

09

Поглощение света на электронных и позитронных состояниях в квазиульмерных наносистемах

© С.И. Покутний

Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины
03680 Киев, Украина
email: Pokutnyi_Sergey@inbox.ru

(Поступило в Редакцию 21 ноября 2012 г.)

Развита теория взаимодействия электромагнитного поля с одночастичными электронными и позитронными кулоновскими состояниями, возникающими в нанопорах полупроводников. В рамках дипольного приближения установлено, что силы осцилляторов переходов, а также дипольные моменты переходов для одночастичных электронных и позитронных состояний в нанопорах принимают гигантские значения, существенно превосходящие типичные значения соответствующих величин для полупроводников.

Введение

Оптические свойства квазиульмерных наноструктур, состоящих из полупроводниковых, диэлектрических и металлических наночастиц сферической формы с радиусами $a \approx 1-10^2$ nm, синтезированных в полупроводниковых диэлектрических и металлических матрицах, в настоящее время интенсивно исследуются [1-3]. Исследования вызваны тем, что такие квазиульмерные наноструктуры являются новыми перспективными наноматериалами для создания новых элементов нанооптоэлектроники (в частности, в качестве активной области инжекционных полупроводниковых нанолазеров [1,2,4], а также новых сильно поглощающих наноматериалов [5-7]).

В [8-11] экспериментально установлено, что в нанопорах радиусами $a \cong (10-30)$ nm пористого кремния существуют электронные и позитронные состояния. Особое внимание уделяется исследованиям оптических свойств пористого кремния, что обусловлено его уникальными фотолюминесцентными свойствами, способностью эффективно излучать свет в видимом или близком инфракрасном диапазонах при комнатных температурах [2,8-12].

Взаимодействие электромагнитного поля с одночастичными локализованными состояниями носителей заряда, возникающими вблизи сферической поверхности раздела (наночастица-матрица) [13,14], исследовалось в [5-7]. Показано, что локализация носителей заряда на сферической поверхности и в объеме наночастиц имела различное проявление размерной и частотной зависимостей в поглощении и рассеянии света. Это обстоятельство открывало новые возможности спектроскопических исследований таких локализованных состояний в наносистемах [5-7,13,14].

Поскольку отсутствуют исследования по теории поглощения и рассеяния света на внутренних поверхностных кулоновских состояниях в наносистемах, то, чтобы заполнить пробел, в настоящей работе развита теория взаимодействия электромагнитного поля с кулоновскими состояниями носителей заряда, возникающими в наносистемах на внутренней поверхности нанопор [13,14].

1. Силы осцилляторов и дипольные моменты переходов в наносистемах

Рассмотрим простую модель квазиульмерной системы: нейтральную сферическую диэлектрическую наночастицу радиуса a с диэлектрической проницаемостью (ДП) ϵ_2 , окруженную средой с ДП ϵ_1 (причем относительная ДП $\epsilon = (\epsilon_2/\epsilon_1) \ll 1$). В объеме наночастицы движется квазичастица (позитрон, электрон) с эффективной массой $m_{p(e)}$ [13,14]. То обстоятельство, что все характерные размеры задачи $a, b_{p(e)}$ значительно больше межатомных расстояний a_0 , позволяет рассматривать движение квазичастиц в наночастице в приближении эффективной массы [15]. Здесь величина

$$b_{p(e)} = 6\beta^{-1}\alpha_{p(e)} \quad (1)$$

является средним расстоянием квазичастицы, локализованной над плоской поверхностью раздела в основном состоянии [13], параметр

$$\beta = (\epsilon_1 - \epsilon_2)/(\epsilon_1 + \epsilon_2), \quad (2)$$

$\alpha_{p(e)} = (\epsilon_2 \hbar^2 / m_{p(e)} e^2)$ — боровский радиус квазичастицы в среде с ДП ϵ_2 , e — заряд электрона.

