

Энергетическая структура мультиэкситонов в квантовых проволоках с продольным ограничивающим потенциалом

© Рави Кумар^{1,2}, М.П. Теленков^{1,*}, Ю.А. Митягин¹

¹ Физический институт имени П.Н. Лебедева Российской академии наук, 119991 Москва, Россия

² Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“, 119049 Москва, Россия

* E-mail: maxim_telenkov@mail.ru

Поступила в Редакцию 5 мая 2023 г.

В окончательной редакции 18 мая 2023 г.

Принята к публикации 18 мая 2023 г.

Рассчитаны энергетические спектры многочастичных экситонов в квантовых проволоках с продольным ограничивающим потенциалом, обеспечивающим энергию размерного квантования, сопоставимую с характерной энергией кулоновского взаимодействия носителей заряда. Обнаружено, что при возбуждении одного из носителей заряда, энергия связи мультиэкситона уменьшается на величину, в несколько раз большую, чем энергия размерного квантования.

Ключевые слова: квантовые проволоки с продольным ограничивающим потенциалом, многочастичные экситоны.

DOI: 10.21883/FTP.2023.04.55899.20k

1. Введение

Недавно была разработана технология роста новых квантово-размерных структур — квантовых проволок с градиентом состава вдоль оси их роста, обеспечивающим продольный ограничивающий потенциал [1–5]. Эти системы открывают многообещающие возможности для разработки однофотонных излучателей [6–9].

Особенность этих структур заключается в том, что медленно изменяющийся ограничивающий продольный потенциал приводит к достаточно малым энергиям размерного квантования, при этом обеспечивая достаточно сильную локализацию носителей так, что характерная энергия их кулоновского взаимодействия превышает межуровневое расстояние. Поэтому в таких структурах можно ожидать сильной когерентности носителей заряда и, как следствие, существенной трансформации энергетического спектра многочастичных комплексов вследствие кулоновского взаимодействия носителей — расщепления уровней энергии, изменения порядка уровней и т. п.

Кроме того, в этих структурах энергии размерного квантования тяжелых дырок близки к тепловой энергии kT для гелиевых температур. Поэтому для оптических приложений достаточно важным является вопрос об изменении энергии связи экситонов при возбуждении дырок.

В данной работе выполнен расчет энергетических спектров многочастичных экситонных комплексов в указанных структурах и выявлен ряд их особенностей, связанных с сильной корреляцией носителей заряда.

2. Метод расчета

Мы рассматриваем цилиндрическую квантовую проволоку $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_{x_{\max}}\text{Ga}_{1-x_{\max}}\text{As}$ длиной $2d$ и радиусом R (рис. 1, *a*). Концентрация алюминия x изменяется вдоль оси проволоки симметрично в обе стороны от наименьшего значения x_{\min} в центре проволоки до наибольшего значения x_{\max} на ее концах (рис. 1, *b*).

Расчет энергетического спектра экситонов осуществлялся в параболическом приближении формализма огибающих функций [10]. В рассматриваемой структуре $x_{\max} < 0.45$. В этих структурах края зон хорошо описываются линейной зависимостью от концентрации Al, и, соответственно, изменение концентрации алюминия вдоль оси проволоки приводит к аналогичному изменению продольного потенциала [11]. Кулоновское взаимодействие между носителями учитывается с помощью матричного подхода. В качестве исходного базиса используются волновые функции невзаимодействующих носителей заряда, составляющих рассматриваемый комплекс. Классификация состояний в электронной подсистеме (т. е. при отсутствии дырок) и в экситоне проводилась по максимальному значению модуля коэффициента разложения волновой функции этого состояния по базисным волновым функциям задачи без кулоновского взаимодействия. Энергия связи мультиэкситона определялась как разность его энергии и энергии системы невзаимодействующих носителей заряда, составляющих экситон.

3. Многочастичные эффекты в электронной подсистеме

На рис. 2, *a* приведены спектры системы из двух электронов для структуры с V-образной зависимостью

