q_{\parallel} \ll q_{\perp}$ ).

Крім того, із (7) можна зрозуміти, як зміниться ситуація у випадку обмежених систем. Для обмежених систем мінімальне значення  $q_{\parallel}$  не може бути меншим від  $q_{\parallel}^{\min} = 2\pi/L$ . З іншого боку, права частина рівності (7) не може бути більшою від  $s q_{\text{D}}/v \equiv \omega_{\text{D}}/v$  ( $q_{\text{D}}$  – хвильовий вектор Дебая,  $\omega_{\text{D}}$  – частота Дебая).

А тому при умові, що:

$$2\pi/L \geq \omega_{\text{D}}/v, \quad (8)$$

резонанс (ні при яких дозволених значеннях  $q$ ) стає не можливим і механізм Черенкова для таких розмірів більше не діє.

Займемось далі обмеженими системами. Щоб мати справу з скаляром, а не вектором зробимо заміну:

$$\mathbf{u} = \nabla \chi. \quad (9)$$

Враховуючи осциляційний характер руху електрона вздовж осі  $OZ$  (5), запишемо  $\chi(\mathbf{R}, t)$  у вигляді розкладу в ряд Фур'є по  $R_{\parallel}$  і інтеграл Фур'є по  $\mathbf{R}_{\perp}$  (деталі див. [8, 9]):

$$\begin{aligned} \chi(\mathbf{R}_{\perp}, R_{\parallel}; t) &= \\ &= \sum_{l=-\infty}^{\infty} \int d\mathbf{q}_{\perp} \tilde{\chi}(\mathbf{q}_{\perp}, q_{\parallel}^l; t) e^{i(\mathbf{q}_{\perp} \mathbf{R}_{\perp} + q_{\parallel}^l R_{\parallel})}, \end{aligned} \quad (10)$$

де

$$q_{\parallel}^l = 2\pi l/L; \quad l = 1, 2, 3, \dots \quad (11)$$

Ми використали тут умову циклічності:

$$\chi(\mathbf{R}_{\perp}, R_{\parallel}; t) = \chi(\mathbf{R}_{\perp}, R_{\parallel} + L; t). \quad (12)$$

Підставляючи розклад (10) у (3), отримуємо рівняння для знаходження вигляду  $\tilde{\chi}(\mathbf{q}_{\perp}, q_{\parallel}^l; t)$ :

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\chi}(\mathbf{q}_{\perp}, q_{\parallel}^l; t) + q^2 s^2 \tilde{\chi}(\mathbf{q}_{\perp}, q_{\parallel}^l; t) = \frac{\Lambda}{\rho} \frac{e^{i q_{\parallel}^l z_0(t)}}{(2\pi)^2}, \quad (13)$$

де  $q^2 = q_{\perp}^2 + (q_{\parallel}^l)^2$ .

Отже, для визначення вигляду  $\tilde{\chi}(\mathbf{q}_{\perp}, q_{\parallel}^l; t)$  ми отримали рівняння осцилятора (з частотою

$\omega = qs$ ), на який діє з боку електрона періодична сила. Підставляючи розв'язок (13) у (10), ми отримуємо вигляд  $\chi(\mathbf{R}_{\perp}, R_{\parallel}; t)$ . Знаючи  $\chi(\mathbf{R}_{\perp}, R_{\parallel}; t)$ , ми у відповідності з (9) знаємо також вектор зміщення  $\mathbf{u}(\mathbf{R}, t)$ . А далі у відповідності з (4) знаходимо енергію, яку електрон затрачує на генерацію звуку (деталі розрахунку можна знайти в [8, 9]). Для дійсного значення  $\partial \xi / \partial t$  отримуємо [8, 9]:

$$\text{Re} \left( \frac{\partial \xi}{\partial t} \right) = \frac{\Lambda^2 q_{\text{max}}^2}{16 \pi \rho v} G(L, v). \quad (14)$$

В (14)  $q_{\text{max}}$  – максимальне значення хвильового вектора акустичної моди:

$$q_{\text{max}} = \begin{cases} q_{\text{D}}, & \text{при } q_{\text{D}} < 2 k_{\text{F}}, \\ 2 k_{\text{F}}, & \text{при } q_{\text{D}} > 2 k_{\text{F}}, \end{cases} \quad (15)$$

$k_{\text{F}}$  – хвильовий вектор Фермі.

