Физика твердого тела, 1997, том 39, № 4

Поглощение и рассеяние света в квазинульмерных структурах. II. Поглощение и рассеяние света на одночастичных локальных состояниях носителей заряда

© *С.И. Покутний*

Украинский государственный морской технический университет,
327025 Николаев, Украина

(Поступило в Редакцию 13 сентября 1996 г.)

В рамках дипольного приближения показано, что сечение резонансного поглощения и рассеяния света имеет различный характер частотной и размерной зависимости для одночастичных локальных состояний носителей заряда в различных физических условиях.

В [1] была развита теория взаимодействия электромагнитного поля с локальными состояниями носителей заряда, возникающими вблизи малой диэлектрической частицы. Было показано, что дипольные моменты переходов для локальных состояний имели большие значения по сравнению с типичными значениями дипольных моментов переходов для полупроводников.

В настоящей статье, которая является продолжением работы [1], теоретически исследуются поглощение и рассеяние света на вышеуказанных одночастичных локальных состояниях в квазинульмерных структурах.

1. Поглощение и рассеяние света на одночастичных локальных состояниях

Полученные в [1] результаты, относящиеся к величинам матричных элементов дипольных моментов переходов $D_{1,0}(a)$ (1.6)[1] для объемных, $D_{1,0}(a)$ (1.7) для внутренних поверхностных и $D_{1,0}(a)$ (1.8) для внешних локальных состояний, позволяют выяснить поведение рассматриваемых квазинульмерных систем при поглощении энергии электромагнитного поля в области частот, соответствующих энергиям таких состояний. Сечение поглощения на сферической диэлектрической частице радиусом a можно выразить через ее поляризуемость $A''(\omega, a)$ [2]

$$\sigma_{abs}(\omega, a) = 4\pi \frac{\omega}{c} A''(\omega, a), \tag{1}$$

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

Классическая теория без учета размерного квантования спектра локальных состояний дает следующее выражение для $A''(\omega, a)$ (без учета эффектов действующего поля в среде с диэлектрической проницаемостью ε_i, в которой находится диэлектрическая частица) [2]:

$$A''(\omega, a) = \frac{4\pi}{3} a^3 \alpha''(\omega, a), \tag{2}$$

где $\alpha''(\omega, a)$ — мнимая часть поляризуемости среды внутри диэлектрической частицы.

Если же состояния носителя заряда в диэлектрической частице квантованы, то ее поляризуемость $A''(\omega, a)$ может быть легко найдена, если рассматривать диэлектрическую частицу как один гигантский ион. В этом случае поляризуемость заряженной диэлектрической частицы $A''(\omega, a)$ можно выразить через матричные элементы дипольных моментов переходов $D_{1,0}(a)$ (1.6), (1.7) и (1.8) между квантовыми состояниями [3]. При низких температурах $T < E_b = (\hbar^2/2m_i a_B^2)$ (порядка 1–10 K при $a_B \sim 10{-}10^2$ Å, где a_B — боровский радиус носителя заряда в среде с диэлектрической проницаемостью ε_i), меньших энергии связи E_b таких состояний, эта величина дается выражением

$$A''(\omega, a) = \frac{e^2}{m_i} \sum_{\gamma} \frac{f_{0\gamma}(a)}{\omega_\gamma^2(a) - \omega^2 - i\omega\Gamma_\gamma(a)}, \tag{3}$$

где

$$f_{0\gamma}(a) = \frac{2m_i}{\hbar e^2}\, \omega_\gamma(a) \big|D_{\gamma 0}(a)\big|^2 \tag{4}$$

— сила осциллятора перехода носителя заряда с эффективной массой m_i из основного в γ-состояние, которая выражается через матричный элемент дипольного момента перехода $D_{\gamma 0}(a)$, $\hbar\omega_\gamma(a)$ — энергия γ-го состояния, $\Gamma_\gamma(a)$ — ширина возбужденного γ-го уровня [4].