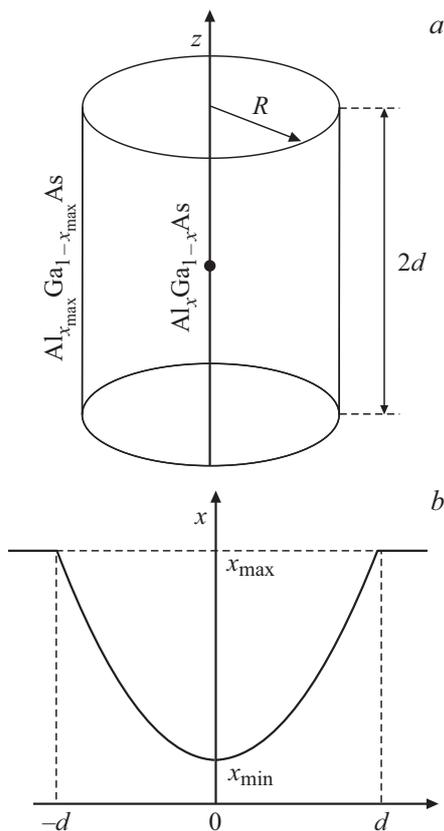


Рис. 1. Схема рассматриваемой структуры (а) и зависимости (b) концентрации Al от координаты вдоль оси квантовой проволоки (оси z).

концентрации алюминия вдоль оси проволоки, приводящей к V-образному продольному потенциалу. В левой части рисунка показан двухэлектронный спектр, рассчитанный без учета взаимодействия между электронами. Энергия отсчитывается от минимального значения дна зоны проводимости в квантовой проволоке. В правой части рисунка приведен спектр с учетом электрон-электронного взаимодействия.

Видно, что электрон-электронное взаимодействие качественно меняет спектр. Во-первых, оно приводит к сильному сдвигу основного состояния „00“, так, что основное состояние становится возбужденным. Следующий уровень в отсутствие электрон-электронного взаимодействия соответствует конфигурации „01“, когда один электрон находится на основном уровне энергии, а другой — на первом возбужденном уровне. Этот уровень является четырехкратно вырожденным — ему соответствует одно синглетное и три триплетных состояния. При включении взаимодействия происходит сильное расщепление на синглетный и триплетный уровни вследствие обменного взаимодействия. Причем это расщепление превышает расстояние между уровнями нулевой задачи.

Четвертый уровень энергии невзаимодействующих электронов соответствует конфигурации „11“, когда оба электрона находятся на первом возбужденном уровне.

При этом энергия этого уровня возрастает, но на величину, меньшую, чем увеличение уровня „00“.

Таким образом, видно, что электрон-электронное взаимодействие приводит к увеличению энергии синглетных состояний (полный спин $S = 0$) и уменьшению энергии триплетных состояний ($S = 1$). Причем эти сдвиги энергии весьма существенны — сопоставимы и даже превышают расстояние между уровнями энергии невзаимодействующих электронов.

Также наблюдается тенденция к уменьшению сдвигов энергии по мере увеличения энергии взаимодействующих электронов. Последнее происходит в соответствии с осцилляторной теоремой — по мере увеличения номера энергетического уровня волновая функция становится более сложной, имеет больше нулей, что приводит к уменьшению матричных элементов кулоновского потенциала.

На рис. 2, b представлен энергетический спектр двух электронов в квантовой проволоке с параболическим потенциалом вдоль оси. Наблюдается поведение, аналогичное случаю V-образного потенциала, но возникает особенность, связанная с эквидистантностью одночастичных уровней энергии.

Эквидистантность в одноэлектронном спектре приводит к дополнительному вырождению в спектре двух невзаимодействующих электронов. Например, одну и ту же энергию имеют конфигурации „11“ и „02“. Кулоновское взаимодействие снимает это вырождение. Поскольку для конфигурации „11“ возможно только синглетное состояние, то данный уровень расщепляется на три — два синглета и один триплет. Также одну и ту же энергию имеют конфигурации „03“ и „12“. Здесь каждой конфигурации отвечает синглетное и триплетное состояние. В результате кулоновское взаимодействие приводит к расщеплению данного уровня на четыре уровня — два синглетных и два триплетных.

4. Экситонные комплексы

На рис. 3 показана зависимость энергии связи экситона в квантовой проволоке с параболическим потенциалом от номера уровня энергии тяжелой дырки. Как видно, энергия связи уменьшается при переходе дырки с основного состояния на возбужденный уровень энергии. Это уменьшение является весьма сильным — более чем в 2 раза превышает расстояние между дырочными уровнями (0.57 мэВ). Дальнейшее изменение энергии связи при увеличении энергии дырки происходит более плавно.

