

РАЗМЕРНОЕ КВАНТОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ПАРЫ В КВАЗИНУЛЬМЕРНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ СТРУКТУРАХ

Покутний С. И.

Развита теория размерного квантования энергетического спектра электронно-дырочной пары в малом полупроводниковом микрокристалле в условиях, когда поляризационное взаимодействие играет существенную роль. Приводится сравнение полученного спектра с результатами экспериментов.

В настоящее время интенсивно исследуются оптические свойства квазинульмерных структур, представляющих собой полупроводниковые микрокристаллы (ПМ), выращенные в различных диэлектрических средах [1-7, 10]. Технология изготовления этих систем такова, что ПМ в процессе выращивания принимают форму, близкую к сферической, а их размеры можно направленно варьировать в широких пределах от 10 до 10^3 Å. Такие размеры ПМ сравнимы с характерными размерами квазичастицы в полупроводниках. В этих условиях становится существенным влияние границы сферического ПМ на спектр его квазичастиц. Влияние границы ПМ может вызвать размерное квантование энергетического спектра квазичастиц ПМ, связанное как с чисто пространственным ограничением области квантования [1-8], так и с поляризационным взаимодействием носителей заряда с поверхностью ПМ [9]. Действительно, методами оптической спектроскопии в таких квазинульмерных структурах были обнаружены эффекты размерного квантования энергетического спектра экситонов [2-4, 7] и электронов [1, 5].

В [1] на примере ПМ CdS радиусом a , не превышающим радиус экситона ($a_{ex} = 30$ Å), в кристалле CdS обнаружен предсказанный ранее теоретически [8] эффект квантования энергетического спектра дырки в адиабатическом потенциале электрона ($m_e \ll m_h$, m_e и m_h — эффективные массы электрона и дырки). Спектр дырки в таком адиабатическом потенциале описывался спектром трехмерного гармонического осциллятора, расстояние между эквидистантными уровнями в котором определялось выражением [8]

$$\Delta E = \left(\frac{8}{3} \frac{e^2}{\epsilon_2 a} \frac{\hbar^2 \pi^2}{m_h a^2} \right)^{1/2} \quad (1)$$

(ϵ_2 — диэлектрическая проницаемость кристалла CdS). Экспериментальная зависимость расщепления ΔE от величины среднего радиуса ПМ, действительно, $\sim a^{-3/2}$ в соответствии с (1) [1]. Формула (1) качественно описывает наблюдаемое явление в рамках простой модели, учитывающей только кулоновское взаимодействие электрона с дыркой в простой параболической зоне.

В настоящей работе теоретически исследуются энергетический спектр электронно-дырочной пары (ЭДП) в малом ПМ и его зависимость от радиуса ПМ, эффективной массы электрона и дырки и относительной диэлектрической проницаемости. Во взаимодействии электрона с дыркой вместе с кулоновским взаимодействием учитывается также поляризационное взаимодействие носителей заряда с индуцированным ими поверхностным зарядом. Приводится сравнение полученного спектра ЭДП с результатами экспериментов [1].

Рассмотрим простую модель: нейтральный сферический ПМ радиуса a с диэлектрической проницаемостью ϵ_2 , окруженный средой с ϵ_1 . В объеме та-

кого ПМ движутся электрон e и дырка h с эффективными массами m_e и m_h соответственно (r_e и r_h — расстояние электрона и дырки от центра ПМ), причем диэлектрические проницаемости ПМ и матрицы имеют сильное отличие ($\epsilon_2 \gg \epsilon_1$). Предполагается, что зоны электронов и дырок имеют параболическую форму. Характерными размерами задачи являются величины a , a_e , a_h , где $a_e = \epsilon_2 \hbar^2 / m_e e^2$, $a_h = \epsilon_2 \hbar^2 / m_h e^2$ — боровские радиусы электрона и дырки соответственно в полупроводнике с ϵ_2 (e — заряд электрона). То обстоятельство, что все характерные размеры задачи a , a_e , $a_h \gg a_0$ значительно больше межатомных a_0 , позволяет рассматривать движение электрона и дырки в приближении эффективной массы.

