

КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫЙ ЭКСИТОН В КВАЗИНУЛЬМЕРНЫХ СТРУКТУРАХ

© С.И.Покутний

Украинский государственный морской технический университет,
327025 Николаев, Украина
(Поступила в Редакцию 5 марта 1996 г.)

Вариационным методом получен спектр экситона в малом полупроводниковом микрокристалле как функция радиуса микрокристалла. Установлен пороговый характер возникновения объемного экситона в малом микрокристалле и определено значение критического радиуса микрокристалла, начиная с которого в микрокристалле может образоваться объемный экситон.

В настоящее время интенсивно исследуются оптические свойства квазинульмерных структур, представляющих собой полупроводниковые микрокристаллы (ПМ) сферической формы с радиусом $a \sim 1-10^2$ nm, выращенные в прозрачных диэлектрических матрицах [1,2]. Такие исследования вызваны тем, что подобные гетерофазные системы являются перспективными материалами для создания новых элементов нелинейной оптоэлектроники (в частности, элементов для управления оптическими сигналами).

В рамках адиабатического приближения ($m_e \ll m_h$, где m_e и m_h — эффективные массы электрона и дырки в ПМ) с учетом в гамильтониане экситона кулоновского взаимодействия между электроном и дыркой, а также поляризационного взаимодействия электрона и дырки с поверхностью ПМ и при использовании только первого порядка теории возмущений на электронных волновых функциях сферической потенциальной ямы бесконечной глубины в [3,4] был получен спектр экситона в малом ПМ как функция радиуса ПМ a . В [5,6] было найдено значение критического размера ПМ a_c , начиная с которого в ПМ радиусом $a \geq a_c$ возникал объемный экситон. Под объемным экситоном в ПМ подразумевался экситон, структура которого (приведенная эффективная масса, боровский радиус, энергия связи) в ПМ не отличалась от таковой структуры экситона в неограниченном полупроводниковом материале.

В настоящей работе, не ограниченной рамками адиабатического приближения [3,4], вариационным методом найден спектр экситона в малом ПМ. Как функция радиуса ПМ a , отношения эффективных масс электрона и дырки (m_e/m_h) и относительной диэлектрической проницаемости (ДП) ϵ .

1. Гамильтониан экситона в малом микрокристалле

Рассмотрим простую модель квазиульмерной структуры: нейтральный сферический ПМ радиуса a с ДП ε_2 , окруженный средой с ДП ε_1 . В объеме такого ПМ двигались электрон e и дырка h с эффективными массами m_e и m_h (r_1 и r_2 — расстояния электрона и дырки от центра ПМ), причем ДП микрокристалла и матрицы имели сильное отличие (относительная ДП $\varepsilon = (\varepsilon_2/\varepsilon_1) \gg 1$). Предполагалось также, что зоны электронов и дырок имели параболическую форму.

В изучаемой модели в рамках вышеизложенных приближений, а также в приближении эффективной массы, если использовать систему триангулярных координат $^{[7,8]}$ $r_1 = |\mathbf{r}_1|$, $r_2 = |\mathbf{r}_2|$, $r = |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$ с началом в центре ПМ, гамильтониан экситона имеет вид

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \left(\frac{\partial^2}{\partial r_1^2} + \frac{2}{r_1} \frac{\partial}{\partial r_1} + \frac{r_1^2 - r_2^2 + r^2}{r_1 r} \frac{\partial^2}{\partial r_1 \partial r} \right) -$$

$$-\frac{\hbar^2}{2m_h} \left(\frac{\partial^2}{\partial r_2^2} + \frac{2}{r_2} \frac{\partial}{\partial r_2} + \frac{r_2^2 - r_1^2 + r^2}{r_2 r} \frac{\partial^2}{\partial r_2 \partial r} \right) - \frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) + V_{eh}(r) +$$

$$+ V_{ee'}(r_1, a) + V_{hh'}(r_2, a) + V_{eh'}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, a) + V_{he'}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, a) + V(r_1, r_2) + E_g, \quad (1)$$

