Физика твердого тела, 1997, том 39, № 4

Поглощение и рассеяние света в квазинульмерных структурах. I. Дипольные моменты переходов носителей заряда

© *С.И. Покутний*

Украинский государственный морской технический университет,
327025 Николаев, Украина

(Поступила в Редакцию 2 декабря 1996 г.)

Развита теория взаимодействия электромагнитного поля с локальными состояниями носителей заряда, возникающими вблизи малой диэлектрической частицы. Показано, что дипольные моменты переходов для локальных состояний имеют большие значения, превосходящие типичные значения дипольных моментов переходов для полупроводников.

1. В настоящее время интенсивно исследуются оптические свойства квазинульмерных структур, представляющих собой малые сферические диэлектрические (в частности, полупроводниковые) частицы размером $a \sim 1{-}10^2$ nm, диспергированные в различных прозрачных диэлектрических средах [1,2].

В [3] с использованием простой модели квазинульмерной структуры были проанализированы условия локализации носителей заряда в окрестности сферической поверхности раздела двух диэлектрических сред. Эта модель представляла собой нейтральную сферическую диэлектрическую частицу радиусом a с диэлектрической проницаемостью (ДП) ε_2, окруженную средой с ДП ε_1, и квазичастицу с зарядом e, движущуюся либо в среде с ε_1 с эффективной массой m_1 вблизи границы раздела (внешняя задача), либо с эффективной массой m_2 внутри сферического объема в среде с ε_2 (внутренняя задача). Возникающее при этом поляризационное взаимодействие $U(r,\, a)$ (где r — расстояние носителя заряда до центра частицы) с индуцированным на сферической поверхности раздела поверхностным зарядом зависело от величины относительной ДП $\varepsilon = \varepsilon_1/\varepsilon_2$. Для носителей заряда, движущихся вблизи диэлектрической частицы, существуют две возможности: 1) поляризационное взаимодействие $U(r,\, a)$ приводит к притяжению носителя заряда к поверхности частицы (при $\varepsilon < 1$ к внешней поверхности частицы, при $\varepsilon > 1$ к внутренней поверхности) и образованию соответственно внешних поверхностных состояний [4,5] и внутренних поверхностных состояний [6]; 2) при $\varepsilon < 1$ поляризационное взаимодействие $U(r,\, a)$ вызывает отталкивание носителя заряда от внутренней поверхности диэлектрической частицы и возникновение в ее объеме объемных локальных состояний. При этом спектр низколежащих объемных состояний имеет осцилляторный вид [7,8].

В [3–8] было показано, что наименьший критический размер частицы a_c, при котором появлялось локальное состояние, был близок к величине среднего расстояния носителя заряда, локализованного над плоской поверхностью раздела в основном состоянии, от поверхности раздела (b_i)

$$a_c \sim b_i = 6\left|\frac{\varepsilon_2 + \varepsilon_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}\right| a_{B_i}, \tag{1}$$

где $a_{B_i} = \varepsilon_i(m_0/m_i)(\hbar^2/m_0e^2)$ — боровский радиус заряда в среде с ДП ε_i $(i = 1, 2)$, m_i и m_0 — эффективная масса носителя заряда в среде с ДП ε_i и масса свободного заряда.

Вариационным методом в [6] и [4] был найден спектр поверхностных внутренних и внешних состояний. При этом для внутренних поверхностных состояний [6] были использованы следующие вариационные волновые функции:

$$\chi_l(x,\, S_2) = A(S_2 - x)^{l+1}x(2S_2 - x)\exp(-\gamma_l x), \tag{2}$$

а для внешних поверхностных состояний [4] — следующие:

$$\chi_l(x,\, S_1) = Bx(x + S_1)\exp(-\mu_l x), \tag{3}$$

где l — орбитальное квантовое число заряда, $S_i = a/b_i$, x — расстояние носителя заряда до поверхности частицы в единицах b_i (1). Вариационные параметры $\gamma(S_2)$ и $\mu(S_1)$ как функции радиуса частицы S_i для $l = 0$ и 1 изображены на рис. 1, 2.