Такое поведение объясняется отличием волновой функции электрона и дырки для основного и возбужденного состояний и, соответственно, распределением заряда. На рис. 4 приведены распределения квадратов модуля волновых функций различных уровней энергии тяжелой дырки вдоль оси z , проходящей через центр проволоки. В основном состоянии волновая функция не имеет нулей, и распределение плотности заряда представляет

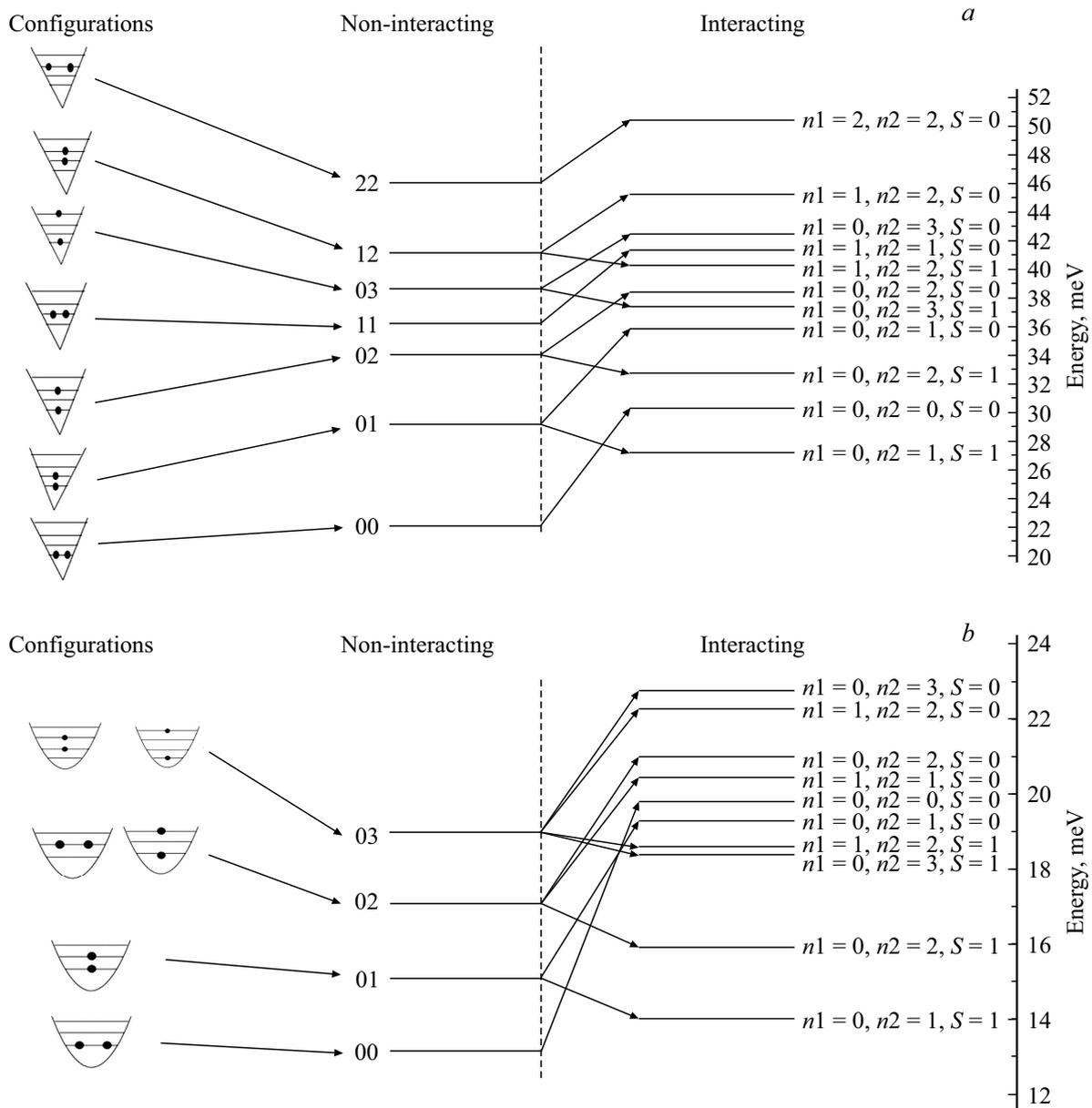


Рис. 2. Энергетический спектр двух электронов в квантовой проволоке $Al_xGa_{1-x}As/Al_{x_{max}}Ga_{1-x_{max}}As$ длиной $2d = 275$ нм и радиусом $R = 10$ нм. Концентрация алюминия x изменяется симметрично от минимального значения $x_{min} = 0.2$ в центре проволоки до максимального значения $x_{max} = 0.4$ на ее концах по линейному (a) и параболическому (b) закону.

