

Влияние фононов на электронный спектр в полупроводниковых малоразмерных квантовых точках, помещенных в диэлектрическую среду

© Н.В. Ткач, Р.Б. Фартушинский

Черновицкий национальный университет,
58012 Черновцы, Украина

E-mail: theormyk@chnu.cv.ua

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 27 ноября 2002 г.)

Методом диаграммной техники для функций Грина с учетом многофононных процессов исследованы электронные уровни и соответствующие им фононные повторения в полупроводниковой квантовой точке (КТ), помещенной в диэлектрик. На примерах КТ GaAs, CdSe, CuCl, введенных в стекло, показано, что при конечной глубине потенциальных ям КТ с уменьшением размеров КТ величины сдвигов электронных уровней уменьшаются независимо от силы электрон-фононной связи в наногетеросистеме. Теоретически рассчитанные положения фононных повторений для CdSe в стекле хорошо согласуются с установленными экспериментально методом рамановского рассеяния.

На протяжении длительного периода развития теории электрон-фононного взаимодействия в низкоразмерных системах вообще [1–3] и в квантовой точке (КТ) в частности [3–8] главное внимание уделялось перенормировке фононами основных зон или уровней в зависимости от размеров наносистем.

Для исследования квантово-точечных наносистем со слабой связью применялись разновидности теории возмущений [3–5]. В таких системах все механизмы вносят практически аддитивный вклад в величину сдвига основного уровня, поэтому в разных моделях наносистем изучалась роль ограниченных (L) и интерфейсных (I) фононов, а также влияние внутри- и междууровневого взаимодействия на величины перенормированных положений электронных уровней в шкале энергий. Главное внимание уделялось анализу относительных вкладов разных механизмов в величину сдвигов основного уровня в зависимости от размеров КТ.

В наносистемах с промежуточной и сильной электрон-фононной связью механизмы формирования сдвигов электронных уровней неаддитивны, и выделять их парциальные вклады можно лишь весьма условно. Поэтому в работах, где изучались КТ с промежуточной и сильной электрон-фононной связью, исследовалась зависимость сдвига основного электронного уровня от размеров КТ и сравнивались результаты расчетов, выполненных в разных моделях, приближениях и математических подходах [8].

Однако оказывается, что даже когда результаты разных подходов хорошо коррелируют между собой при всех размерах КТ, на самом деле они некорректны при малых радиусах квантовых точек. Так, в [5,8] показано, что при уменьшении радиуса полупроводниковых сферических КТ, введенных в диэлектрик, резко возрастают величины сдвигов основных электронных уровней в наносистемах независимо от величины электрон-фононной связи. Хотя такой результат фор-

мально верен, он является физически некорректным, так как авторы работ [5,8] использовали приближение бесконечно глубокой потенциальной ямы, которое несправедливо именно при малых размерах КТ. Из физических соображений понятно, что уменьшение радиуса КТ с бесконечно глубокой потенциальной ямой локализует квазичастицу, что увеличивает силу ее связи с фононами и приводит к формально верному увеличению величины сдвига. Однако в реальных КТ глубины потенциальных ям конечны, поэтому уменьшение радиуса КТ должно приводить к выталкиванию квазичастицы из ямы. Делокализация квазичастицы в пространстве уменьшает ее взаимодействие с фононами, вследствие чего величина сдвига электронного уровня должна уменьшаться, что и будет показано в настоящей работе.

Необходимо также отметить, что применяемые прежде методы исследования электрон-фононного взаимодействия не давали возможности изучать фононные повторения в спектрах наносистем, которые уже исследуются экспериментально [3] (в частности, методом рамановского рассеивания).

Целью настоящей работы является такая модификация диаграммной техники в методе функций Грина, которая позволяет эффективно учитывать как многоуровневость электронного спектра, так и многофононные виртуальные процессы. Это позволяет исследовать не только перенормировку бесфононных электронных линий, но и их фононные повторения в наносистемах, состоящих из сферических полупроводниковых КТ в диэлектриках с произвольной силой электрон-фононной связи. Конкретное исследование перенормированного L - и I -фононами (при $T = 0$) электронного спектра будет выполнено на примерах полупроводниковых КТ GaAs, CdSe, CuCl, введенных в стекло, где соответственно реализуется слабая, промежуточная и сильная электрон-фононная связь.

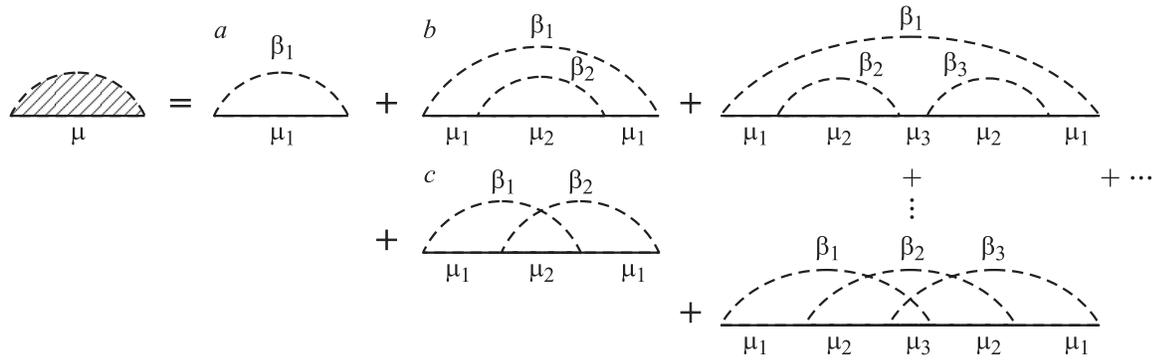


Рис. 1. Диаграммное разложение массового оператора.