В изучаемой модели в рамках вышеизложенных приближений гамильтониан ЭДП имеет вид

$$\mathcal{H} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_e - \frac{\hbar^2}{2m_h} \Delta_h + E_g + V_{eh}(r_e, r_h) + V_{hh'}(r_h, a) + V_{ee'}(r_e, a) + V_{eh'}(r_e, r_h, a) + V_{he'}(r_e, r_h, a), \quad (2)$$

где первые два члена определяют кинетическую энергию электрона и дырки, а V_{eh} — кулоновское взаимодействие в ЭДП:

$$V_{eh} = -\frac{e^2}{\epsilon_2 a} \frac{a}{(r_e^2 - 2r_e r_h \cos \theta + r_h^2)^{1/2}}, \quad \theta = \mathbf{r}_e \mathbf{r}_h, \quad (3)$$

$V_{ee'}$ и $V_{hh'}$ — взаимодействие с собственным изображением для электрона и дырки соответственно, $V_{eh'}$ и $V_{he'}$ — их взаимодействие с «чужими» изображениями, E_g — ширина запрещенной зоны в неограниченном полупроводнике. При произвольном значении ϵ_1 и ϵ_2 последние четыре члена могут быть записаны в аналитическом виде [9], который в случае $\epsilon_2 \gg \epsilon_1$ приобретает особенно простой вид

$$V_{hh'} = \frac{e^2}{2\epsilon_2 a} \left(\frac{a^2}{a^2 - r_h^2} + \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \right), \quad (4)$$

$$V_{ee'} = \frac{e^2}{2\epsilon_2 a} \left(\frac{a^2}{a^2 - r_e^2} + \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \right), \quad (5)$$

$$V_{eh'} = V_{he'} = -\frac{e^2}{2\epsilon_2 a} \frac{a}{[(r_e^2 r_h^2 / a^2) - 2r_e r_h \cos \theta + a^2]^{1/2}}. \quad (6)$$

Будем также считать, что выполняется условие

$$m_h \gg m_e, \quad (7)$$

которое эквивалентно неравенству $a_h \ll a_e$. Справедливость неравенства (7) дает возможность рассматривать движение тяжелой дырки в электронном потенциале, усредненном по движению электрона (адиабатическое приближение). Энергетический спектр ЭДП определяется решением уравнения Шредингера с гамильтонианом (2) и граничным условием, состоящем в равенстве нулю волновой функции на границе ПМ, что соответствует бесконечно высокой потенциальной стенке.

Исследуем энергетический спектр ЭДП в малом ПМ в случае, когда размер ПМ ограничен условием

$$a_0 \ll a_h < a \ll a_e, \quad (8)$$

при выполнении которого в потенциальной энергии гамильтониана (2) поляризацонное взаимодействие играет существенную роль. Неравенство (8) позволяет также рассматривать движение электрона и дырки в приближении эффективной массы. В условиях (8) можно использовать адиабатическое приближение, считая кинетическую энергию электрона самой большой величиной и рассматривая последние четыре члена в (2) вместе с оператором неадиабатичности по теории возмущений. Тогда, учитывая только первый порядок теории возмущений, легко получить спектр ЭДП $E_{n_e, l_e, m_e}^{n_h, l_h, m_h}(a)$ в состоянии $(n_e, l_e, m_e; n_h, l_h, m_h)$

(здесь n_e, l_e, m_e и n_h, l_h, m_h — главное, орбитальное и магнитное квантовые числа электрона и дырки) в следующем виде:

$$E_{n_e, l_e, m_e}^{n_h, l_h, m_h}(a) = \frac{\hbar^2}{2m_e a^2} \varphi_{n_e, l_e}^2 + \bar{V}_{ee'}(a) + \lambda_{n_e, l_e, m_e}^{n_h, l_h, m_h}(a) + E_g, \quad (9)$$

где первый член — кинетическая энергия электрона в бесконечной глубокой сферической прямоугольной яме [φ_{n_e, l_e} — корни функции Бесселя $J_{l_e+1/2} \times \times (\varphi_{n_e, l_e})=0$ и $n_e \geq l_e$], а $\bar{V}_{ee'}(a)$ — среднее значение энергии взаимодействия электрона с собственным изображением на функциях бесконечной глубокой сферической прямоугольной ямы

$$\Psi_{n_e, l_e, m_e} = Y_{l_e, m_e}(\theta, \varphi) \frac{2^{1/2}}{a r_e^{1/2}} \frac{J_{l_e+1/2}(k_{l_e, n_e} r_e)}{J_{l_e+1/2}(k_{l_e, n_e} a)} \quad (10)$$