В [13] исследован энергетический спектр внутренних поверхностных состояний квазичастицы, возникающих в диэлектрической наночастице (при $\epsilon \ll 1$), и его зависимость от радиуса a наночастицы в условиях, когда поляризационное взаимодействие носителя заряда со сферической поверхностью раздела двух сред играет доминирующую роль. Показано, что спектр внутренних поверхностных состояний квазичастицы с ростом радиуса a наночастицы, так что

$$S = (a/b_{p(e)}) \gg n^2, \quad (3)$$

переходит в спектр кулоновского вида

$$E_{nl}(S) = -\frac{9}{4n^2} + \frac{L^2}{S^2}, \quad (4)$$

где n, l — главное и орбитальное квантовые числа, $L^2 = l(l+1)$. Здесь используются единицы энергии $(Ry/36) = (\hbar^2/2m_{p(e)}b_{p(e)}^2)$.

В области частот $\omega_{nl}(S) = (E_{nl}(S)/\hbar)$, соответствующих кулоновским состояниям (n, l) (4) носителей заряда в наночастице радиуса S (3), длина световой волны намного превышает размеры этих состояний ($\approx a_{p(e)}$ (1)). Поэтому поведение таких кулоновских состояний в электромагнитном поле хорошо описывается дипольным приближением [5–7]. При этом оператор дипольного момента для носителей заряда, находящегося в наночастице имеет вид [16]

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \mathcal{L}e\mathbf{r}, \quad \mathcal{L} = (3\varepsilon_1/(2\varepsilon_1 + \varepsilon_2)), \quad (5)$$

где \mathbf{r} — радиус-вектор, определяющий расстояние носителя заряда к центру наночастицы.

Для оценки величины дипольного момента $D_{1s}^{2p}(S)$ достаточно рассмотреть переход между нижайшими кулоновскими состояниями (4), например, между основным $|1s\rangle = (n=1, l=0)$ и $|2p\rangle = (n=2, l=1)$ кулоновскими состояниями. Переход между такими состояниями разрешен правилами отбора в кулоновском поле (при этом главное квантовое число n изменяется произвольно, а орбитальное квантовое число l меняется на единицу) [17].

Используя (5), запишем выражение для дипольного момента перехода

$$D_{1s}^{2p}(S) = e\mathcal{L}\langle 1s|r|2p\rangle, \quad (6)$$

в наночастицах, радиусы S которых удовлетворяют неравенству (3). В формуле (6) $|1s\rangle$ и $|2p\rangle$ являются волновыми функциями кулоновских состояний $1s$ и $2p$ соответственно [17]:

$$|1s\rangle = \pi^{-1/2} \left(\frac{2\alpha}{3\beta b} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{2}{3} \cdot \frac{Sa}{\beta}(1-x)\right), \quad (7)$$

$$|2p\rangle = \frac{\cos\Theta}{3 \cdot 2^{3/2}\pi^{1/2}} \cdot \frac{S\alpha}{\beta} \left(\frac{2}{3} \cdot \frac{\alpha}{\beta b} \right)^{3/2} \times (1-x) \exp\left(-\frac{1}{3} \cdot \frac{Sa}{\beta}(1-x)\right). \quad (8)$$

Здесь параметр

$$\alpha = \frac{9}{4} \left(\frac{m_0}{m_{p(e)}} \right), \quad (9)$$

где m_0 — масса электрона в вакууме, переменная $x = (r/a)$, Θ — азимутальный угол квазичастицы. Интегрируя (6) с учетом формул (7) и (8), получим выражение для дипольного момента перехода

$$D_{1s}^{2p}(S) = \frac{2^{13/2}}{3^4} \cdot \frac{\mathcal{L}}{\alpha} \left[1 - \frac{1}{24} \left((\alpha S)^4 + 4(\alpha S)^3 + 12(\alpha S)^2 + 24(\alpha S) + 24 \right) \exp(-\alpha S) \right] e b_{p(e)}. \quad (10)$$