Заметим также, что установленное здесь приемлемое согласование теоретических и экспериментальных результатов относительно положений электронных уровней и их фононных повторений в шкале частот позволит обобщить развитую теорию на случай произвольных температур при исследовании экситонного спектра в КТ. Использование метода Кубо для экситон-фононной системы, взаимодействующей с электромагнитным полем, даст возможность выполнить расчет рамановского спектра в КТ без введения ширины экситонной линии (Γ) как свободного параметра [9].

1. Гамильтониан, функции Грина и массовый оператор

Гамильтониан электрон-фононной системы в сферической полупроводниковой КТ, внедренной в диэлектрическую среду, является частным случаем гамильтониана сложной многослойной КТ [6,7]. В указанных работах в приближении эффективной массы для электрона и в модели диэлектрического континуума для ограниченных и интерфейсных фононов получен гамильтониан электрон-фононной системы в представлении вторичного квантования

$$H = \sum_{\mu} E_{\mu} a_{\mu}^{+} a_{\mu} + \sum_{\beta} \Omega_{\beta} (b_{\beta}^{+} b_{\beta} + 1/2) + \sum_{\mu_1 \mu_2 \beta} \varphi_{\mu_1 \mu_2}(\beta) a_{\mu_1}^{+} a_{\mu_2} (b_{\beta} + b_{\beta}^{+}). \quad (1)$$

Здесь E_{μ} — энергия электрона в состояниях с квантовыми числами $\mu\{p, l, m\}$, где $p = \{n, k\}$, n — радиальное квантовое число, характеризующее дискретный спектр энергий; $k\sqrt{2m_1 E}/\hbar$ ($E > 0$) — характеризует непрерывный спектр, m_1 — масса электрона в диэлектрической среде; l, m — орбитальное и магнитное кван-

товые числа соответственно. Ω_{β} — энергия фононов, где $\beta = \{\sigma, l, m\}$. Индекс $\sigma = \{L, I^{\pm}\}$ — характеризует ограниченные и интерфейсные фононы. Подробная информация о спектре и волновых функциях квазичастиц, а также о потенциалах поляризации и спектре фононов изложены в работах [6,7]. Напомним, что при расчете энергетического спектра „чистого“ электрона используются приближение различных эффективных масс и конечное значение глубины потенциальной ямы при условии непрерывности волновых функций и потоков плотности вероятности на границах наногетеросистемы. При расчете фононного спектра и потенциалов поляризации использовалась модель диэлектрического континуума с так называемыми электродинамическими граничными условиями. В результате энергии электронов и фононов, а также функции их связи

$$\varphi_{\mu_1, \mu_2}(\beta) = \Phi_{p_1 l_1 m_1}^{p_2 l_2 m_2}(\sigma l m) \quad (2)$$

в таком подходе однозначно определены из первых принципов в том смысле, что они не содержат никаких подгоночных параметров, а содержат только экспериментально измеряемые физические величины: эффективные массы и потенциальные энергии электрона в разных средах системы, а также энергии оптических фононов в составляющих материалах наносистемы и диэлектрические проницаемости этих составляющих.

Для исследования перенормированного фононами электронного спектра при низких температурах (формально $T = 0$) удобно использовать Фурье-образы электронных функций Грина, определяемых уравнением Дайсона

$$G_{\mu}(\omega) = G_{\mu\mu}(\omega) = \{\omega - E_{\mu} - M_{\mu}(\omega)\}^{-1} \quad (3)$$

через диагональные массовые операторы (МО) $M_{\mu}(\omega) \equiv M_{\mu\mu}(\omega)$, которые в диаграммной технике Пайнса [10] задаются бесконечной совокупностью диаграмм рис. 1.

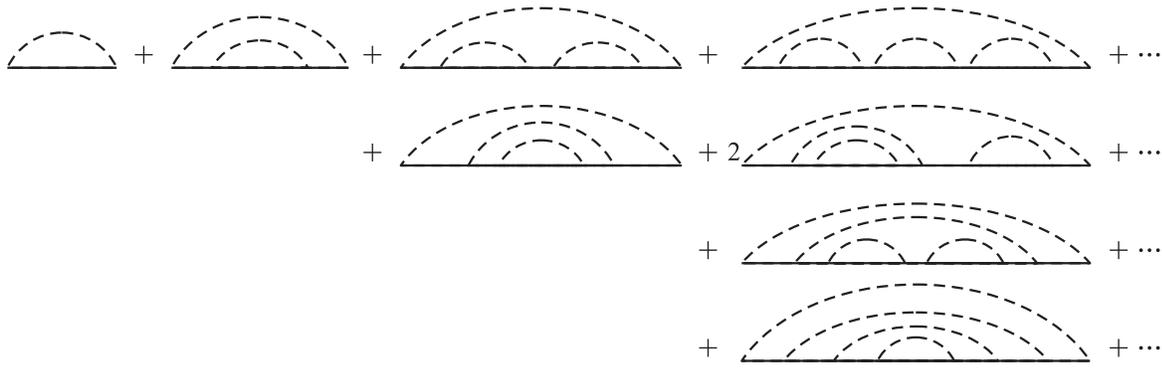


Рис. 2. Ряд для диаграмм без пересечений.