[где Y_{l_e, m_e} — нормированные шаровые функции, $J_\nu(x)$ — функция Бесселя, коэффициенты k_{l_e, n_e} определяются условием $J_{l_e+1/2}(k_{l_e, n_e} a) = 0$]. Величина $\lambda_{n_e, l_e, m_e}^{n_h, l_h, m_h}(a)$ является собственным значением гамильтониана тяжелой дырки

$$\mathcal{H}_h = -\frac{\hbar^2}{2m_h} \Delta_h + V_{hh'}(r_h, a) + \bar{V}_{ne, le, me}(r_h, a), \quad (11)$$

где

$$\bar{V}_{n_e, l_e, m_e}(r_h, a) = \bar{V}_{eh'}(r_h, a) + \bar{V}_{he'}(r_h, a) + \bar{V}_{eh}(r_h, a) \quad (12)$$

— среднее значение кулоновского взаимодействия и взаимодействия с чужими изображениями на «свободных» электронных состояниях (10).

Количественные результаты для спектра ЭДП $E_{n_e, l_e, m_e}^{n_h, l_h, m_h}(a)$ получим здесь только для простого случая $l_e = 0$. Используя выражения (3)—(6), (10) и (12), легко получить

$$\bar{V}_{eh}^{n_e, 0, 0}(x, S) = \frac{1}{S} \left[\frac{\sin(2\pi n_e x)}{\pi n_e x} - 2 \text{Ci}(2\pi n_e x) + 2 \text{Ci}(2\pi n_e) + 2 \ln x - 2 \right], \quad (13)$$

$$\bar{V}_{ee'}^{n_e, 0, 0}(x, S) = \frac{1}{S} \left(Z_{n_e, 0} + \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \right), \quad (14)$$

$$\bar{V}_{eh'}^{n_e, 0, 0}(x, S) + \bar{V}_{he'}^{n_e, 0, 0}(x, S) = -\frac{2}{S}, \quad (15)$$

где $Z_{n_e, 0} = 2 \int_0^1 dx_e \sin^2(\pi n_e x_e) / (1 - x_e^2)$, а $\text{Ci}(y)$ — интегральный косинус. Здесь

и далее энергия измеряется в единицах $-\text{Ry}_h^* = \hbar^2 / 2m_h a_h^2$ и используются безразмерные величины длины $x = r_h / a$ и $S = a / a_h$. При этом энергию $V_{hh'}$ (4) можно записать таким образом

$$V_{hh'}(x, S) = \frac{1}{S} \left(\frac{1}{1 - x^2} + \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \right), \quad (4a)$$

а неравенство (8) принимает вид

$$a_0 / a_h \ll 1 < S \ll (a_0 / a_h). \quad (8a)$$

Отметим, что в рассматриваемом приближении взаимодействие электрона с изображениями (своим и чужим) и взаимодействие дырки с чужим изображением дают постоянную добавку к энергии дырки $\sim S^{-1}$. С учетом формул (4a) и (12), (13), (15) запишем потенциальную энергию в гамильтониане тяжелой дырки (11) в таком виде

$$\bar{U}^{n_e, 0, 0}(x, S) = V_{hh'}(x, S) + \bar{V}^{n_e, 0, 0}(x, S) = \frac{1}{S} \left[\frac{1}{1 - x^2} + \frac{\sin(2\pi n_e x)}{\pi n_e x} - 2 \text{Ci}(2\pi n_e x) + 2 \text{Ci}(2\pi n_e) + 2 \ln x + \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 4 \right]. \quad (16)$$

Минимум потенциальной энергии $\bar{U}_{\text{min}}^{n_e, 0, 0}(x=0, S) = P_{n_e, 0}/S$ [где $P_{n_e, 0} = 2 \text{Ci}(2\pi n_e) - 2 \ln(2\pi n_e) - 2\gamma + (\epsilon_2/\epsilon_1) - 1$; $\gamma = 0,577$ — постоянная Эйлера]. Разложив потенциал $\bar{U}^{n_e, 0, 0}(x, S)$ (16) в ряд по параметру $x \ll 1$ с точностью до первых двух членов, получим спектр дырки $\lambda_{n_e, 0, 0}^{t_h, l_h, m_h}(S)$ осцилляторного вида:

$$\lambda_{n_e, 0, 0}^{t_h}(S) = \frac{P_{n_e, 0}}{S} + \omega \left(t_h + \frac{3}{2} \right), \quad (17)$$