собой пик, расположенный в центре ямы по z . В первом возбужденном состоянии волновая функция имеет один ноль, и распределение плотности заряда качественно изменяется, представляя собой два более узких пика, разделенных провалом. Так как электрон остается в основном состоянии, то это приводит к существенному уменьшению матричных элементов кулоновского взаимодействия и, соответственно, к уменьшению энергии связи экситона. При дальнейшем увеличении энергии дырки число нулей волновой функции возрастает, соответственно, возрастает число пиков в распределении ее плотности заряда. Однако это изменение не столь кардинально, как при переходе дырки из основного состояния

на первый возбужденный уровень. Поэтому энергия связи продолжает уменьшаться, но более медленно.

Схожее поведение мы видим в многочастичных экситонах. На рис. 5 представлены уровни энергии триона, состоящего из двух электронов и тяжелой дырки, для конфигураций „00n“, где два электрона находятся на основном (0-ом) уровне энергии, а дырка — на n -ом дырочном уровне. Как видно, в основном состоянии „000“ кулоновское взаимодействие приводит к уменьшению энергии триона, что означает, что притяжение между электронами и дыркой преобладает над отталкиванием между двумя электронами. При возбуждении дырки на первый уровень, т.е. в конфигурации „001“, этот

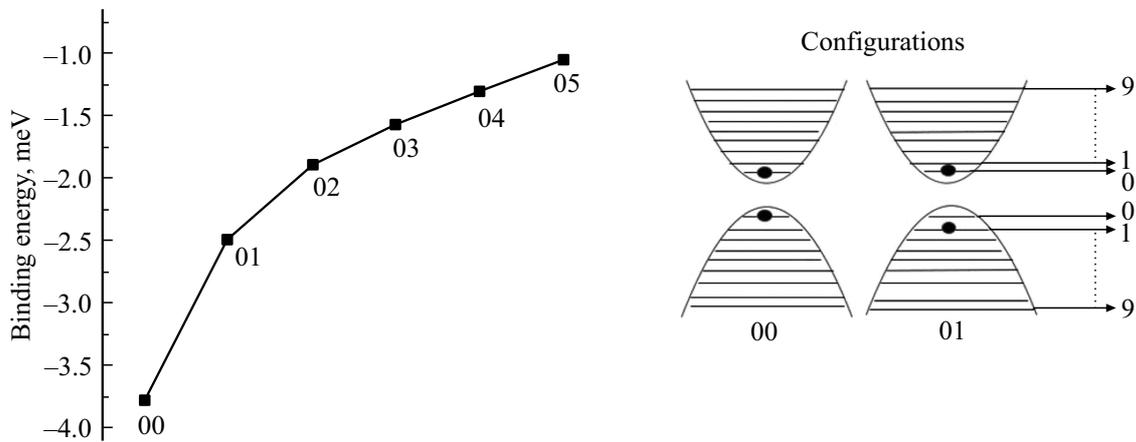


Рис. 3. Энергия связи экситона с тяжелой дыркой для квантовой проволоки $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_{x_{\max}}\text{Ga}_{1-x_{\max}}\text{As}$ длиной $2d = 275$ нм и радиусом $R = 10$ нм с параболическим изменением концентрации алюминия x от минимального значения $x_{\min} = 0.2$ в центре проволоки до максимального значения $x_{\max} = 0.4$ на ее концах. Показаны значения энергии связи для конфигураций „0*n*“, в которых электрон находится на основном уровне энергии ($n = 0$), а дырка — на n -ом дырочном уровне.