Согласно правилам Пайнса [10], первым трем диаграммам на рис. 1 соответствуют аналитические выражения

$$(a) \rightarrow \sum_{\mu_1 \beta_1} \frac{\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)\varphi_{\mu_1\mu}(\beta_1)}{\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1}}, \quad (4)$$

$$(b) \rightarrow \sum_{\mu_1 \mu_2 \beta_1 \beta_2} \frac{\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)\varphi_{\mu_1\mu_2}(\beta_2)}{(\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1})} \times \frac{\varphi_{\mu_2\mu_1}(\beta_2)\varphi_{\mu_1\mu}(\beta_1)}{(\omega - E_{\mu_2} - \Omega_{\beta_2} - \Omega_{\beta_1})(\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1})}, \quad (5)$$

$$(c) \rightarrow \sum_{\mu_1 \mu_2 \beta_1 \beta_2} \frac{\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)\varphi_{\mu_1\mu_2}(\beta_2)}{(\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1})} \times \frac{\varphi_{\mu_2\mu_1}(\beta_1)\varphi_{\mu_1\mu}(\beta_2)}{(\omega - E_{\mu_2} - \Omega_{\beta_1} - \Omega_{\beta_2})(\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_2})}. \quad (6)$$

Хотя в диаграммной технике Пайнса, можно легко записать аналитическое выражение произвольной диаграммы из бесконечного ряда (4), однако сам ряд не сводится к простому аналитическому выражению. Известно только [6,7], что все диаграммы без пересечений фононных линий (рис. 2) сворачиваются точно, что приводит к уравнению интегрального типа

$$M_{\mu}^l(\omega) = \sum_{\mu_1 \beta_1} \frac{|\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)|^2}{\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1} - M_{\mu_1}^l(\omega - \Omega_{\beta_1})}, \quad (7)$$

которое эквивалентно бесконечной суммарной (интегральной) цепной дроби

$$M_{\mu}^l(\omega) = \sum_{\mu_1 \beta_1} \frac{|\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)|^2}{\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1} - \sum_{\mu_2 \beta_2} \frac{|\varphi_{\mu_1\mu_2}(\beta_2)|^2}{\omega - E_{\mu_2} - \Omega_{\beta_1} - \Omega_{\beta_2} - \dots} - \sum_{\mu_n \beta_n} \frac{|\varphi_{\mu_{n-1}\mu_n}(\beta_n)|^2}{\omega - E_{\mu_n} - \sum_{i=1}^n \Omega_{\beta_i} - \dots}. \quad (8)$$

Поскольку в каждом порядке ряда диаграмм рис. 2 учтена лишь часть диаграмм точного ряда рис. 1, то хотя $M_{\mu}^l(\omega)$ и учитывает виртуальные многофононные процессы, но дает лишь нижнюю оценку полного МО. Верхнюю оценку $M_{\mu}^u(\omega)$ можно получить следующим образом. Из физических соображений ясно, что при $T = 0$ в системе существуют только виртуальные фононы, взаимодействие электрона с которыми происходит только в процессах их излучения. Отсутствие реальных фононов при $T = 0$ (среднее значение числа их заполнения равно нулю) приводит к тому, что в электрон-фононной системе нет механизма, который бы формировал конечное время жизни электрона в состояниях дискретного спектра. Математически это отображается в том, что в энергетических знаменателях диаграмм всех порядков знаки перед энергиями электрона и фононов всегда отрицательны и нет интегралов, которые согласно правилу Дирака могли бы приводить к существованию действительной и мнимой части. Таким образом, вклады каждой диаграммы полного МО являются действительными величинами. Конкретный расчет слагаемых МО в нижних порядках для гамильтониана исследуемой системы показывает, что диаграммы с одинаковым максимальным числом фононных линий над одной электронной линией в каждом порядке вносят сравнимые вклады, хотя вклады диаграмм с пересечениями линий меньше, чем вклады диаграмм без пересечений линий (рис. 3).

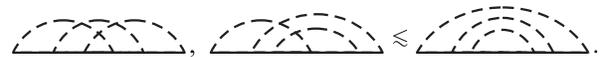


Рис. 3. Пример диаграмм без пересечений.