Далі будемо вважати  $q_{\text{max}} = q_{\text{D}}$ . Крім того, в (14) ми ввели позначення:

$$G(L, v) = \begin{cases} (l_{\text{max}}/\eta)^4 (1 + l_{\text{max}}^{-1})^2, & \text{при } \eta \geq 1, \\ 0, & \eta < 1. \end{cases} \quad (16)$$

В (16)

$$l_{\text{max}} = \text{floor}(\eta). \quad (17)$$

Функція  $\text{floor}(\eta)$  приймає найбільше ціле число, яке менше або дорівнює даному числу  $\eta$ :

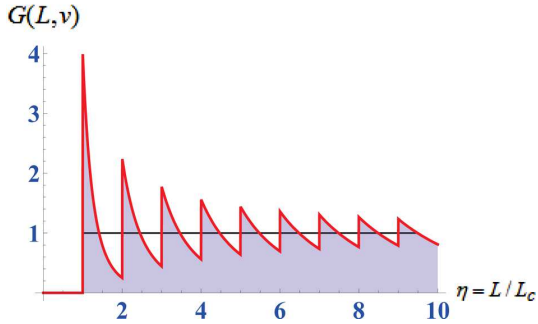
$$\eta \equiv L/L_c = \frac{L}{2\pi} \frac{q_{\text{D}}}{[(v/s)^2 - 1]^{1/2}} \approx L \frac{q_{\text{D}}}{2\pi v} s. \quad (18)$$

Отже,

$$l_{\text{max}} = \text{floor}(L/L_c); \quad L_c = \frac{2\pi v}{q_{\text{D}} s}. \quad (19)$$

Вираз  $G(L, v)$  квазіперіодично залежить від  $\eta = L/L_c$  (рис. 1).

Поява кожного нового піка на кривій  $G(L, v)$  пов'язано з включенням в електрон-ґратковий енергообмін нової акустичної моди. (Резонанс зовнішньої сили з власною акустичною модою; див. (13)). Як бачимо із (16), при  $L < L_c$  об'ємний електрон-ґратковий енергообмін зникає ( $G(L, v) = 0$ ) і залишається тільки слабший поверхневий енергообмін [10]. Вираз (14) визначає енергію, яку електрон, що рухається зі швидкістю  $v$  передає в одиницю часу ґратці. Щоб отримати внесок в



**Рис. 1.** Квазіперіодична залежність  $G(L, v)$  від  $\eta = L/L_c$  ( $\text{Re}\left(\frac{\partial \xi}{\partial t}\right) = \frac{\Lambda^2 q_{\text{D}}^2}{16 \pi \rho v} G(L, v)$ )

електрон-гратковий енергообмін від всіх електронів (в діапазоні енергій, який дозволяє принцип Паулі) в об’ємі  $V$  потрібно знайти величину:

$$Q(L, \theta_e) = V \int_{\mu - \theta_e}^{\mu + \theta_e} d\varepsilon \left\{ 2g(\varepsilon) f_0(\varepsilon) \text{Re} \left( \frac{\partial \xi}{\partial t} \right) \right\}. \quad (20)$$

В (20)  $g(\varepsilon)$  – густина станів:

$$g(\varepsilon) = \frac{\sqrt{2} m^{3/2}}{\pi^2 \hbar^3} \sqrt{\varepsilon}, \quad (21)$$

$\varepsilon$  – енергія електрона,  $\mu$  – хімічний потенціал,  $\theta_e$  – електронна температура (в енергетичних одиницях),  $f_0(\varepsilon)$  – функція Фермі:

$$f_0(\varepsilon) = \left[ \exp \left( \frac{\varepsilon - \mu}{\theta_e} \right) + 1 \right]^{-1}. \quad (22)$$