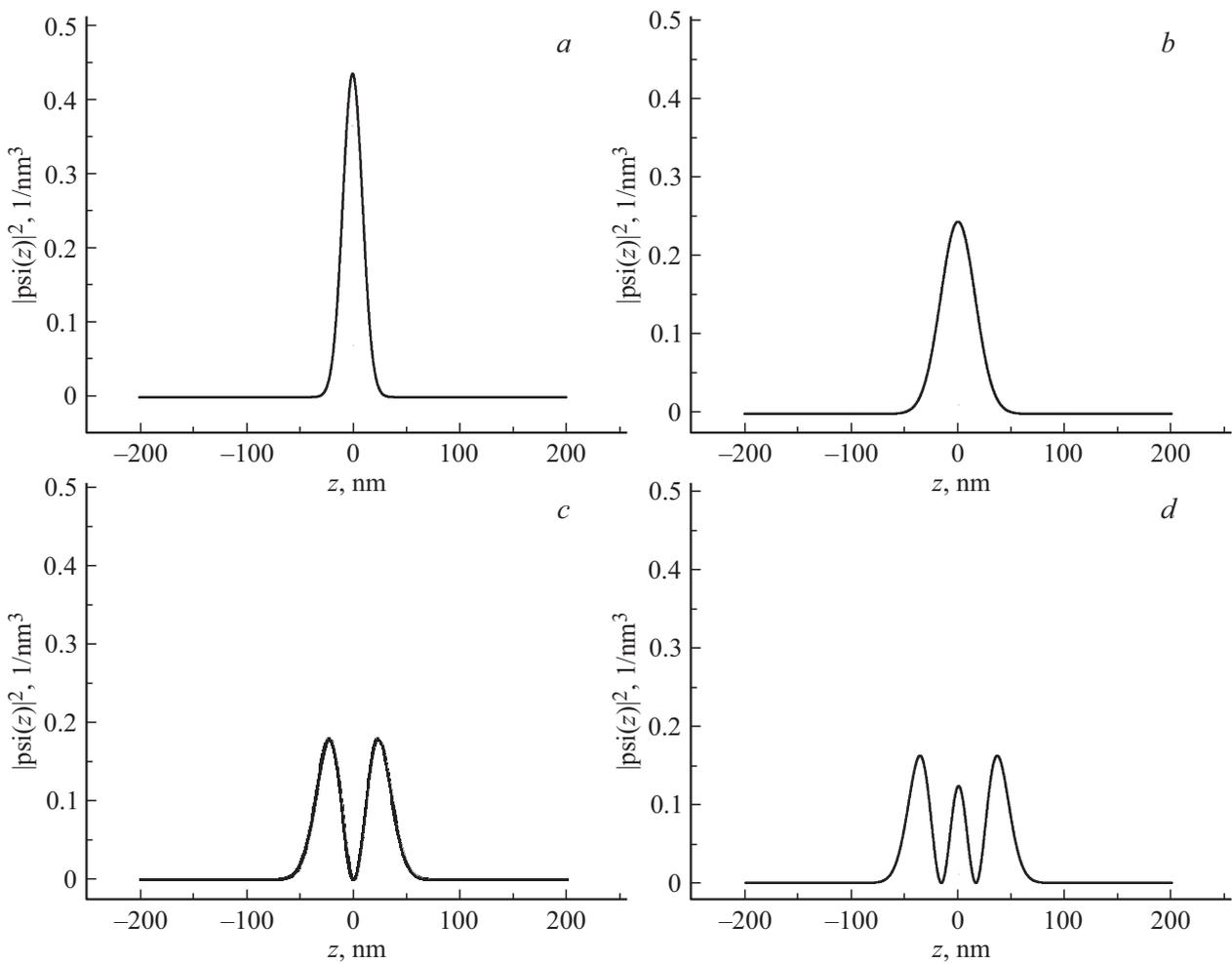


Рис. 4. Распределение квадрата модуля одночастичной волновой функции вдоль оси симметрии проволоки (оси z): a — для электрона в основном состоянии ($n = 0$); b — для тяжелой дырки в основном состоянии; c — для тяжелой дырки на первом возбужденном уровне ($n = 1$); d — для тяжелой дырки на втором возбужденном уровне энергии ($n = 2$). Начало координат ($z = 0$) находится в центре проволоки.