Таким образом, если положить вклады диаграмм с одинаковым максимальным числом фононных линий над одной электронной линией равными, то можно получить верхнюю оценку полного МО. Оказывается, что сумму таких диаграмм (рис. 4) можно представить в ви-

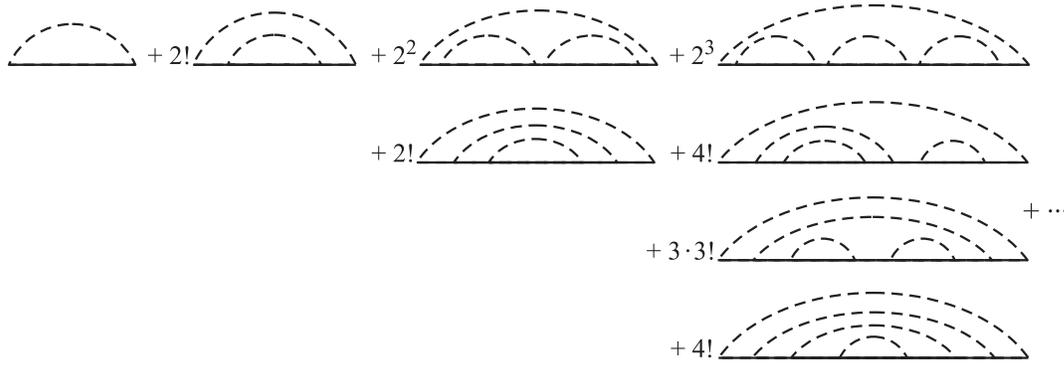


Рис. 4. Ряд для оценки массового оператора.

де бесконечной суммарной (интегральной) цепной дроби

$$M_{\mu}^u(\omega) = \sum_{\mu_1\beta_1} \frac{|\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)|^2}{\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1} - 2 \sum_{\mu_2\beta_2} \frac{|\varphi_{\mu_1\mu_2}(\beta_2)|^2}{\omega - E_{\mu_2} - \Omega_{\beta_1} - \Omega_{\beta_2} - \dots}} \dots - N \sum_{\mu_N\beta_N} \frac{|\varphi_{\mu_{N-1}\mu_N}(\beta_N)|^2}{\omega - E_{\mu_N} - \sum_{i=1}^N \Omega_{\beta_i} - \dots}. \quad (9)$$

Заметим, кстати, что в случае одноуровневой (E) электрон-фононной системы (или же системы без конфигурационного межуровневого взаимодействия) МО (9) является точным. Как показано в работе [6], МО имеет вид бесконечной цепной дроби

$$M(\omega) = \frac{|\varphi|^2}{\omega - E - \Omega - \frac{2|\varphi|^2}{\omega - E - 2\Omega - \dots - \frac{N|\varphi|^2}{\omega - E - N\Omega - \dots}}}. \quad (10)$$

Он эффективно учитывает многофононные процессы независимо от величины константы связи φ и приводит к тем же результатам, которые получаются в результате точного решения методом унитарных преобразований.

Учитывая теперь, что суммарные цепные дроби (8) и (9) имеют одинаковую структуру, но дают нижнюю и верхнюю оценку полного МО соответственно, можно получить аппроксимирующий МО, если в N -м звене аналогичной цепной дроби коэффициентом положить среднее арифметическое соответствующих коэффициентов из M_{μ}^u и M_{μ}^l , т.е. $(N + 1)/2$. В результате для аппроксимирующего МО ($M_{\mu}^a(\omega)$) найдем

$$M_{\mu}^a(\omega) = \sum_{\mu_1\beta_1} \frac{|\varphi_{\mu\mu_1}(\beta_1)|^2}{\omega - E_{\mu_1} - \Omega_{\beta_1} - \frac{3}{2} \sum_{\mu_2\beta_2} \frac{|\varphi_{\mu_1\mu_2}(\beta_2)|^2}{\omega - E_{\mu_2} - \Omega_{\beta_1} - \Omega_{\beta_2} - \dots}} \dots - \frac{N + 1}{2} \sum_{\mu_N\beta_N} \frac{|\varphi_{\mu_{N-1}\mu_N}(\beta_N)|^2}{\omega - E_{\mu_N} - \sum_{i=1}^N \Omega_{\beta_i} - \dots}. \quad (11)$$

Полученный аппроксимирующий МО учитывает как виртуальные многофононные процессы, так и конфигурационное междууровневое взаимодействие, поэтому позволяет исследовать перенормированные электронные энергетические уровни и соответствующие им фононные повторения в системах с различными силами электрон-фононного взаимодействия.

Из математической структуры МО (11) видно, что она имеет удобную для практических расчетов на ЭВМ однотипную рекурсивную форму, так как все звенья бесконечной цепи однотипны. Алгоритм простой: расчет начинается с того, что слагаемое $N + 1$ -го звена полагается равным нулю и рекурсивным алгоритмом выполняется расчет $M_{\mu}^a(\omega)$ в N -м приближении. Сравнивая полученные результаты для величин энергетических уровней и их фононных повторений в N -м и $N + 1$ -м приближениях для МО при последовательном увеличении N , можно получить электронный спектр системы с соответствующей точностью. При этом очевидно, что если в (11) оставить только верхние звенья, то получается так называемое однофононное приближение (соответствующее диаграмме 1 на рис. 1), справедливое в случае слабой связи и содержащее информацию о величине перенормированной энергии собственного электронного бесфононного состояния и нулевых однофононных повторениях (для многофононной системы фононов).