где частота колебаний

$$\omega = 2 \left(1 + \frac{2}{3} \pi^2 n_e^2 \right)^{1/2} S^{-3/2}. \quad (18)$$

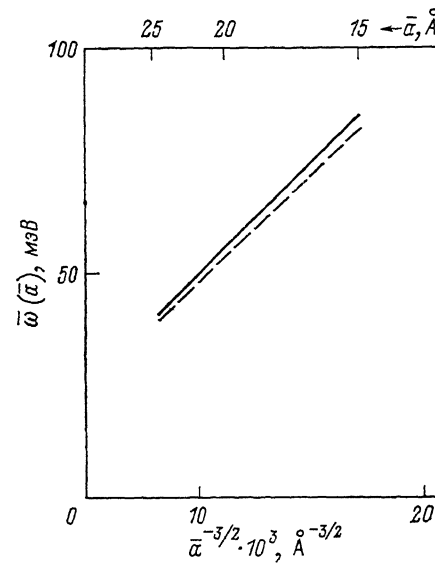
В формуле (17) $n_e = 1, 2, 3, \dots$ — главное квантовое число электрона, $t_h = 2n_{r_h} + l_h = 0, 1, 2, \dots$ — квантовое число дырки ($n_{r_h} = 0, 1, 2, \dots$ и $l_h = 0, 1, 2, \dots$ — соответственно радиальное и орбитальное квантовые числа дырки). Справедливость представления потенциала $\bar{U}^{n_e, 0, 0}$ (16) в виде потенциала трехмерного гармонического осциллятора сводится к требованию $(a_{0s}/a)^2 \ll 1$ [где $a_{0s} = (\langle r_h^2 \rangle_{t_h})^{1/2} = (t_h + 3/2)^{1/2} (\hbar^2/m_h \omega)^{1/2}$ — амплитуда осциллятора], которое выполняется для ПМ с размерами

$$S^{1/2} \gg \frac{t_h + 3/2}{(1 + 2/3 \pi^2 n_e^2)^{1/2}}. \quad (19)$$

Учитывая формулы (14) и (17), получим спектр ЭДП (9) для ПМ, радиусы которых одновременно удовлетворяют условиям (8а) и (19):

$$E_{n_e, 0, 0}^{t_h}(S) = E_g + \frac{\pi^2}{S^2} \frac{m_h}{m_e} + \frac{1}{S} \left(Z_{n_e, 0} + P_{n_e, 0} + \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \right) + \omega \left(t_h + \frac{3}{2} \right). \quad (20)$$

Поскольку спектр ЭДП (20) получен в рамках адиабатического приближения, основной вклад в спектр вносит второй член (кинетическая энергия электрона), который обусловлен чисто пространственным ограничением области квантования, и только в качестве поправок выступают два последних члена, которые связаны с кулоновским и поляризационным взаимодействиями в ЭДП. Следует отметить, что спектр ЭДП (20) применим только для нижайших состояний ЭДП ($n_e, 0, 0; t_h$), для которых выполняется неравенство $E_{n_e, 0, 0}^{t_h}(S) - E_g \ll \Delta E(S)$ [где $\Delta E(S)$ — глубина потенциальной ямы для электронов в ПМ, например, в ПМ CdS в области размеров (8а) величина $\Delta E = (2,3 - 2,5)$ эВ [10]].



Зависимость величины расщепления от размера микрокристаллов \bar{a} .

Сплошная линия — экспериментальная зависимость, пунктирная — зависимость $\bar{\omega}(\bar{a})$, которая определяется формулой (22).