$$V_{ee'} = \frac{e^2}{2\varepsilon_2 a} \left(\frac{a^2}{a^2 - r_1^2} + \varepsilon \right),$$

$$V_{hh'} = \frac{e^2}{2\varepsilon_2 a} \left(\frac{a^2}{a^2 - r_2^2} + \varepsilon \right),$$

$$V_{eh'} = V_{he'} = -\frac{e^2}{2\varepsilon_2 a} \frac{a}{|\mathbf{r}_1 - (a/r_2)^2 \mathbf{r}_2|},$$

$$V_{eh} = -\frac{e^2}{\varepsilon_2 r}, \quad V(r_1, r_2) = \begin{cases} 0, & r_1, r_2 \leq a, \\ \infty, & r_1, r_2 > a. \end{cases} \quad (2)$$

В гамильтониане экситона H (1) V_{eh} — энергия кулоновского взаимодействия электрона с дыркой, $V_{ee'}$ и $V_{hh'}$ — энергии взаимодействия с собственными изображениями для электрона и дырки, $V_{eh'}$ и $V_{he'}$ — их энергии взаимодействия с «чужими» изображениями, E_g — ширина запрещенной зоны в неограниченном полупроводнике с ДП ε_2 , $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$ — приведенная эффективная масса экситона. Выражения для членов (2) были получены в $^{[9]}$ при $\varepsilon \gg 1$.

2. Вариационный расчет спектра экситона в малом микрокристалле

Для возникновения в ПМ радиуса a объемного экситона необходимо, чтобы размер такого ПМ был больше некоторого критического размера a_c , начиная с которого в ПМ может образоваться объемный экситон. Поясним качественно существование критического радиуса ПМ a_c . В неограниченном полупроводниковом материале экситон большого радиуса возникает вследствие кулоновского притяжения V_{eh}

между электроном и дыркой. В гамильтониан (1) экситона, движущегося в объеме малого ПМ, кроме кулоновского притяжения V_{eh} (2) входят также члены $V_{ee'}$, $V_{hh'}$ и $V_{eh'}$, $V_{he'}$, описывающие соответственно взаимодействие электрона и дырки со своим и «чужим» изображением. При этом члены $V_{ee'}$ и $V_{hh'}$ вызывают отталкивание электрона и дырки от поверхности ПМ, что приводит к эффективному притяжению между квазичастицами. Взаимодействия, описываемые членами $V_{eh'}$, $V_{he'}$, приводят к притяжению квазичастиц к поверхности ПМ, что вызывает отталкивание между электроном и дыркой. При этом члены $V_{hh'}$ и $V_{ee'}$, ответственные за притяжение между квазичастицами, будут преобладать над членами $V_{eh'}$, $V_{he'}$, ответственными за отталкивание между электроном и дыркой.

В результате во взаимодействие между электроном и дыркой в малом ПМ помимо кулоновского притяжения V_{eh} (2) между ними будет также вносить вклад некоторое дополнительное эффективное притяжение между электроном и дыркой, вызванное отталкиванием электрона $V_{ee'}$ и дырки $V_{hh'}$ от собственных изображений. С уменьшением радиуса ПМ $a \lesssim a_{ex}$ (где $a_{ex} = \varepsilon_2 \hbar^2 / \mu e^2$ — боровский радиус экситона в полупроводнике с ДП ε_2) величина такого дополнительного притяжения между электроном и дыркой будет расти $\sim a^{-1}$. Такое эффективное поляризационное притяжение приводит к тому, что движущиеся в ПМ электрон и дырка будут локализованными в объеме ПМ с эффективной массой $\mu = \mu(a)$, большей, чем значение массы экситона μ_0 в неограниченном полупроводниковом материале с ДП ε_2 . Следовательно, объемный экситон с эффективной массой μ_0 не может образоваться в ПМ с размером $a \lesssim a_{ex}$.