Учет последующих звеньев МО позволяет последовательно уточнять перенормированные положения ранее полученных уровней и повторений, а также новые фононные повторения. Чем больше функции (константы) связи, тем больше количество звеньев цепи (11) нужно учитывать, чтобы получить спектр с нужной точностью. Сходимость при вычислении M_{μ}^a нужно исследовать в каждом конкретном случае, однако известно, что математические объекты типа ветвящихся дробей (11) по сравнению с обычными разложениями в ряды по какому-либо параметру имеют очень быструю сходимость.

2. Электронные уровни и фононные повторения в квантовых точках GaAs, CdSe, CuCl в стекле

Развитая в предыдущем параграфе теория позволяет исследовать спектры квазичастиц в произвольных наногетеросистемах. Здесь будут представлены результаты конкретных расчетов, выполненных на примерах КТ GaAs, CdSe, CuCl, введенных в стекло. Такой выбор позволяет охватить достаточно широкую область электрон-фононной связи (от слабой в GaAs до сильной в CuCl), а также дает возможность сравнить полученные результаты перенормирования основных электронных уровней с результатами других работ [4,5], найденными другими методами. Впервые появляется возможность сопоставить теоретически рассчитанные положения фононных повторений в спектре энергий с экспериментальными результатами, полученными из рамановского рассеивания в наногетеросистеме КТ CdSe в стекле [3].

Параметры кристаллов

Среда	U , meV	m_e/m_0	ε_0	ε_∞	Ω_L , meV	Ω_T , meV
CdSe	1820	0.13	9.3	6.1	26.54	21.49
GaAs	2028	0.067	12.9	10.9	36.2	33.3
CuCl	1100	0.504	7.9	3.61	35.54	17.33
Стекло	0	1	6.0	—	—	—

Физические параметры наносистем (масса электрона m_e , диэлектрические проницаемости ε_0 , ε_∞ , энергии оптических фононов Ω_L , Ω_T (в массивных аналогах КТ) и глубины потенциальных ям U), которые используются при расчетах, приведены в Таблице (масса электрона в стекле полагалась равной его массе m_0 в вакууме). За исключением глубин потенциальных ям электронов в КТ, известных из [11], остальные параметры такие же, как в работе [8].

Перенормированный взаимодействием с ограниченными и интерфейсными фононами электронный спектр СКТ в диэлектрической среде согласно теории функций Грина [12] характеризуется функцией плотности энергии

$$\rho_{nlm}^a(\omega) = -2\text{Im}G_{nlm}(\omega) = -2\text{Im}\{\omega - E_{nl} - M_{nlm}^a(\omega)\}^{-1}, \quad (12)$$

где согласно предыдущему разделу аппроксимирующей МО, который учитывает многоуровневость системы и многофононные процессы, имеет вид

$$M_{nlm}^a(\omega) = \sum_{\substack{p_1 l_1 m_1 \\ \lambda'_1 l'_1 m'_1}} \frac{|\Phi_{nlm}^{p_1 l_1 m_1}(\lambda'_1 l'_1 m'_1)|^2}{\omega - E_{p_1 l_1} - \Omega_{\lambda'_1 l'_1} - \dots} \dots - \frac{N+1}{2} \sum_{\substack{p_N l_N m_N \\ \lambda'_N l'_N m'_N}} \frac{|\Phi_{nlm}^{p_N l_N m_N}(\lambda'_N l'_N m'_N)|^2}{\omega - E_{p_N l_N} - \sum_{i=1}^N \Omega_{\lambda'_i l'_i} - \dots}. \quad (13)$$

В МО (13) согласно (2) записано детализированное соответствующими квантовыми числами (nlm) обозначение функций связи, которые получены в явном виде и раньше использовались в работах [6,7].

Аналитические выражения для плотности энергии ($\rho^a(\omega)$), массового оператора $M_{nlm}^a(\omega)$ и функций связи $\Phi_{n_1 l_1 m_1}^{n_2 l_2 m_2}(\lambda l m)$, известные из [6,7], позволяют сделать некоторые общие выводы.

Поскольку при $T = 0$ взаимодействие электрона происходит только в процессах испускания L - и I -фононов, понятно, что аналитическая форма МО (13) не содержит конечной величины мнимой части при любых энергиях, поэтому спектральные линии, которые определяются формулой (12), имеют δ -образный вид. Вследствие этого положение линий в шкале энергий определяется дисперсионным уравнением (ДУ)

$$\omega - E_{nl} - M_{nlm}^a(\omega) = 0, \quad (14)$$

решения которого задают перенормированный спектр системы, т.е. положение электронных уровней \tilde{E}_{nlm} в шкале энергий и соответствующих им N_L -ых L -фононных ($\tilde{E}_{nlm}^{N_L}$), N_I -ых I -фононных ($\tilde{E}_{nlm}^{N_I}$) и комбинированных ($\tilde{E}_{nlm}^{N_L, N_I}$) фононных повторений (N_L, N_I).