Обратимся к результатам эксперимента [1]. В этой работе исследовались спектры межзонного поглощения диспергированных в прозрачной диэлектрической матрице ($\epsilon_1 \approx 1,5$) ПМ CdS ($\epsilon_2 \approx 9,3$) размером от 15 до 25 Å. В области переходов на нижний уровень размерного квантования электрона обнаружена структура, состоящая из эквидистантной серии уровней, расстояние между которыми определяется выражением (1). Указанная структура обусловлена квантованием энергетического спектра дырки в адиабатическом потенциале электрона. Эффективные массы электрона и дырки в CdS соответственно равнялись $m_e = 0,205m_0$ и $m_h = 5m_0$ (т. е. $m_e \ll m_h$). Полученный нами спектр ЭДП (20) применим (в условиях эксперимента [1]) в области радиусов ПМ (8а): $1 \ll S \ll$

$\leq (a_s/a_h) = 25$. Будем считать, так же как и в [2-5, 8], что распределение ПМ по радиусам описывается функцией Лифшица—Слезова [11]

$$f(u) = \frac{3^4 e u^2 \exp[-(1-2u/3)^{-1}]}{2^{5/2} (u+3)^{3/2} (3/2-u)^{11/2}}, \quad u = a/\bar{a} < 3/2, \quad f(u) = 0, \quad u > 3/2, \quad (21)$$

где \bar{a} — средний радиус ПМ. Учтем дисперсию ПМ по размерам. При этом, используя функцию (21) и формулу (18), получим выражение, определяющее расстояние между эквидистантной серией в спектре дырки,

$$\bar{\omega} = 2.232 (1 + 2/3 \pi^2 n_e^2)^{1/2} \bar{S}^{-3/2}, \quad \bar{S} = \bar{a}/a_h. \quad (22)$$

Из сравнения формулы (22) (при $n_e=1$) с экспериментальной зависимостью величины расщепления от размера ПМ, полученной в [1] (см. рисунок), следует, что для области радиусов ПМ $15 \leq \bar{a} \leq 25 \text{ \AA}$ ($15.2 \leq \bar{S} \leq 25.4$) значение расщепления $\bar{\omega}$ (22) находится в хорошем согласии с экспериментальными данными [1], отличаясь от последних лишь незначительно ($\leq 4\%$).

Таким образом, полученные результаты показывают, что в области размеров ПМ $a_h < \bar{a} \leq a_{\text{ex}}$ энергетический спектр генерируемой при поглощении кванта света ЭДП в таком ПМ определяется не только кулоновским взаимодействием между электроном и дыркой [1, 8], но также и поляризационным взаимодействием носителей заряда с индуцированным ими поверхностным зарядом.

Список литературы

- [1] Екимов А. И., Онущенко А. А., Эфрос Ал. Л. // Письма ЖЭТФ. 1986. Т. 43. В. 6. С. 292—294.
- [2] Екимов А. И., Онущенко А. А., Плюхин А. Г., Эфрос Ал. А. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. В. 4. С. 1490—1501.
- [3] Екимов А. И., Онущенко А. А. // Письма ЖЭТФ. 1981. Т. 34. В. 6. С. 363—366.
- [4] Екимов А. И., Efros Al. L., Onushchenko A. A. // Sol. St. Commun. 1985. V. 56. N 11, P. 921—924.
- [5] Екимов А. И., Онущенко А. А. // Письма ЖЭТФ. 1984. Т. 40. В. 8. С. 337—340.
- [6] Вандышев Ю. В., Днепровский В. С., Екимов А. И., Окорочков Д. К., Попова Л. Г., Эфрос Ал. Л. // Письма ЖЭТФ. 1987. Т. 46. В. 10. С. 393—396.
- [7] Itoh T., Iwabuchi Y., Kirihara T. // Phys. St. Sol. (b). 1988. V. 146. N 2. P. 531—533.
- [8] Эфрос Ал. Л., Эфрос А. Л. // ФТП. 1982. Т. 16. В. 7. С. 1209—1214.
- [9] Ефремов Н. А., Покутний С. И. // ФТТ. 1985. Т. 27. В. 1. С. 48—56.
- [10] Грабовский В. Я., Дзенис Я. Я., Екимов А. И. // ФТТ. 1989. Т. 31. В. 1. С. 272—275.
- [11] Лифшиц И. М., Слезов В. В. // ЖЭТФ. 1958. Т. 35. В. 2. С. 479—481.

Криворожский государственный педагогический институт

Получена 20.06.1990

Принята к печати 28.11.1990