Вираз (20) визначає енергію, яку в одиницю часу затрачують гарячі електрони, що знаходяться в об’ємі  $V$ , на генерацію звукових коливань ґратки. Але крім генерації звукових коливань електрони також поглинають звук. В термодинамічній рівновазі енергія, яка йде на генерацію звуку, дорівнює енергії, яку електрони отримують від поглинання звуку. Тому з врахуванням обох ефектів (генерація і поглинання звуку) в баланс енергій, з якого визначається електронна температура (типу (2)) повинно входити не  $Q(L, \theta_e)$ , а різниця  $[Q(L, \theta_e) - Q(L, \theta)]$ , де  $\theta$  – температура ґратки.

Зробимо тепер в (20) заміну змінних:  $u = (\varepsilon - \mu)/\theta_e$ . Із (20) і (14) отримуємо:

$$Q(L, \theta_e) = \theta_e \frac{m^2 \Lambda^2}{2(2\pi \hbar)^3} \frac{V}{\rho} q_{\text{D}}^4 \int_{-1}^1 du f_0(u) G(L, \theta_e; u). \quad (23)$$

В (23)  $G(L, \theta_e; u)$  співпадає з  $G(L, v)$ , в якому покладено  $v = v_{\text{F}}(1 + \theta_e u/\mu)^{1/2}$  ( $v_{\text{F}}$  – швидкість Фермі). Отже, в  $G(L, \theta_e; u)$  величина  $\eta$  тепер дорівнює:

$$\eta = (1 + \theta_e u/\mu)^{-1/2} L/L_{\text{F}}, \quad (24)$$

де

$$L_{\text{F}} \equiv \frac{2\pi v_{\text{F}}}{q_{\text{D}} s}. \quad (25)$$

Оскільки  $\theta_e \ll 1$ , то здавалось би величина  $\eta$ , а значить і  $G(L, u)$ , повинні слабо залежати від  $u$  і цією залежністю можна нехтувати. Це дійсно так, поки величина  $L/L_{\text{F}}$  не приймає цілочисленні (або досить близькі до них) значення.

Цілочисленні значення  $L/L_{\text{F}}$  відповідають умові резонансу сили, яка діє зі сторони електрона (осцилюючого між потенціальними стінками) на “акустичний осцилятор” (див. (13)). В умовах резонансу (або близько до нього) можна завдяки дії  $\theta_e$  як ввійти, так і вийти із резонансу. Тому залежність від  $\theta_e$  в цих умовах стає істотною.

Тепер замість теплового балансу (2), який визначав у стаціонарних умовах електронну температуру, будемо мати рівняння:

$$Q(L, \theta_e) - Q(L, \theta) = VW, \quad (26)$$

де

$$Q(L, \theta_e) = V \alpha \theta_e \int_{-1}^1 du f_0(u) G(L, \theta_e; u), \quad (27)$$

$$\alpha \equiv \frac{m^2 \Lambda^2}{2(2\pi \hbar)^3} \frac{q_{\text{D}}^4}{\rho}. \quad (28)$$

При  $L \rightarrow \infty$ , як легко бачити із (16),  $G(L, \theta_e; u) \rightarrow 1$ , і ми отримуємо замість (27) відомий вираз [6]:

$$\frac{m^2 \Lambda^2}{2(2\pi \hbar)^3} \frac{q_{\text{D}}^4}{\rho} (\theta_e - \theta) = W. \quad (29)$$

### 3. Електрон-гратковий енергообмін

Із (16) бачимо, що

$$G(L, v) = 0, \text{ при } L/L_c < 1. \quad (30)$$

Це означає, що основний в масивному металі канал електрон-граткового енергообміну зникає в малих металевих кластерах, коли розмір  $L$  цих кластерів такий, що:

$$L < L_c \approx L_{\text{F}} = \frac{2\pi v_{\text{F}}}{q_{\text{D}} s}. \quad (31)$$

Умову (31) можна ще переписати у вигляді

$$\omega_D < 2\pi v_F / L. \quad (32)$$

Нерівність (32) можна інтерпретувати таким чином. За умови осциляцій електрона між потенціальними стінками з частотою вище максимальної частоти коливань ґратки  $\omega_D$  електрон перестає генерувати звукові коливання ґратки, а значить, цей механізм релаксації гарячих електронів перестає діяти. В дію вступають менш інтенсивні механізми релаксації, пов'язані з розсіянням електронів на поверхні кластера [11].