Вследствие электрон-фононного взаимодействия возникают смещения электронных уровней Δ_{nlm} и соответствующие им фононные повторения $\Delta_{nlm}^{N_L, N_I}$, которые определяются соотношениями

$$\Delta_{nlm} = \tilde{E}_{nlm} - E_{nl}, \quad \Delta_{nlm}^{N_L, N_I} = \tilde{E}_{nlm}^{N_L, N_I} - (E_{nl} + N_{L,I} \Omega_{L,I}). \quad (15)$$

Поскольку взаимодействие (как видно из МО) снимает вырождение по магнитному квантовому числу m , каждый l -й чисто-электронный уровень с учетом электрон-фононного взаимодействия расщепляется на $l+1$ энергетический уровень.

Еще один общий вид состоит в том, что, поскольку в сферически-симметричных состояниях ($l = m = 0$) интерфейсные фононы отсутствуют [6,7,13], а электрон в таких состояниях не взаимодействует с любыми I -фононами, которые находятся в других состояниях (вследствие симметрии функций связи), возле электронных уровней, которые соответствуют симметричным состояниям, могут образовываться только L -фононные повторения.

Прежде чем проанализировать перенормированный спектр конкретных наногетеросистем, заметим, что, поскольку реальные КТ характеризуются конечной глубиной потенциальных ям, при расчете электронного МО суммирование по квантовому числу p включает не только дискретную часть спектра ($n = 1, 2, \dots$), но и непрерывную часть ($0 \leq k < \infty$), причем

$$\sum_k \Rightarrow \int_0^\infty dk, \quad \left(k = \frac{\sqrt{2m_1 E}}{\hbar}, E > 0\right). \quad (16)$$

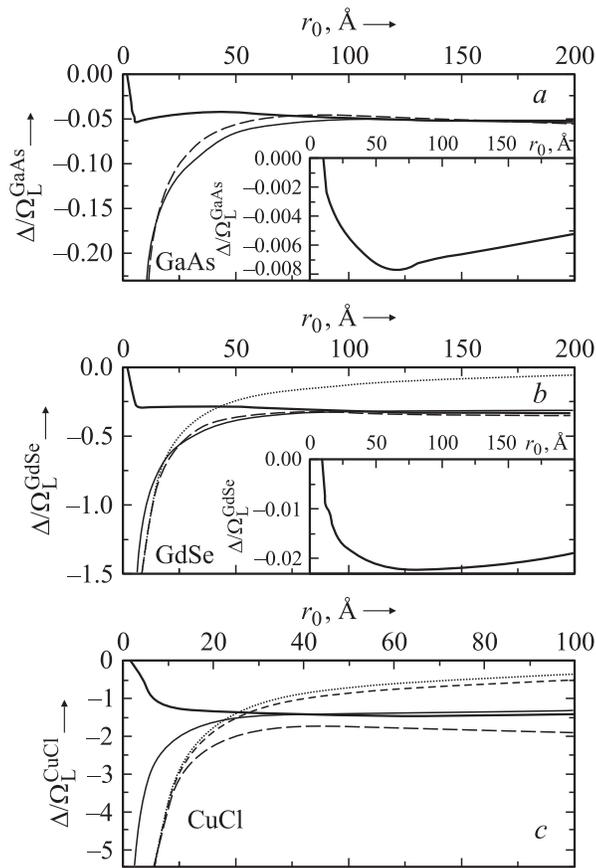


Рис. 5. Зависимость Δ от радиусов КТ GaAs (a), CdSe (b), CuCl (c) в стекле. Результаты расчета Δ в соответствующих работах изображены так: пунктирная линия [5], точечная и штриховая [8], сплошная — настоящая работа. Тонкие линии соответствуют $U \rightarrow \infty$, толстые — $U \neq \infty$.

Следует также заметить, что хотя учет электрон-фононного взаимодействия через состояния непрерывного спектра резко усложняет численные расчеты, он необходим, поскольку, как показывают конкретные вычисления, независимо от силы связи этот механизм вносит не меньше 10% вклада в перенормированные параметры спектра.

Теперь проанализируем результаты расчетов перенормированного фононами электронного спектра, выполненные на основе МО (13) для КТ GaAs, CdSe, CuCl в стекле. Результаты расчетов зависимости сдвигов ($\Delta = \Delta_{100}$) основных уровней от радиусов r_0 всех трех типов КТ при конечной и бесконечной глубинах потенциальных ям приведены на рис. 5 жирными и тонкими сплошными линиями соответственно. Там же для сравнения приведены зависимости Δ от r_0 , найденные методом унитарных преобразований Ли–Лоу–Пайнса в [8] (штриховые линии), методом адиабатического приближения [8] (пунктирные линии) и теорией возмущений [5] (точечные линии).