В отсутствие связанных состояний величина $D_{\gamma 0}(a)/e$ будет пропорциональной размеру области делокализации носителя заряда $\sim a$ (при больших значениях γ величина $D_{\gamma 0} = \gamma^{-1} e a$ [3]). При этом сила осциллятора перехода $f_{0\gamma}(a)$ (4) будет пропорциональной $f_{0\gamma}(a) \sim |D_{\gamma 0}/e|^2 \sim a^2$. В этом случае поляризуемость $A''(\omega, a)$ (3) и сечение поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (1) диэлектрической частицы радиуса a имеют вид

$$A''(\omega, a) = \omega\, f(\omega)\, a^2,$$
$$\sigma_{abs}(\omega, a) = \frac{4\pi}{c}\, \omega^2 f(\omega)\, a^2, \tag{5}$$

где функция $f(\omega)$ не зависит от a и слабо зависит от частоты ω [5] так, что

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega^2 a^2. \tag{6}$$

[1] Нумерация формулы (1.6) означает ссылку на формулу (6) работы [1] и т.д.

Если же реализуются условия, при которых образуются связанные состояния носителя заряда вблизи сферической поверхности раздела двух различных диэлектрических сред, то при температурах меньше энергии связи E_b таких состояний основной вклад в поляризуемость $A''(\omega, a)$ (3) вносят переходы в дискретном спектре этих состояний. Выделяя в (3) вклад одного такого резонансного состояния, поляризуемость диэлектрической частицы можно записать в виде

$$A''(\omega, a) = f_{01}(a)F(\omega_1, \omega), \tag{7}$$

где функция

$$F(\omega_1, \omega) = \frac{e^2}{m_i} \frac{1}{\omega_1^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_1(a)} \tag{8}$$

имеет обычный резонансный вид и вблизи резонанса не зависит от a [5]. Здесь мы выделили резонансный член, соответствующий переходу между основными s- и p-состояниями, рассмотренными выше, для которых $f_{01}(a)$ определяется выражениями (4) и (1.6)–(1.8).

Ясно, что ограничение указанными состояниями не влияет на выяснение поведения поляризуемости $A''(\omega, a)$ (2) и поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (1) в зависимости от размера диэлектрической частицы a при учете других состояний и для других резонансных частот, поскольку, как следует из (4), зависимость сил осцилляторов переходов $f_{01}(a)$ в эти состояния от a является общей. Как следует из (1), (7) и (8), сечение резонансного поглощения определяется выражением

$$\sigma_{abs}(\omega, S_i) = 4\pi\frac{\omega}{c}\, f_{01}(S_i)F(\omega_1, \omega), \tag{9}$$

где сила осциллятора перехода $f_{01}(S_i)$, согласно (4) и (1.6), для объемных состояний, локализованных в центре диэлектрической частицы радиуса S_i (где $S_i = a/b_i$, b_i — среднее расстояние носителя заряда, локализованного над плоской поверхностью раздела в основном состоянии (1.1)), принимает вид

$$f_{01}(S_2) = 3^{-1/3} \cdot 2^{-2} \left(\frac{\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right)^2 \times \left[\frac{8\beta}{3(1+\alpha)} + \frac{2(7+5\alpha)}{2+\alpha} \cdot \left(\frac{\beta}{1+\alpha}\frac{1}{S_2}\right)^{1/2} + \frac{8 + 11\alpha + 5\alpha^2}{2+\alpha}\,\frac{1}{S_2}\right]^{-1/2} S_2^{3/2}\,\frac{m_2 b_2^2}{\hbar}\,\omega_1, \tag{10}$$

параметры α и β определены в [1]. На поверхностных внутренних и внешних состояниях сила осциллятора перехода $f_{01}(S_i)$ (4) имеет одинаковый вид зависимости от радиуса диэлектрической частицы S_i

$$f_{01}(S_i) = S_i^2 L_i\, \frac{m_i b_i^2}{\hbar}\,\omega_1, \tag{11}$$

где параметр L_i для внутренних поверхностных состояний ($i = 2$) [1] есть

$$L_2 = 3 \cdot 2^{10}\left(\frac{\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right)^2 \frac{\tilde\mu_0^7\,\tilde\mu_1^9}{(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1)^{18}}\Big[(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1)^5 - 16(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1)^4 + 125(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1)^3 - 570(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1)^2 + 1470(\tilde\mu_0 + \tilde\mu_1) - 1680\Big]\Big(8\tilde\mu_0^4 - 36\tilde\mu_0^3 + 78\tilde\mu_0^2 - 90\tilde\mu_0 + 45\Big)^{-1}\Big(4\tilde\mu_1^6 - 30\tilde\mu_1^5 + 123\tilde\mu_1^4 - 330\tilde\mu_1^3 + 585\tilde\mu_1^2 - 630\tilde\mu_1 + 315\Big)^{-1}, \tag{12}$$