Різким ослабленням електрон-ґраткового енергообміну за умови (31) (або у формі (32)) пояснюється факт появи гарячих електронів в стаціонарному режимі і при відносно малих потужностях, введених в наночастинку. Цим пояснюється також факт відсутності подібних ефектів у суцільних плівках і масивних металах. В масивних металах і суцільних плівках завдяки інтенсивному електрон-ґратковому енергообміну термічне руйнування ґратки настає раніше, ніж електронна температура встигає істотно "відірватись" від температури ґратки. Отримати в цих матеріалах гарячі електрони і уникнути термічної руйнації ґратки вдається тільки за допомогою використання ультракоротких потужних лазерних імпульсів.

Вернемось до рівняння балансу, яке визначає електронну температуру. Отже, із (26) і (27) маємо:

$$\int_{-1}^1 du f_0(u) [\theta_e G(L, \theta_e; u) - \theta G(L, \theta; u)] = W / \alpha. \quad (33)$$

Наша задача в цій роботі – детально дослідити особливості розмірної залежності електрон-ґраткового енергообміну біля критичних розмірів (критичного розміру) і вивчити, як ці особливості позначаються на електронній температурі  $\theta_e$ .

Доцільно зробити одне зауваження. Згідно з (28) і (29) енергія, яка передається від електронів до ґратки, лінійно залежить від  $\theta_e$ . При збільшенні введеної в наночастинку потужності  $W$  ця залежність може стати нелінійною. (Зокрема така нелінійність може виникнути при розігріві крім електронів також і ґратки). Ця нелінійність автоматично позначиться на нелінійній залежності  $\theta_e$  від  $W$ . Ми обмежимось розглядом тільки нелінійності,

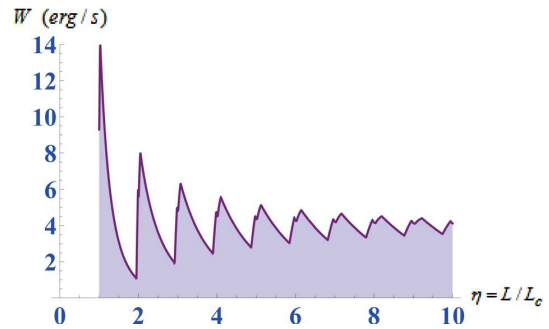


Рис. 2. Залежність потужності  $W$ , яка забезпечує появу електронної температури ( $\theta_e/\theta = 5$ ), від розмірів наночастинки  $\eta = L/L_c$

зумовленою розмірними особливостями електрон-ґраткового енергообміну для розмірів наночастинки  $L$ , близьких до критичних  $L_c$ . Варто також наголосити, що в певних ситуаціях (наприклад, при одночасному розігріві електронів і ґратки) саме введена в наночастинку потужність може явно залежати від електронної температури.

Після цих зауважень приступимо до обговорення результатів. На рис. 2 показано зв'язок введеної в наночастинку потужності  $W$  і розміру наночастинки  $\eta = L/L_c$  при фіксованому значенні електронної температури ( $\theta_e/\theta = 5$ ).

На рис. 2 наглядно проілюстровано той факт, що введена в наночастинку потужність  $W$ , яка забезпечує появу даної електронної температури  $\theta_e$ , різко залежить від розмірів наночастинки.

Як вже відзначалось вище при  $L < L_c$  черенковський механізм електрон-ґраткового енергообміну взагалі перестає діяти. З ростом  $L$  (вже при  $L \geq L_c$ ) цей механізм вступає в дію квазіперіодичним чином. Кожний раз, коли в процес енергообміну вступає нова група акустичних хвиль із поздовжньою (по відношенню до швидкості електрона) компонентою хвильового вектора  $q_{||}$  виникають піки в інтенсивності електрон-ґраткового енергообміну. Вже тільки ця причина зумовлює широкий набір електронних температур в острівцевих плівках з дисперсією розмірів і форм. А ще додатковий внесок у розподіл електронних температур по наночастинках може вносити явна залежність  $W$  від  $\theta_e$ .