В настоящее время имеется достаточное количество экспериментальных работ, в которых наблюдались ука-

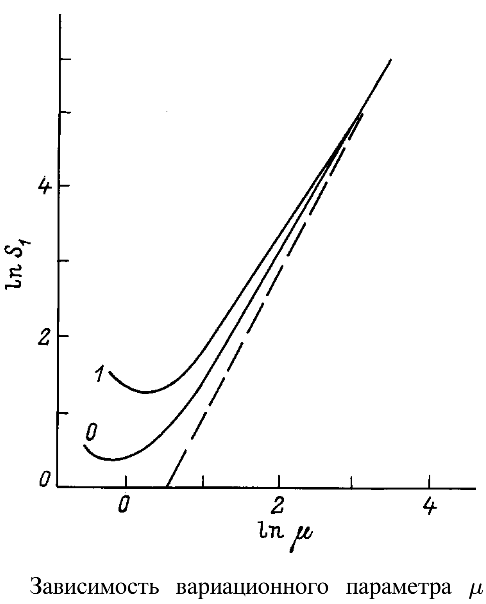

Рис. 1. Зависимость вариационного параметра $\mu(S_1)$ от радиуса частицы S_1. Цифры около кривых указывают значения l. Штриховая линия — $S_1 = (2/3)\mu$.

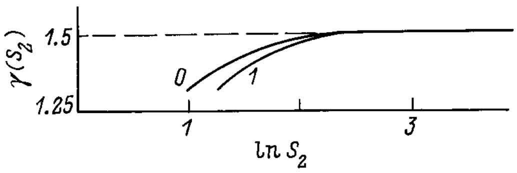

Рис. 2. Зависимость вариационного параметра $\gamma(S_2)$ от радиуса диэлектрической частицы S_2. Цифры около кривых указывают значения l.

занные одночастичные локальные состояния. Так, например, экспериментально изучалась локализация носителей заряда и экситонов в малых частицах хлорида меди [1] и сульфида кадмия [2,9], а также в изоэлектронных твердых растворах A_2B_6 [10,11]. Кроме того, в [12] наблюдалась локализация носителей тока в германии n-типа на малых частицах сурьмы и на частицах ртути, помещенных в плотные пары [13].

Между тем поведение квазинульмерных структур в поле световой волны остается практически неизученным. Чтобы заполнить пробел, в настоящей работе развита теория взаимодействия электромагнитного поля с вышеуказанными одночастичными локальными состояниями в квазинульмерных системах.

2. В области частот, соответствующих рассмотренным состояниям носителей заряда вблизи сферической поверхности раздела двух сред, длина волны намного больше размеров всех локальных состояний ($\sim b_i$ (1)), поэтому их поведение в электромагнитном поле хорошо описывается дипольным приближением. При этом операторы дипольного момента для внешней и внутренней задачи соответственно имеют вид [14]

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \left[1 - \frac{\beta}{1+\alpha}\left(\frac{a}{r}\right)^3\right] e\mathbf{r}, \tag{4}$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1+\varepsilon_2} e\mathbf{r}, \tag{5}$$

где параметры $\alpha = (\varepsilon_1/(\varepsilon_1+\varepsilon_2))$ и $\beta = ((\varepsilon_2 - \varepsilon_1)/(\varepsilon_2+\varepsilon_1))$.

Для оценки величин дипольных моментов достаточно рассмотреть переходы между нижайшими локальными состояниями всех рассмотренных типов, например между основными s- и p-состояниями. Такие переходы с изменением орбитального квантового числа ($l' = l \pm 1$) на единицу разрешены правилами отбора для дипольных переходов [15]. Для вычисления матричного элемента дипольного момента перехода $D_{1,0}(S)$ носителя заряда из s- в p-состояние предположим, что однородное поле световой волны $E(\omega, t)$ направлено только по оси z (ω — частота волны). При этом в качестве возмущения, вызывающего такие дипольные переходы, возьмем индуцируемые полем $E(\omega, t)$ дипольные моменты $\mathbf{D}(\mathbf{r})$ (4) для внешней и $\mathbf{D}(\mathbf{r})$ (5) для внутренней задачи.