а для внешних поверхностных состояний ($i = 1$) [1]

$$L_1 = 3^{-1} \cdot 2^5\left(\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right)^2 \times \frac{\left[3(\mu_0 + \mu_1)^2 + 12(\mu_0 + \mu_1) + 20\right]^2}{(\mu_0 + \mu_1)^{12}(\mu_0^2 + 3\mu_0 + 3)} \times \frac{(\mu_0\,\mu_1)^5}{(\mu_1^2 + 3\mu_1 + 3)}. \tag{13}$$

Сравнение выражений (9)–(13) показывает различный характер частотной и размерной зависимости сечения поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ электромагнитного поля малой диэлектрической частицей с локализованными в ней одночастичными состояниями носителей заряда в различных физических условиях. В отсутствие связанных состояний вблизи сферической поверхности раздела двух сред сечение поглощения, согласно (6), составляет $\sigma(\omega, a) \sim \omega^2 a^2$. Для объемных состояний носителей заряда сечение поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ определяется формулами (9), (10), при этом

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega F(\omega_1, \omega)\, a^{3/2}. \tag{14}$$

На поверхностных внутренних и внешних состояниях сечение поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$, согласно (9), (11)–(13), имеет одинаковую зависимость от радиуса диэлектрической частицы a

$$\sigma_{abs}(\omega, a) \sim \omega F(\omega_1, \omega)\, a^2. \tag{15}$$

Таким образом, локализация носителей заряда на сферической поверхности раздела и внутри малой диэлектрической частицы имеет различное проявление размерной и частотной зависимости в поглощении электромагнитного поля. Это обстоятельство дает дополнительную возможность для спектроскопического обнаружения и исследования таких локальных состояний.

Следует отметить, что такую возможность дает и упругое рассеяние электромагнитной волны частоты ω

Параметры связанных состояний электронов и дырок, локализованных на диспергированных малых частицах с диэлектрической проницаемостью ε_2 в диэлектрических матрицах с ε_1 и в свободном состоянии

Матрица		Частица				E_1, mev		f_{01}, 10^{-1}	A'', 10^{-24} cm^3	σ_{abs}, 10^{-24} cm^2	σ_{sc}, 10^{-24} cm^2
	ε_1		a, Å (S)	ε_2	m_h/m_0						
	1	H_2O	45 (4)	1.78		67	[7]	1.11	$5.5\cdot10^2$	$3.7\cdot10^6$	$5.8\cdot10^{-10}$
	1	He	420 (4)	1.06		0.65	[19]	3.81	$4.8\cdot10^3$	$1.6\cdot10^4$	$1.64\cdot10^{-17}$
Стекло	1.5	CdS	54 (60)	9.3	5	50	[10,11]	0.18	$1.6\cdot10^2$	$4\cdot10^4$	$6\cdot10^{-13}$

Примечание. a — радиус частицы, m_h — эффективная масса дырки в частице, E_1 — энергия связи электрона (дырки), f_{01} — сила осциллятора перехода, A'' — поляризуемость частицы, σ_{abs}, σ_{sc} — сечение поглощения и рассеяния света.

на малых сферических диэлектрических частицах с размером a, сечение которого [2]

$$\sigma_{sc}(\omega,a)=2^7\cdot3^{-3}\pi^3\left(\frac{\omega}{c}\right)^4\left|A''(\omega,a)\right|^2 \qquad (16)$$

в соответствии с формулами (7), (8), (10)–(13), а также (5) имеет различную размерную и частотную зависимость для разных типов рассмотренных здесь состояний.