Таким образом, объемный экситон будет возникать только в ПМ размером $a > a_{ex}$. Причем образование такого объемного экситона носит пороговый характер и возможно лишь в ПМ, размер которого a превышает значение некоторого критического радиуса ПМ a_c . При этом с ростом радиуса ПМ $a > a_{ex}$ эффективное притяжение между электроном и дыркой будет уменьшаться $\sim a^{-1}$. Начиная с некоторого радиуса ПМ a , равного a_c , энергия такого эффективного притяжения между электроном и дыркой становится малой по сравнению с энергией связи экситона $E_b = \hbar^2 / 2\mu a_{ex}^2$.

При выборе вариационной волновой функции экситона в малом ПМ используем подход, аналогичный подходу, развитому в [8,10,11]. Вариационную волновую функцию основного состояния экситона ($1s$ -состояния электрона в $1s$ -состояния дырки) в малом ПМ запишем в виде

$$\Psi_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r) = A \exp\left(-\gamma(a) \frac{r}{a_{ex}}\right) \frac{\sin(\pi r_1/a)}{r_1} \frac{\sin(\pi r_2/a)}{r_2} \times \\ \times \frac{(a^2 - r_1^2)(a^2 - r_2^2)}{a^2} \frac{r}{a} \frac{|\mathbf{r}_1 - (a/r_2)^2 \mathbf{r}_2|}{a}. \quad (3)$$

Здесь коэффициент A определяется из условия нормировки волновой функции экситона (3)

$$\int_0^a r_1 dr_1 \int_0^a r_2 dr_2 \int_r^{r_1+r_2} \Psi_0^2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r) r dr = 1,$$

$a, \text{Å}$	$\gamma(a)$
50	0.86
60	0.90
70	0.93
87	0.95

а $\gamma(a)$ является вариационным параметром. При $a \ll a_{ex}$ энергия размерного квантования электрона в ПМ ($\sim \hbar^2/2m_e a^2$) будет велика по сравнению с энергией кулоновского взаимодействия V_{eh} (2) электрона и дырки и энергиями поляризационного взаимодействия $V_{ee'}$, $V_{hh'}$, $V_{he'}$, $V_{eh'}$ (2) электрона и дырки с поверхностью ПМ, которые по порядку величины равны $e^2/\epsilon_2 a$. Поэтому кулоновским и поляризационным взаимодействиями в первом приближении можно пренебречь. В этом случае основной вклад в гамильтониан экситона (1) в малом ПМ вносит кинетическая энергия невзаимодействующих электрона и дырки, а в вариационную волновую функцию экситона (3) входят волновые функции невзаимодействующих электрона и дырки в сферической потенциальной яме бесконечной глубины. С ростом радиуса ПМ a ($a \geq a_c > a_{ex}$) в ПМ возникает объемный экситон [5,6]. Это обстоятельство приводит к тому, что вариационная волновая функция экситона (3) содержит в себе собственную волновую функцию экситона Ванье-Мотта. Кроме того, в вариационную функцию экситона (3) входят полиномы от r_1 и r_2 , дающие возможность получить выражение для функционала $E_0(a, \gamma(a))$ основного состояния экситона в малом ПМ в конечном аналитическом виде.

Для определения вариационным методом энергии основного состояния экситона $E_0(a)$ в малом ПМ радиуса a запишем среднее значение гамильтониана (1) экситона на волновых функциях (3) в следующем виде:

$$E_0(a, \gamma(a)) = \langle \Psi_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r) | H | \Psi_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r) \rangle = \int_0^a dr_1 \int_0^a dr_2 \int_r^{r_1+r_2} dr r r_1 r_2 r \Psi_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r) H \Psi_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, r). \quad (4)$$

Расчет зависимости энергетического спектра $E_0(a)$ основного состояния экситона от радиуса малого ПМ a получим путем минимизации функционала $E_0(a, \gamma(a))$ (4)

$$\frac{\partial E_0(a, \gamma(a))}{\partial \gamma(a)} \equiv F(\gamma(a), a) = 0. \quad (5)$$