Для объемных осцилляторных состояний [7,8] такому дипольному переходу соответствует переход между состояниями с квантовыми числами $l = 0$ и 1. С учетом (5) величина матричного элемента дипольного момента перехода $D_{1,0}(S_2)$ между такими состояниями, локализованными в центре диэлектрической частицы, имеет вид [15]

$$D_{1,0}(S_2) = \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1+\varepsilon_2} 3^{-7/6} 2^{-3/2} S_2^{3/4} \left[\frac{8\beta}{3(1+\alpha)} + \frac{2(7+5\alpha)}{2+\alpha}\left(\frac{\beta}{1+\alpha}S_2^{-1}\right)^{1/2} + \frac{(8+11\alpha+5\alpha^2)}{2+\alpha} S_2^{-1}\right]^{-1/4} eb_2. \tag{6}$$

Для оценки величин дипольных переходов на внутренних $D_{1,0}(S_2)$ и внешних $D_{1,0}(S_1)$ поверхностных состояниях можно воспользоваться вариационными волновыми функциями (2) и (4). При этом с учетом (2) и (5), а также (3) и (4) получим матричные элементы дипольных переходов между основными состояниями с $l = 0$ и 1 для внутренних поверхностных состояний

$$\begin{aligned} D_{1,0}(S_2) = {} & \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1+\varepsilon_2} 16 \cdot 3^{-1} \cdot 6^{1/2} S_2 \frac{\tilde\mu_0^{7/2}\tilde\mu_1^{9/2}}{\tilde\mu_0+\tilde\mu_1} \\ & \times \Big[(\tilde\mu_0+\tilde\mu_1)^5 - 16(\tilde\mu_0+\tilde\mu_1)^4 + 125(\tilde\mu_0+\tilde\mu_1)^3 \\ & - 570(\tilde\mu_0+\tilde\mu_1)^2 + 1470(\tilde\mu_0+\tilde\mu_1) - 1680\Big] \\ & \times (8\tilde\mu_0^4 - 36\tilde\mu_0^3 + 78\tilde\mu_0^2 - 90\tilde\mu_0 + 45)^{-1/2} \\ & \times (4\tilde\mu_1^6 - 30\tilde\mu_1^5 + 123\tilde\mu_1^4 - 330\tilde\mu_1^3 + 585\tilde\mu_1^2 \\ & - 630\tilde\mu_1 + 315)^{-1/2} eb_2, \end{aligned} \tag{7}$$

где

$$\tilde\mu_0(S_2) = \gamma_0(S_2)S_2, \quad \tilde\mu_1(S_2) = \gamma_1(S_2)S_2$$

и для внешних поверхностных состояний

$$\begin{aligned} D_{1,0}(S_1) = {} & 4 \cdot 3^{-1/2} \frac{(\varepsilon_2-\varepsilon_1)}{2\varepsilon_1+\varepsilon_2} S_1 \\ & \times \frac{(\mu_0\mu_1)^{5/2}}{(\mu_0+\mu_1)^6(\mu_0^2+3\mu_0+3)^{1/2}} \\ & \times \Big[3(\mu_0+\mu_1)^2 + 12(\mu_0+\mu_1) + 20\Big] \\ & \times (\mu_1^2 + 3\mu_1 + 3)^{-1/2} eb_1, \end{aligned} \tag{8}$$

где вариационные параметры $\mu_0(S_1)$, $\mu_1(S_1)$, $\gamma_0(S_2)$, $\gamma_1(S_2)$, которые содержатся в пробных волновых функциях внешних и внутренних поверхностных состояний соответственно, определены рис. 1 и 2.

Следует отметить, что выражение для дипольного момента перехода $D_{1,0}(S_2)$ (7) для внутренних поверхностных состояний было получено при выполнении условий

$\exp(-\gamma_1 S_2)$, $\exp(-\gamma_0 S_2) \ll 1$. Такие условия хорошо выполняются для произвольных значений вариационных параметров $\gamma_0(S_2)$, $\gamma_1(S_2)$ (рис. 2) и для всех значений размеров диэлектрических частиц $S \gg S_c$ (1).