На рис. 3 показана залежність електронної температури від введеної в наночастинку потужності при різних, але близьких до критичного  $L_c$  роз-

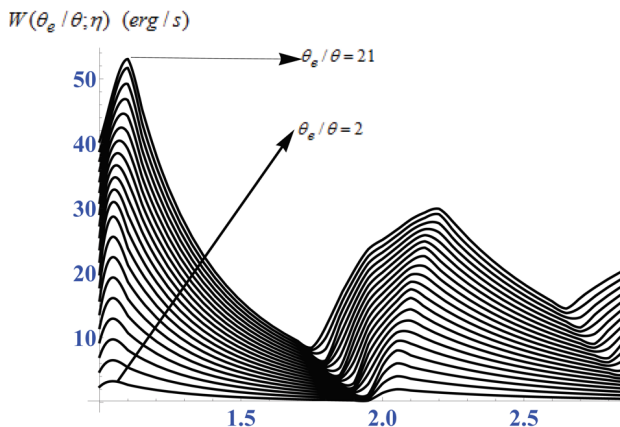


Рис. 3. Потрібна потужність  $W(\theta_e/\theta; \eta)$  для отримання однакої (фіксованої) температури гарячих електронів  $(\theta_e/\theta)$  в наночастинках різних розмірів

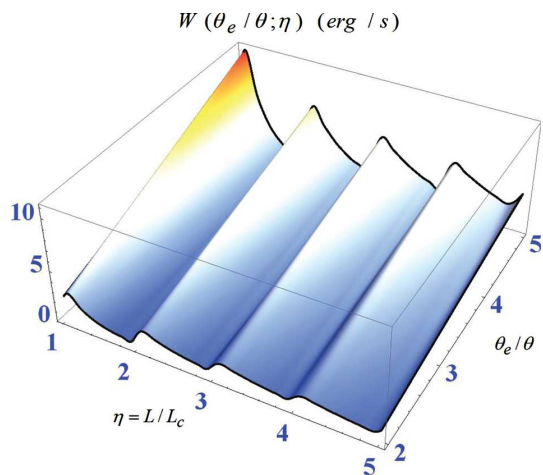


Рис. 4. Зв'язок введеної в наночастинку потужності з електронною температурою при різних розмірах наночастинки

мірах наночастинки ( $2 \leq \theta_e/\theta \leq 21$ ;  $\Delta\theta_e/\theta = 1$ ). Бачимо високу чутливість електронної температури до розміру біля критичного значення  $L_c$ . При одній і тій самій введеної в металеву наночастинку потужності  $W$ , але дещо відмінних між собою розмірах наночастинки електронні температури можуть (біля критичного розміру) істотно відрізнятися. Чутливість до розміру наночастинки залишається також, але значно слабшою і при розмірах, кратних критичному розміру  $L_c$ .

На рис. 3 показано, яка потрібна потужність  $W$ , щоб отримати однакою (фіксовану) температуру гарячих електронів  $\theta$  в наночастинках різних розмірів. Криві на рис. 3 відрізняються різними зна-

ченнями  $\theta/\theta_0$ . Як бачимо, при розмірах наночастинок, близьких до критичного, для отримання однакої температури електронів потрібно вводити в наночастинки різних розмірів істотно різні потужності.

На рис. 4 показана просторова (тривимірна) картина зв'язку введеної в наночастинку потужності з електронною температурою при різних розмірах наночастинки.