Сила осциллятора перехода носителя заряда с эффективной массой $m_{p(e)}$ из основного состояния $1s$ в состояние $2p$ принимает вид [5,6]

$$f_{1s}^{2p}(a) = \frac{2m_{p(e)}}{\hbar e^2} [\omega_{2,1}(a) - \omega_{1,0}(a)] \left| D_{1s}^{2p} \right|^2, \quad (11)$$

где $\hbar\omega_{2,1}(a) = E_{2,1}(a)$ и $\hbar\omega_{1,0}(a) = E_{1,0}(a)$ — энергии кулоновских уровней $2p$ и $1s$ соответственно. С учетом формул (4) и (10) сила осциллятора перехода (11) запишется в таком виде

$$f_{1s}^{2p}(s) = \frac{2^{14}}{3^8} \cdot \frac{\mathcal{L}^2}{\alpha^2} \left(\frac{27}{32} + \frac{1}{S^2} \right) \left[1 - \frac{1}{24} \left((\alpha S)^4 + 4(\alpha S)^3 + 12(\alpha S)^2 + 24(\alpha S) + 24 \right) \exp(-\alpha S) \right]^2. \quad (12)$$

Поскольку переход $|1s\rangle \rightarrow |2p\rangle$ между кулоновскими состояниями (4) происходит в наночастицах большого радиуса S (при этом радиус S удовлетворяет условию (3)), то это дает возможность в формулах (10) и (12) в первом приближении по параметру

$$(\alpha S)^{-1} \ll 1, \quad (13)$$

пренебречь зависимостью от радиуса S наночастицы. В результате формулы (10) и (12) принимают такой вид

$$D_{1s}^{2p} \approx 2^{13/2} \cdot 3^{-4} \mathcal{L} \alpha^{-1} e b_{p(e)}, \quad (14)$$

$$f_{1s}^{2p} \approx 2^9 \cdot 3^{-5} \mathcal{L}^2 \alpha^{-2}. \quad (15)$$

2. Поглощение и рассеяние света на кулоновских состояниях наночастиц

Сечение поглощения света на сферической наночастице радиусом a можно выразить через ее поляризуемость $A''(\omega, a)$ [18]:

$$\sigma_{abs}(\omega, a) = 4\pi(\omega/c)A''(\omega, a), \quad (16)$$

где ω — частота внешнего электромагнитного поля, c — скорость света в вакууме. При температурах

$$T < (E_b/k), \quad (17)$$

меньших энергий связи

$$E_b = |E_{nl}(S \rightarrow \infty)| \approx (8.51 \cdot 10^{-1}) n^{-2} \text{ (eV)} \quad (18)$$

кулоновских состояний (n, l) (4) (где k — постоянная Больцмана), поляризуемость заряженной наночастицы может быть найдена, если рассматривать наночастицу как один гигантский ион [5,6]. Основной вклад при этом в поляризуемость $A''(\omega, a)$ вносят переходы в дискретном спектре таких кулоновских состояний [5,6]. Выделяя в $A''(\omega, a)$ вклад лишь одного резонансного члена, соответствующего переходу между основным $1s$ и $2p$ кулоновскими состояниями, поляризуемость $A''(\omega, a)$ наночастицы запишем в таком виде [5–7]

$$A''(\omega, a) = \frac{e^2}{m_{p(e)}} \cdot \frac{f_{1s}^{2p}}{\omega_{2,1}^2(a) - \omega^2 - i\omega\Gamma_{2,1}(a)}, \quad (19)$$

где $\Gamma_{2,1}(a)$ — ширина кулоновского $2p$ -уровня.