Не выписывая здесь громоздких выражений для первой производной функционала $\partial E_0(a, \gamma(a))/\partial \gamma(a) \equiv F(\gamma(a), a)$, приведем численное решение уравнения $F(\gamma(a), a) = 0$ (5) в таблице. Из таблицы следует, что решением этого уравнения является функция $\gamma(a)$, которая монотонно слабо меняется в пределах

$$0.86 \leq \gamma(a) \leq 0.95 \quad (6)$$

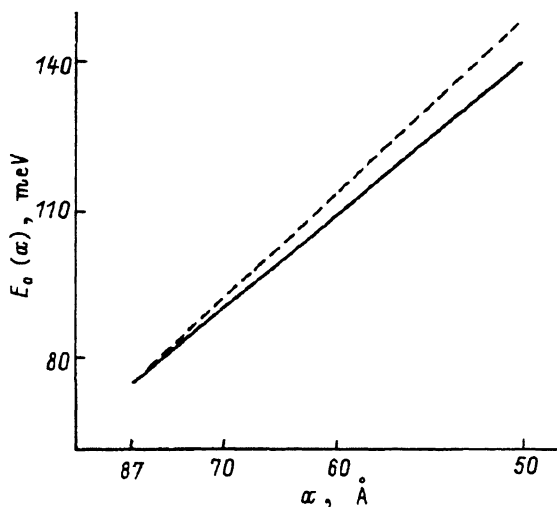
при изменении размера малого ПМ a в области

$$50 \leq a \leq 87 \text{ \AA}. \quad (7)$$

Подставляя значения вариационного параметра $\gamma(a)$ (6), взятые из таблицы, одновременно с соответствующими значениями радиуса ПМ a из интервала (7) в функционал $E_0(a, \gamma(a))$ (4), получим энергию основного состояния экситона $E_0(a)$ как функцию размера малого ПМ a . Результаты вариационного расчета спектра экситона $E_0(a)$ (4) в малом ПМ радиуса a показаны на рисунке. Значение функции $\gamma(a)$ (6) и результаты вариационного расчета энергетического спектра экситона $E_0(a)$ (4) в малом ПМ, радиус которого определялся неравенством (7), были здесь получены в условиях экспериментов [1,2], когда значения эффективных масс электрона m_e и экситона μ в малом ПМ сульфида кадмия равнялись соответствующим значениям эффективных масс электрона ($m_e = m_e^0 = 0.205m_0$) и экситона ($\mu = \mu_0 = 0.197m_0$) в неограниченном сульфиде кадмия (дырка в сульфиде кадмия ($m_h/m_e \approx 25$) является тяжелой, поэтому будем считать, что ее эффективная масса m_h в малом ПМ будет неизменной).

Экспериментальная зависимость положения экситонных линий поглощения ПМ сульфида кадмия размером $a \lesssim 3 \cdot 10^2 \text{ \AA}$ ($\epsilon_2 = 9.3$), диспергированных в прозрачной диэлектрической матрице силикатного стекла ($\epsilon_1 \approx 2.25$), которые были вызваны межзонными переходами на уровни размерного квантования электрона в зоне проводимости, от радиуса ПМ a была получена в [1,2].

Сравнивая спектр экситона $E_0(a)$, (4), найденный вариационным методом, с экспериментальными положениями экситонных пиков поглощения в малом ПМ сульфида кадмия [1,2] (см. рисунок), определим



Спектр экситона как функция радиуса a малого полупроводникового микрокристалла.

Сплошной линией изображен экспериментальный спектр [1,2], штриховой — спектр экситона $E_0(a)$ (4), полученный вариационным методом. Экспериментальный спектр [1,2] и вариационный спектр экситона $E_0(a)$ (4) отсчитывались от ширины запрещенной зоны E_g сульфида кадмия.