Действительно, для поверхностных внутренних и внешних состояний, согласно (7), (8) и (10)–(13), сечение упругого рассеяния электромагнитного поля $\sigma_{sc}(\omega,a)$ (16) описывается функциональной зависимостью от частоты ω и размера частицы S_i вида

$$\sigma_{sc}(\omega,S_i)=2^7\cdot3^{-1}\pi^3\left(\frac{\omega}{c}\right)^4F^2(\omega_1,\omega)\,L_i^2\left(\frac{m_ib_i^2}{\hbar}\,\omega_1\right)^2S_i^4. \qquad (17)$$

Для объемных локальных состояний носителей заряда сечение рассеяния $\sigma_{sc}(\omega,S_2)$ (16) в соответствии с (7), (8) и (10) имеет зависимость от ω и S_2 вида

$$\sigma_{sc}(\omega,S_2)=2^3\cdot3^{-5/3}\pi^3\left(\frac{\omega}{c}\right)^4F^2(\omega_1,\omega)\left(\frac{\varepsilon_1}{2\varepsilon_1+\varepsilon_2}\right)^4 \times\left[\frac{8\beta}{3(1+\alpha)}+\frac{2(7+5\alpha)}{2+\alpha}\left(\frac{\beta}{1+\alpha}\,\frac{1}{S_2}\right)^{1/2} +\frac{8+11\alpha+5\alpha^2}{2+\alpha}\,\frac{1}{S_2}\right]^{-1}\left(\frac{m_2b_2^2}{\hbar}\,\omega_1\right)^2S_2^3, \qquad (18)$$

В случае отсутствия связанных состояний вблизи диэлектрической частицы, согласно (5), сечение рассеяния $\sigma_{sc}(\omega,S_i)$ (16) описывается зависимостью от частоты ω электромагнитной волны и радиуса частицы S_i вида

$$\sigma_{sc}(\omega,S_i)=2^7\cdot3^{-1}\pi^3\left(\frac{b_i}{c}\right)^4\omega^6f^2(\omega)\,S_i^4. \qquad (19)$$

Оптический коэффициент ослабления света, учитывающий как поглощение, так и рассеяние света на одночастичных локальных состояниях, возникающих вблизи малых диэлектрических частиц радиуса a с концентрацией N, запишем как [6]

$$\lambda(\omega,a)=N\Big[\sigma_{abs}(\omega,a)+\sigma_{sc}(\omega,a)\Big]. \qquad (20)$$

Формула (20) применима для ансамбля невзаимодействующих между собой диэлектрических частиц. Условие, при выполнении которого диэлектрические частицы радиуса a с концентрацией N не будут взаимодействовать между собой, сводится к тому, что расстояние между диэлектрическими частицами ($\sim N^{-1/3}$) должно намного превышать размеры одночастичных локальных состояний $b_i\sim a_c$ (1.1), которые составляют порядка критических размеров частиц a_c,

$$a_cN^{1/3}\ll1. \qquad (21)$$

При $a_c\sim b_i\sim10^2$ Å [4,7–10] критерий (21) выполняется вплоть до концентраций малых частиц сульфида и селенида кадмия $N\leqslant10^{14}$ см$^{-3}$, достижимых в условиях экспериментов [11–18].

2. Сравнение теории с экспериментами

В заключение кратко обсудим возможные физические ситуации, для которых актуальны полученные результаты. Прежде всего проведем качественную оценку сечений поглощения $\sigma_{abs}(\omega,a)$ и рассеяния $\sigma_{sc}(\omega,a)$ света на вышеуказанных локальных состояниях носителей заряда в случае выделенного перехода $|0\rangle\to|1\rangle$ в условиях экспериментов [6,11–15,19]. В предположении, что частота световой волны ω находится вдали от резонансной частоты ω_1 локального состояния в диэлектрической частице, а также что уширение Γ_1 уровня с энергией $E_1=\hbar\omega_1$ мало (т. е. $\Gamma_1/\omega_1\ll1$), для качественной оценки сечений поглощения $\sigma_{abs}(\omega,a)$ и рассеяния $\sigma_{sc}(\omega,a)$ света на одночастичных локальных состояниях будем использовать выражения (8)–(13) и (17)–(19), в которых поляризуемость диэлектрической частицы имеет вид