Параметры связанных состояний позитронов и электронов, локализованных внутри нанопор с ДП ε_2 в матрице кремния с ДП ε_1

Матрица (ε_1)	Нанопоры (ε_2)	\mathcal{L}	$(m_{p(e)}/m_0)$	α	β	$b,$ (\AA)	D_{1s}^{2p} (D_0)	f_{1s}^{2p} (10^{-1})	A'' (10^{-24}cm^3)	σ_{abs} (10^{-24}cm^2)
Si (11.7)	(1)	1.44	1.0	2.25	0.84	3.77	2.7	8.67	$2.35 \cdot 10^3$	$2.96 \cdot 10^7$

Примечание. $a = (15-30) \text{ nm}$ — радиус наночастицы, $m_{p(e)}$ — эффективная масса позитрона (электрона), $(\omega/\omega_{2,1})^2 = 10^{-2}$, f_{1s}^{2p} — сила осциллятора перехода, D_{1s}^{2p} — дипольный момент перехода, выраженный в единицах ($D_0 = e \text{\AA}$) [Дебай], A'' — поляризуемость наночастицы, σ_{abs} — сечение поглощения света наночастицей.

В предположении, что частота световой волны ω находится вдали от резонансной частоты $\omega_{2,1}(a)$ (4) кулоновского состояния $2p$, а также что уширение $\Gamma_{2,1}(a)$ уровня $2p$ мало, т.е. $(\Gamma_{2,1}(a)/\omega_{2,1}(a)) \ll 1$ [19], для качественной оценки поляризуемости $A''(\omega, a)$ (19) наночастицы с учетом (4) получим выражение

$$A''(\omega) \approx (2^7 \cdot 3^{-1}) \varepsilon_2 \beta^{-1} f_{1s}^{2p} b_{p(e)}^3. \quad (20)$$

Запишем выражение для сечения упругого рассеяния электромагнитной волны частоты ω на диэлектрической наночастице радиуса S (3), 13 [5–7]

$$\sigma_{sc}(\omega) = 2^7 \cdot 3^{-1} \pi^3 (\omega/c)^4 |A''(\omega)|^2. \quad (21)$$

3. Сравнение теории с экспериментами

Экспериментально установлено, что в пористом кремнии, содержащем нанопоры радиусами $a \approx (10-30) \text{ nm}$, в нанопорах существуют локализованные состояния электронов [8,9] и позитронов [10,11]. Исследования изучаемых здесь внутренних поверхностных кулоновских состояний квазичастиц (электронов и позитронов) [8–11], локализованных в сферических нанопорах радиусами a (3), (13), находящихся в пористом кремнии, возможны в процессах поглощения (и излучения) на переходах $(n'l') \rightarrow (n, l)$ с частотами $\omega_{n,l}^{n',l'}(a) = |E_{n',l'}(a) - E_{n,l}(a)|/\hbar$, которые, согласно формулам (4) и (18), расположены в инфракрасной области спектра.

Проведем оценки сечений поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (16) и рассеяния $\sigma_{sc}(\omega, a)$ (21) света на вышеуказанных кулоновских состояниях позитрона [14], а также (13) в нанопорах кремния в случае выделенного перехода ($|1s\rangle \rightarrow |2p\rangle$) в условиях экспериментов [8–11].

В таблице приведены оценки силы осциллятора перехода f_{1s}^{2p} (15), дипольного момента перехода D_{1s}^{2p} (14), поляризуемости $A''(\omega, a)$ (20), сечение поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (16) световой волны с частотой ω (при этом отношение $(\omega/\omega_{2,1}(a))^2 = 10^{-2}$, а частота волны ω лежит в инфракрасной области) на вышеуказанных кулоновских состояниях позитрона и электрона, возникающих в нанопорах кремния. Если учесть (таблица), что сила осциллятора перехода $f_{1s}^{2p} \approx 0.87$, а вместе

с ней и дипольный момент перехода $D_{1s}^{2p} \approx 2.7D_0$ (где $D_0 = e \text{\AA}$ — [Дебай]) в нанопорах кремния радиусами $a \approx (10-30) \text{ nm}$ принимают гигантские значения (на два порядка превосходящие типичные значения сил осцилляторов и дипольных моментов переходов для полупроводников A_3B_5 [1–3,20]), а дипольные переходы в электромагнитном поле между ближайшими кулоновскими уровнями $E_{nl}(a)$ (4) в нанопорах разрешены правилами отбора с изменением (или сохранением) главного квантового числа n и с изменением орбитального квантового числа l на единицу [5–7], то, очевидно, что изучаемые нами квазинульмерные наносистемы являются сильно нелинейными наноструктурами для инфракрасного излучения.