В качестве примера приведем здесь значения дипольных моментов переходов $D_{1,0}(S_1)$ (8) для внешней и $D_{1,0}(S_2)$ (7) для внутренней задачи в диэлектрической частице с радиусом $S_1 = S_2 = S = 4$

$$D_{1,0}(S_1) = 7.6\frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} e b_1, \tag{9}$$

$$D_{1,0}(S_2) = 4.2\frac{\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} e b_2. \tag{10}$$

С ростом радиуса частицы S значения дипольных моментов переходов $D_{1,0}(S_1)$ (9) и $D_{1,0}(S_2)$ (10) практически не меняются, лишь слегка увеличиваясь при $S \to \infty$ в пределах фактора порядка единицы. Это, естественно, отражает тот факт, что размер диполя имеет порядок величины размера состояния b_i (1), который практически не меняется. Следует отметить, что именно благодаря этому обстоятельству использование вариационных функций (2) и (3) для оценки величин матричных элементов дипольных моментов переходов не вносит существенной ошибки, а может лишь отражаться на численном коэффициенте порядка единицы.

3. В заключение кратко обсудим возможные физические ситуации, для которых актуальны полученные результаты. Интересной особенностью состояний носителей заряда, локализованных на сферической поверхности раздела двух сред, является снятие вырождения по орбитальному квантовому числу l, вследствие чего даже в основном состоянии расстояние между подуровнями будет достаточно малым [4–8]. Если учесть, что дипольные моменты переходов для всех рассмотренных нами типов локальных состояний, согласно (6)–(8), имеют большие значения $D_{1,0}(a) \sim eb_i \gg 1D$ (во много раз превосходящие типичные значения дипольных моментов переходов для неограниченных полупроводниковых материалов, в которых они $\sim 10^{-1}D$ [16], а дипольные переходы в электромагнитном поле между ближайшими уровнями разрешены правилами отбора с изменением l на единицу, то очевидно, что рассматриваемые нами квазинульмерные системы являются сильно нелинейными средами для электромагнитного излучения.

Последнее обстоятельство представляет особый интерес для создания новых нелинейных элементов в широкой области длин волн, которая может варьироваться в зависимости от природы контактирующих материалов. В качестве примера приведем квазинульмерную систему, состоящую из полупроводниковой частицы CdS размером $a \simeq 54$ Å, помещенной в матрицу борно-силикатного стекла. В такой системе были экспериментально обнаружены осцилляторные состояния дырки, локализованной вблизи центра частицы с энергией $\sim 10^2$ meV [9]. Как было показано в [17,18], спектр объемных локальных состояний дырки в условиях эксперимента [9] состоял из эквидистантной серии уровней, расстояние между которыми $\sim a^{-3/2}$. Дипольные моменты переходов дырки между такими эквидистантными уровнями, согласно (6), принимают значения порядка $D_{1,0} \sim 10{-}20D$. Поэтому такие квазинульмерные системы являются сильно нелинейными средами для ИК-излучения.

Список литературы

[1] А. Екимов, А. Онущенко. Письма в ЖЭТФ **34**, *6*, 363 (1981).
[2] Chepik D., A. Efros. J. Lumin. **47**, *3*, 113 (1990).
[3] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ **27**, *1*, 48 (1985).
[4] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ **32**, *10*, 2921 (1990).
[5] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. ФТТ **33**, *10*, 2845 (1991).
[6] S. Pokutnyi. Phys. Stat. Sol. (b) **165**, *1*, 109 (1991).
[7] S. Pokutnyi. Phys. Stat. Sol. (b) **172**, *2*, 573 (1992).
[8] С.И. Покутний. ФТТ **35**, *2*, 257 (1993).
[9] А. Екимов, А. Онущенко, А. Эфрос. Письма в ЖЭТФ **43**, *6*, 292 (1986).
[10] С. Пермогоров, А. Резницкий, С. Вербин. Изв. АН СССР. Сер. физ. **49**, *10*, 2019 (1985).
[11] А. Резницкий, С. Пермогоров. Изв. АН СССР. Сер. физ. **52**, 691 (1988).
[12] В. Шаховцов, С. Шаховцова, И. Ясковец. ФТП **11**, *10*, 1967 (1977).
[13] P. Krebs, V. Girand. Phys. Rev. Lett. **44**, *3*, 211 (1980).
[14] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М. (1982).
[15] Н.А. Ефремов, С.И. Покутний. Препринт ИС АН СССР № 1 (1984).
[16] В.М. Агранович. Теория экситонов. М. (1968).
[17] С.И. Покутний. ФТП **25**, *4*, 628 (1991).
[18] S. Pokutnyi. Phys. Lett. (b) **168**, *5–6*, 433 (1992).