Из рис. 5 видно, что в упрощенной модели с бесконечной глубиной электронной потенциальной ямы

примененный нами метод расчета сдвига дает результаты, близкие к методу Ли–Лоу–Пайнса для той же модели при всех размерах КТ. Однако реальные КТ в среде имеют конечную глубину потенциальных ям, поэтому учет этого обстоятельства существенно изменяет зависимость сдвига от радиуса КТ. В частности, как показывают наши расчеты, из рис. 5 видно, что уменьшение радиуса КТ приводит не к увеличению, а, как следует ожидать из физических соображений, к уменьшению величины сдвига. Ведь при уменьшении размера КТ электронный уровень выталкивается из ямы, электрон делокализуется в пространстве, и поэтому независимо от величины поля поляризации (которое пространственно ограничено размером КТ) сила электрон-фононного взаимодействия уменьшается, что и приводит к уменьшению абсолютной величины сдвига. Поэтому неверная зависимость Δ от r_0 при малых величинах радиуса КТ ($r_0 \leq 50 \text{ \AA}$), полученная в работах [5,8], обуславливается не примененными там методами расчета, а неадекватностью модели бесконечно глубокой потенциальной ямы реальной физической ситуации, которая имеет место в наносистемах с полупроводниковыми КТ малых размеров в диэлектрике.

В квантовых точках GaAs и CdSe электрон-фононная связь довольно слабая, поэтому вклады I - и L -фононов в сдвиг Δ можно считать аддитивными ($\Delta = \Delta_L + \Delta_I$). Их относительная роль в формировании сдвига Δ хорошо видна из вставок на рис. 5, a, b, где приведена зависимость от r_0 частичного вклада в сдвиг интерфейсных (Δ_I) фононов. Из рис. 5, a, b видно, что вклад I -фононов в величину сдвига на порядок меньше вклада L -фононов. В КТ CuCl связь достаточно сильная, поэтому вклады I - и L -фононов неаддитивные, т.е. выделить их невозможно.

Полученный МО (13) существенно учитывает виртуальные многофононные процессы, и поэтому позволяет рассчитать не только перенормированное положение основного (бесфононного) энергетического уровня, но и положение фононных повторений в шкале энергий.

На рис. 6 и 7 приведены результаты расчетов частотных зависимостей массовых операторов $M^a(\omega)$, $M^l(\omega)$ (c), плотностей энергий $\rho^a(\omega)$, $\rho^l(\omega)$ (b), а также интенсивности рамановского рассеивания $I_R(\omega)$ (a), полученный на эксперименте в работе [3] для наносистемы, состоящей из КТ CdSe в стекле при двух значениях радиусов КТ $r_0 = 19$ и 40 \AA . Из рисунков видно, что положения L -фононных повторений (ω_n^l), рассчитанных с помощью МО $M^l(\omega)$ (8), согласуются с экспериментом плохо, причем чем больше энергия фононного повторения, тем больше отклонение. В случае использования аппроксимированного $M^a(\omega)$ расчет приводит к достаточно хорошему согласию теории с экспериментом независимо от величины энергии фононного повторения.

Поскольку, согласно развитой теории электрон в S -состоянии ($l = 0$) не взаимодействует с интерфейсными фононами в состояниях с $l \neq 0$, а в S -состояниях эти

фононы не существуют, I -фононы вносят вклад только в величины сдвигов перенормированных положений основного уровня и его L -фононных повторений, но самих I -фононных повторений (как видно из рис. 6, 7) нет из-за того, что нет прямого взаимодействия электрона с I -фононами в S -состояниях. В электронных состояниях с $l \neq 0$ прямое взаимодействие с I -фононами в таких же состояниях существует, поэтому возле таких уровней должны возникать I -фононные повторения.

Описанная картина справедлива для КТ идеальной сферической формы. Однако в реальных экспериментальных системах форма КТ более или менее отличается от сферической. В таких системах основное электронное состояние описывается суперпозицией волновых функций, в которой кроме S -состояний присутствуют и состояния с $l \neq 0$, поэтому возможно прямое взаимодействие электрона в основном состоянии с I -фононами ($l \neq 0$), что должно приводить к возникновению I -фононных повторных основной серии. Понятно, что чем больше вклад состояний с $l \neq 0$ в волновую функцию основного состояния электрона и взаимодействие с I -фононами, что на эксперименте должно проявляться в увеличении интенсивности I -фононных повторений при $T \neq 0$.

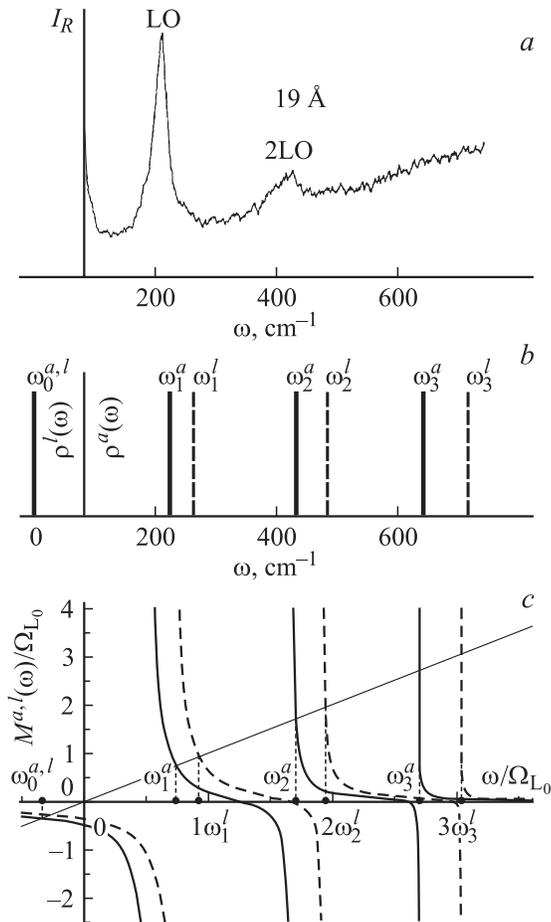


Рис. 6. Зависимость интенсивности рамановского рассеяния I_R (a), ρ^a , ρ^l (b) и M^a , M^l (c) от частоты ω при $r_0 = 19 \text{ \AA}$.