$$A''(a)=\frac{e^2}{m_i}\,\frac{f_{01}(a)}{\omega_1^2}. \qquad (22)$$

В таблице приведены оценки сил осцилляторов переходов $f_{01}(a)$ (10)–(13), поляризуемостей $A''(\omega, a)$ (22), сечений поглощения $\sigma_{abs}(\omega, a)$ (9) и рассеяния $\sigma_{sc}(\omega, a)$ (17)–(19) света на вышеуказанных одночастичных локальных состояниях, возникающих в квазинульмерных системах, состоящих из диэлектрических матриц и диспергированных в них диэлектрических (полупроводниковых) частиц, размеры a которых превышают значения критических радиусов a_c (1.1) частиц [4,7–10]. Из этих оценок следует, что наибольшее значение сечения поглощения света $\simeq 4 \cdot 10^{-18}\,\mathrm{cm}^2$ (превышающее на шесть порядков типичные значения атомных сечений поглощения [20]) будет наблюдаться при поглощении света на внешних поверхностных состояниях электрона, возникающих в окрестности частицы воды (льда) [6]. При поглощении света соответственно на внутренних поверхностных состояниях электрона в баблоне [19], погруженном в сверхтекучий гелий, а также на объемных локальных состояниях дырки в частице сульфида кадмия, помещенной в матрицу борно-силикатного стекла [11,12], сечения поглощения будут достигать значений $\sim 10^{-20}$ см^2. При этом сечения рассеяния света на вышеуказанных одночастичных локальных состояниях будут пренебрежимо малы ($\sigma_{sc}/\sigma_{abs} \sim 10^{-16}$) по сравнению с сечениями поглощения света на таких же состояниях.

Последнее обстоятельство приводит к тому, что оптический коэффициент ослабления света $\lambda(\omega, a)$ (20) в основном определяется только процессами поглощения света на одночастичных локальных состояниях носителей заряда. При этом величина $\lambda(\omega, a)$ (20) для диэлектрических частиц с радиусами $a > a_c$ (1.1), удовлетворяющими условию (21), и с концентрацией $N = 10^{14}\,\mathrm{cm}^{-3}$ при поглощении света на локальных состояниях квазинульмерной системы, рассмотренных в таблице, принимает значение $\lambda \sim (10^{-4}–10^{-6})\,\mathrm{cm}^{-1}$.

Таким образом, большие значения сечений поглощения электромагнитного поля на одночастичных локальных состояниях носителей заряда, возникающих в окрестности диэлектрической (полупроводниковой) частицы, в квазинульмерных системах дают возможность использовать такие гетерофазные структуры в качестве новых сильно поглощающих материалов в широкой области длин волн, которая может широко варьироваться в зависимости от природы контактирующих материалов.

Автор признателен В.М. Аграновичу и Н.А. Ефремову за обсуждение полученных результатов.

Список литературы

[1] С.И. Покутний. ФТТ **39**, *4*, 720 (1997).
[2] В. Гайтлер. Квантовая теория излучения. М. (1956). 491 с.
[3] В.М. Агранович. Теория экситонов. М. (1968). 384 с.
[4] S.I. Pokutnyi. Phys. Stat. Sol. (b) **172**, *2*, 573 (1992).
[5] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теории экситонов. М. (1979). 432 с.
[6] Ю.И. Петров. Физика малых частиц. М. (1982). 360 с.
[7] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ **32**, *10*, 2921 (1990).
[8] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ **33**, *10*, 2845 (1991).
[9] S.I. Pokutnyi. Phys. Stat. Sol. (b) **165**, *1*, 109 (1991).
[10] С.И. Покутний. ФТТ **35**, *2*, 257 (1993).
[11] А.И. Екимов, А.А. Онущенко, Ал.Л. Эфрос. Письма в ЖЭТФ **43**, *6*, 292 (1986).
[12] В.Я. Грабовскис, Я.Я. Дзенис, А.И. Екимов. ФТТ **31**, *1*. 272 (1989).
[13] D. Chepik, A. Efros, A. Ekimov, J. Lumin. **47**, *3*, 113 (1990).
[14] A. Ekimov, V. Markov. J. Phys.: Cond. Matt. **6**, 2573 (1994).
[15] A. Ekimov, A. Efros. J. Opt. Soc. Am. **B10**, 100 (1993).
[16] L. Brus. J. Phys. Chem. **98**, 3575 (1994).
[17] V. Dneprovskii. Phys. Lett. **A204**, 59 (1995).
[18] Н.Р. Кулиш, В.П. Кунец, М.П. Лисица. УФЖ **38**, *11*, 1667 (1993).
[19] А.П. Володин, М.С. Хайкин, В.С. Эдельман. Письма в ЖЭТФ **26**, *10*, 707 (1977).
[20] Н. Ашкрофт, Н. Мермин. Физика твердого тела. М. (1979). Т. 2. 422 с.