Можливість отримання гарячих електронів (для певних розмірів) при відносно низьких потужностях пояснює той факт, чому в стаціонарному режимі гарячі електрони вдається отримати тільки в острівцевих плівках і не вдається ні в суцільних плівках, ні в масивних металах. Завдяки інтенсивному електрон-гратковому енергообміну в суцільних плівках і масивних металах термічна руйнація матеріалу настає раніше, ніж електронна температура встигає "відірватися" від температури ґратки. Тому в цих матеріалах отримати гарячі електрони і одночасно уникнути термічної руйнації можна тільки з використанням коротких і потужних лазерних імпульсів. В острівцевих же металевих плівках з широкою дисперсією розмірів, які використовувались зокрема в експериментах [1], завжди знаходились металеві острівки з розмірами, близькими (або рівними) до критичних. В цих острівках інтенсивність електрон-граткового енергообміну була мінімальною, а значить, електронна температура досягалась при мінімальній потужності. При таких відносно низьких потужностях температура ґратки острівка легко було стабілізувати на значеннях, далеких від температури руйнації плівки.

В роботах [8,9] було показано, що черенковський механізм (генерації звуку електронами), котрий являється основним каналом релаксації гарячих електронів в масивних металах, перестає діяти в металевих наночастинках при їх розмірах, менших певного критичного значення. При цьому зменшення інтенсивності електрон-граткового енергообміну при зменшенні розміру частинки і наближенні його до критичного відбувається не плавно, а квазіперіодичним чином.

В цій роботі ми досліджуємо, як розмірні залежності електрон-граткового енергообміну впливають при наближенні до критичних розмірів на електронні температури гарячих електронів. Продемонстрована висока чутливість електронної темпе-

ратури до розмірів в околиці критичних розмірів. Розмірна залежність електронної температури відчувається також (але значно слабше) при розмірах наночастинки, кратних критичному розміру.

Широка дисперсія металевих острівків в диспергованих плівках [1] зумовлює широкий розкид електронних температур в різних острівках і тим самим забезпечує різнокольорове світіння плівки (при пропусканні по ній струму).

Вище ми детально розглянули розмірну залежність електрон-ґраткового енергообміну біля критичного розміру металеві наночастинки. Якщо розмір наночастинки не співпадає з критичним розміром  $L_c$  при зміні швидкості електрона в межах

$$(1 - \theta_e/\mu)^{1/2} \leq v/v_F \leq (1 + \theta_e/\mu)^{1/2},$$

то в формулі (27) можна винести  $G(L, \theta_e; u)$  за знак інтеграла (при  $u = 0$ ), що фактично означає покласти  $L_c \approx L_F$ , і тоді із (26) отримуємо аналітичну розмірну залежність:

$$\theta_e \approx \theta + \frac{W}{\alpha} \left(\frac{L}{L_F}\right)^4 / \left(\text{floor}\left(\frac{L}{L_F}\right)\right)^2 \left\{1 + \text{floor}\left(\frac{L}{L_F}\right)\right\}^2. \quad (34)$$

Із (34) при  $L \gg L_F$  отримуємо відомий результат:

$$\theta_e \approx \theta + W/\alpha. \quad (35)$$

#### 4. Висновки

Результати обчислювальних експериментів підтверджують фундаментальні положення теорії гарячих електронів в острівкових металевих плівках (розробник П.М. Томчук зі співавторами [2, 3, 7–16]).

Поява гарячих електронів в острівкових металевих плівках при відносно малих потужностях, що вводяться, зумовлено особливостями енергообміну в цих об'єктах. В масивному металі основним каналом релаксації нерівноважних електронів служить черенковський механізм генерації звуку. В острівкових металевих плівках цей механізм модифікується завдяки зміні форми траєкторії руху електрона (від прямолінійної в масивному металі до осциляційної в наночастинках). При цьому при певних розмірах металеві наночастинки різко падає інтенсивність електрон-ґраткового енергообміну. Ця обставина сприяє появі гарячих електронів.

Розмірні залежності енергообміну проявляють себе в електронній температурі, а вже остання проявляється в різних фізичних явищах (наприклад, електронна і фотонна емісія).

У цій роботі нами розглянуто генерацію електронами звуку і пов'язаних з цим явищ в середині металевих наночастинок. Гарячі електрони цих частинок можуть генерувати звук в діелектричній матриці, в якій вони знаходяться. Цим явищам присвячені, наприклад, роботи [15–17].