величину критического радиуса малого ПМ $a_c = 3.48a_{ex} \approx 87 \text{ \AA}$, начиная с которого в ПМ размером $a \geq a_c$ возникает объемный экситон.

В работах автора [5,6] и [12-14] в условиях тех же экспериментов [1,2] были получены соответственно значения критических размеров ПМ сульфида кадмия $a_c^{(1)} = 2.8a_{ex}$ (в рамках адиабатического приближения) и $a_c^{(2)} = 1.7a_{ex}$ (с учетом конечной глубины сферической потенциальной ямы малого ПМ). Критические радиусы малых ПМ сульфида кадмия $a_c = 3.48a_{ex}$ и $a_c^{(1)} = 2.8a_{ex}$ [5,6] находятся в хорошем согласии друг с другом, отличаясь лишь в пределах ($\lesssim 20\%$). Такое отличие, по-видимому, обусловлено тем обстоятельством, что вариационный метод расчета спектра экситона $E_0(a)$ (4) может давать завышенные значения энергии, что в свою очередь приводит также к завышенному значению критического радиуса ПМ $a_c = 3.48a_{ex}$. Что же касается величины критического размера ПМ сульфида кадмия $a_c^{(2)} = 1.7a_{ex}$ [12-14], то, как и следовало ожидать, она будет несколько меньшей, чем $a_c^{(1)} = 2.8a_{ex}$ и $a_c = 3.48a_{ex}$.

Следует отметить, что экстраполяция монотонной функции $\gamma(a)$, полученной для $a > a_{ex}$, к значениям размеров ПМ сульфида кадмия $a \lesssim a_{ex}$ дает практически такую же зависимость вариационного параметра γ от радиуса ПМ a , что и зависимость $E_0(a)$, полученная в [9] в рамках адиабатического приближения. Последнее обстоятельство приводит к тому, что зависимость энергии основного состояния экситона $E_0(a)$ (4), полученная вариационным методом для размеров ПМ $a > a_{ex}$, может быть продолжена и на область размеров ПМ $a \lesssim a_{ex}$ [9].

Таким образом, путем сравнения теоретической зависимости спектра экситона $E_0(a)$ (4) с экспериментальными спектрами экситонного поглощения ПМ можно определить значение критического радиуса ПМ a_c , начиная с которого в малом ПМ размером $a \geq a_c > a_{ex}$ возникает объемный экситон.

Аналогичным образом с помощью предложенного нового метода можно также найти критические размеры квазидвумерных структур, начиная с которых в таких структурах может образоваться объемный экситон.

Список литературы

- [1] А.И. Екимов, А.А. Онущенко. Письма в ЖЭТФ 40, 8, 337 (1984).
- [2] D. Cheris, A. Efros, A. Ekimov. J. Lumin. 47, 3, 113 (1990).
- [3] С.И. Покутний. ФТТ 34, 8, 2386 (1992).
- [4] S.I. Pokutnyi. Phys. Lett. A168, 5,6, 433 (1992).
- [5] С.И. Покутний. Автореф. докт. дис. Одесса (1994).
- [6] С.И. Покутний. ФТП 30, 7 (1996).
- [7] Y. Kayanuma. Solid. State Commun. 59, 6, 405 (1986).
- [8] Н.В. Ткач, В.А. Головацкий. ФТТ 32, 8, 2512 (1990).
- [9] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ 32, 6, 1637 (1990).
- [10] А.И. Екимов, А.А. Онущенко, С.К. Шумилов, Ал.Л. Эфрос. Письма в ЖТФ 13, 5, 281 (1987).
- [11] Y. Kayanuma. Phys. Rev. B38, 14, 9797 (1988).
- [12] S.I. Pokutnyi. Phys. Lett. A203, 5,6, 388 (1995).
- [13] С.И. Покутний. ФТТ 38, 2, 250 (1996).
- [14] С.И. Покутний. УФЖ 40, 7, 743 (1995).