Из оценок, приведенных в таблице, следует, что величина сечения поглощения света в нанопорах радиусами $a \approx (10-30) \text{ nm}$ достигает гигантских значений $\sigma_{abs}(\omega, a) \approx 10^{-17} \text{ cm}^2$. При этом $\sigma_{abs}(\omega, a)$ на семь порядков превышает типичные значения атомных сечений поглощения [21]. Поскольку значение сечения рассеяния света $\sigma_{sc}(\omega, a)$ (21) по сравнению с соответствующим значением сечения поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (16) в условиях экспериментов [8–11] пренебрежимо мало ($(\sigma_{sc}/\sigma_{abs}) \approx 10^{-12}$), то значение $\sigma_{sc}(\omega, a)$ не внесено в таблицу.

В настоящей работе в рамках дипольного приближения показано, что силы осцилляторов переходов, а также дипольные моменты переходов для одночастичных позитронных и электронных кулоновских состояний, возникающих в сферических нанопорах полупроводников, принимают гигантские значения, существенно превосходящие (на два порядка) типичные значения соответствующих величин для полупроводников. Установлено, что гигантские значения сечения поглощения света в изучаемых наносистемах дают возможность использовать такие наносистемы в качестве сильно поглощающих наноматериалов в широкой области инфракрасных волн, длина которых может широко варьировать в зависимости от природы контактирующих материалов.

Список литературы

- [1] Алфёров Ж.И. // ФТП. 1998. Т. 32. Вып. 1. С. 3–11.
- [2] Алфёров Ж.И. // УФН. 2003. Т. 172. Вып. 9. С. 1068–1074.

- [3] *Ekimov A., Nache F.* // J. Opt. Amer. B. 2003. Vol. 20. P. 100–108.
- [4] *Rokutnyi S.I.* // Phys. Lett A. 2005. Vol. 342. N 5,6. P. 347–352.
- [5] *Покутний С.И.* // ФТП. 1997. Т. 39. Вып. 4. С. 606–702.
- [6] *Покутний С.И.* // ФТП. 1997. Т. 39. Вып. 4. С. 720–728.
- [7] *Покутний С.И.* // ФТП. 2006. Т. 40. Вып. 2. С. 223–231.
- [8] *Коята Н.* // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 93. N 5. P. 2410–2418.
- [9] *Лисаченко М.Ч., Константинова Е.А., Тимошенко В.Ю.* // ФТП. 2002. Т. 36. Вып. 3. С. 344–352.
- [10] *Shaefer H.-E.* // Positron Annihilation. Singapore: World St. Publ. Co, 1999. 284 p.
- [11] *Shaefer H.-E.* // Nanostruct. Mater. 1999. Vol. 6. P. 869–878.
- [12] *Корбутяк Д.В., Крюченко Ю.В.* // ФТП. 2006. Т. 40. Вып. 1. С. 98–104.
- [13] *Efremov N.A., Rokutnyi S.I.* // Phys. Stat. Sol. B. 1991. Vol. 165. P. 109–120.
- [14] *Shpak A.P., Polutnyi S.I.* // Metalophys. 2007. Vol. 29. P. 225–241.
- [15] *Эфрос Ал.Л., Эфрос Ал.Л.* // ФТП. 1982. Т. 16. Вып. 7. С. 1209–1216.
- [16] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 620 с.
- [17] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Квантовая механика. М.: Наука, 1974. 752 с.
- [18] *Гайтлер В.* Квантовая теория излучения. М.: Мир, 1956. 432 с.
- [19] *Efremov N.A., Rokutnyi S.I.* // Phys. Stat. Sol. B. 1992. Vol. 172. P. 573–601.
- [20] *Уханов Ю.И.* Оптические свойства полупроводников. М.: Наука, 1977. 282 с.
- [21] *Ашкрофт Н., Мермин Н.* Физика твердого тела. М.: Мир, 1979. 312 с.