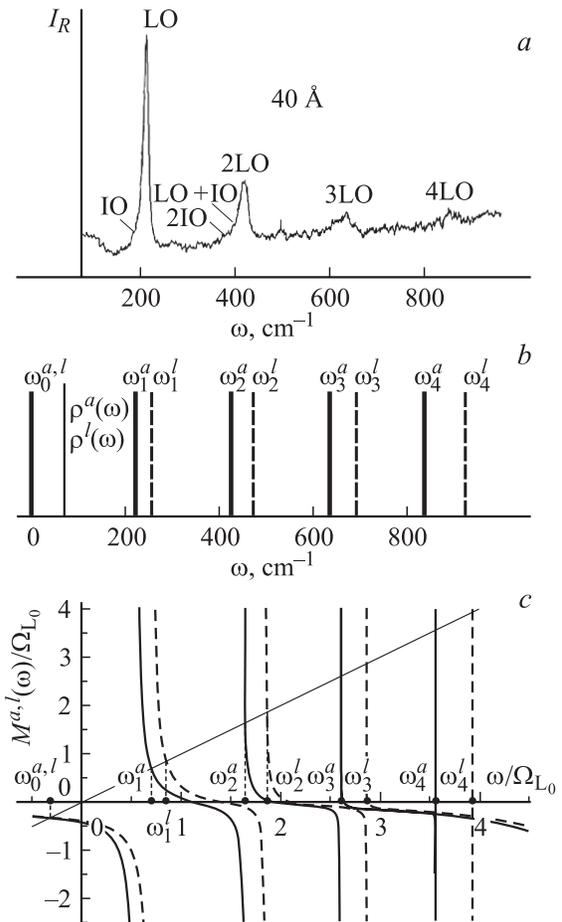


Рис. 7. Зависимость интенсивности рамановского рассеяния I_R (a), ρ^a , ρ^l (b) и M^a , M^l (c) от частоты ω при $r_0 = 40 \text{ \AA}$.

Приведенные соображения могут служить качественным объяснением экспериментального спектра рамановского рассеяния [3]. Действительно, отсутствие каких-либо I -фононных повторений на экспериментальных спектрах КТ CdSe в стекле, приведенных на рис. 6, a, может означать, что исследованные КТ имели форму, достаточно близкую к сферической. Наличие же слабого, но отличного от фона первого I -фононного повторения в образце со спектром, приведенным на рис. 7, a может означать, что в этом случае КТ имели форму, отличающуюся от сферической.

Последовательную теорию электрон- и экситон-фононного взаимодействия и электронного спектра рамановского рассеяния в КТ несферической формы, внедренных во внешнюю среду, предполагается представить в следующих работах.

Список литературы

- [1] N. Mori, T. Ando. Phys. Rev. B **40**, 3, 6175 (1989).
- [2] G.Q. Hai, F.M. Peeters, J.T. Devreese, L. Wendler. Phys. Rev. B **48**, 16, 12 016 (1993).

- [3] M. Klein, F. Hache, D. Richard, C. Flytzanis. *Phys. Rev. B* **42**, 17, 11 123 (1990).
- [4] R.M. Crus, S.W. Teitsworth, M.A. Strocia. *Phys. Rev. B* **52**, 12, 1489 (1995).
- [5] J.S. Marini, B. Stebe, E. Kartheuser. *Phys. Rev. B* **50**, 19, 14 302 (1994).
- [6] Н.В. Ткач. *ФТТ* **39**, 6, 1109 (1997).
- [7] M. Tkach, V. Holovatsky, O. Voitsekhivska, M. Min'kova. *Phys. Stat. Sol. B* **203**, 2, 373 (1997).
- [8] K. Oshiro, K. Akai, M. Matsuura. *Phys. Rev. B* **58**, 12, 7986 (1998).
- [9] M. Tkach, V. Holovatsky, O. Voitsehivska, M. Mykhalyova, R. Fartushynsky. *Phys. Stat. Sol. B* **225**, 2, 331 (2001).
- [10] Ю.А. Фирсов. *Полярны. Наука, М.* (1975). 424 с.
- [11] O. Madelung. *Semiconductors. Basic Data*. 2nd revised ed. Springer, Berlin. (1996). P. 247.
- [12] А.А. Абрикосов, Л.П. Горьков, И.Е. Дзялошинский. *Методы квантовой теории поля в статической физике. Физматгиз, М.* (1962). 442 с.
- [13] E.P. Pokatilov, S.N. Klimin, V.M. Fomin, J.T. Devreese, F.W. Wise. *Phys. Rev. B* **65**, 7, 075 316 (2002).