1. P.G. Borzjak, O.G. Sarbej, R.D. Fedorovits. Neue Erscheinungen in sehr diinnen Metallschichten. *Phys. Status Solidi* **8**, 55 (1965).
2. П.М. Томчук, Р.Д. Федорович. Эмиссия горячих электронов из тонких металлических пленок. *ФТТ* **8**, № 2, 276 (1966).
3. П.М. Томчук, Р.Д. Федорович. Проводимость тонких металлических пленок островковой структуры. *ФТТ* **8**, № 10, 3131 (1966).
4. А.А. Бендицкий, Л.В. Ведута, В.И. Конов. Исследование взаимодействия лазерного ИК излучения с островковыми металлическими пленками в растровом электронном микроскопе. *Поверхность. Физика, химия, механика* **10**, 48 (1988).
5. A. Gloskovskii, D.A. Valdaitsev, M. Cinchetti *et al.* Electron emission from films of Ag and Au nanoparticles excited by a femtosecond pump – probe Laser. *Phys. Rev. B* **77**, 195427 (2008).
6. М.И. Каганов, И.М. Лифшиц, Л.В. Танатаров. Релаксация между электронами и решеткой. *ЖЭТФ* **31**, № 2, 232 (1956).
7. R.D. Fedorovich, A.G. Naumovets, P.M. Tomchuk. Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles. *Phys. Rep.* **328** (2–3), 73 (2000).
8. P.M. Tomchuk, Y.D. Bilotsky. New peculiarity in the temperature and size dependence of electron-lattice energy exchange in metal nanoparticles. *Int. J. Modern Phys. B* **28** (31), 1450220 (2014).
9. Y.D. Bilotsky, P.M. Tomchuk. Size effect in electron-lattice energy exchange in small metal particles. *Surf. Sci.* **600** (20), 4702 (2006).
10. Y.D. Bilotsky, P.M. Tomchuk. Peculiarity of electron-phonon energy exchange in metal nanoparticles and thin films. *Surf. Sci.* **602** (1), 383 (2008).
11. Y. D. Belotsky, P.M. Tomchuk. Surface electron-phonon energy exchange in small metallic particles. *Int. J. Electr.* **73** (5), 955 (1992).
12. P.M. Tomchuk. Light radiation from disperse metal films under the influence of a current. *Ukr. J. Phys.* **24** (2), 182 (1979).
13. П.М. Томчук. Электронная эмиссия из островковых металлических пленок под действием лазерного инфра-

- красного излучения (теория). *Изв. АН СССР, сер. физ.-мат. науки*. **52** (7), 1434 (1988).
14. P.M. Tomchuk. Optoacoustic effect in the systems of island metal – film on a dielectric, metal impurities in dielectric. *Ukr. J. Phys.* **38**, 1174 (1993).
15. Y. Bilotsky, N.I. Grigorchuk, P.M. Tomchuk. Hot electrons and laser optoacoustic in metal nanoparticles. *Surf. Sci.* **603**, 3267 (2009).
16. Y. Bilotsky, N. Grigorchuk, P. Tomchuk, M. Gasik. Thermoacoustic phenomena in metal nanoparticle systems generated by an ultrashort laser pulse. *J. of Physics* **214**, 012050 (2010).
17. A. Arbouet, C. Voisin, D. Christofilos *et al.* Electron-phonon scattering in metalclusters. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 177401 (2003).

Одержано 31.10.19

P.M. Tomchuk, V.N. Starkov

ELECTRON-LATTICE ENERGY  
EXCHANGE AND HOT ELECTRONS  
IN METAL ISLAND FILMS

S u m m a r y

Some aspects of the theory of hot electrons in metal island films have been considered. In particular, the influence of the electron-lattice energy exchange, which depends on the system size and on the electronic temperatures of hot electrons is analyzed in detail in the case where the system size approaches its critical value. A high sensitivity of the electronic temperature to the metal-nanoparticle size in a vicinity of this critical value is revealed. The results of computational experiments are presented which confirm the basic concepts of the theory.