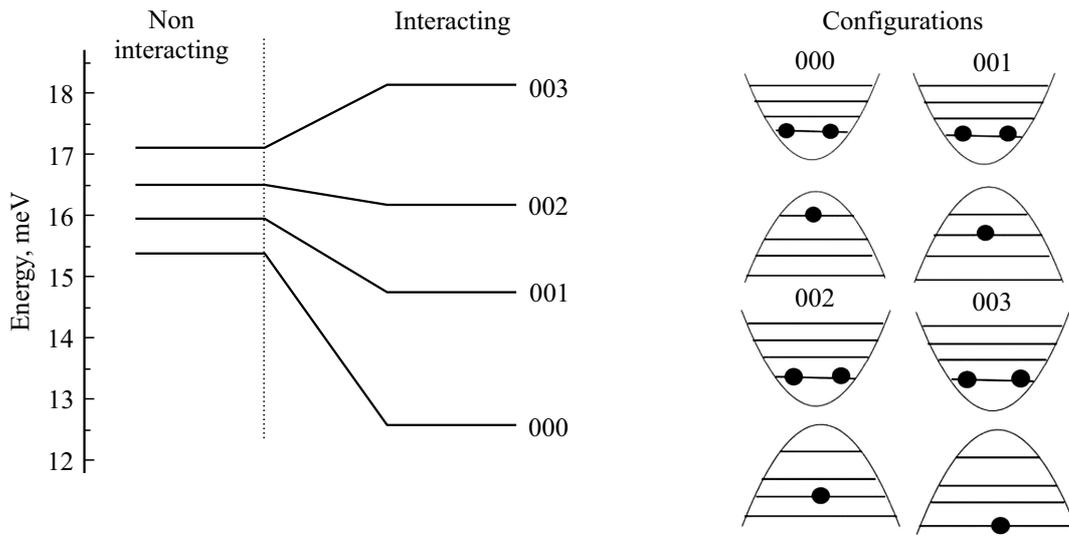


Рис. 5. Уровни энергии триона, состоящего из двух электронов и тяжелой дырки, в квантовой проволоке с продольным параболическим потенциалом. Показаны уровни энергии для конфигураций „00*n*“, в которых оба электрона находятся на основном (0-ом), а дырка — на *n*-ом уровне энергии.

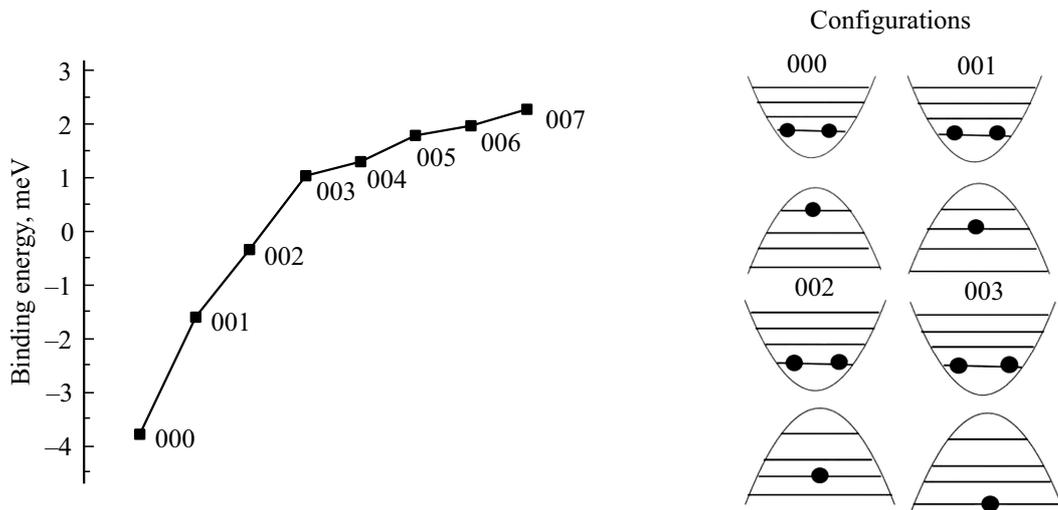


Рис. 6. Энергия связи триона, состоящего из двух электронов и тяжелой дырки, в квантовой проволоке с продольным параболическим потенциалом для конфигураций „00*n*“, в которых оба электрона находятся на основном (0-ом), а дырка — на *n*-ом уровне энергии.

сдвиг резко уменьшается. Другими словами, происходит сильное уменьшение энергии связи триона (рис. 6), почти в 4 раза превышающее расстояние между дырочными уровнями. При возбуждении дырки на более высокие уровни изменение энергии связи происходит более плавно.

Кроме того, здесь наблюдается переход от ситуации с преобладанием притяжения между электронами и дыркой к ситуации, когда преобладает отталкивание между двумя электронами. Как видно, если дырка находится ниже третьего возбужденного уровня, то кулоновское взаимодействие приводит к уменьшению энергии экситона (энергия связи отрицательна), т.е. притяжение преобладает над отталкиванием. Начиная с третьего воз-

бужденного уровня, кулоновское взаимодействие приводит к увеличению энергии системы, т.е. отталкивание двух электронов преобладает над притяжением между электронами и дыркой.

Аналогичные общие тенденции поведения наблюдаются и в четырехчастичном экситоне, состоящем из двух электронов и двух тяжелых дырок. На рис. 7 показаны уровни энергии такого мультиэкситона в квантовой проволоке с параболическим потенциалом, соответствующие конфигурациям „00*nm*“, когда оба электрона находятся на основном уровне энергии, а обе дырки — на *n*-ом дырочном уровне. Значения энергии связи такого четырехчастичного экситона приведены на рис. 8. Видно, что при переходе дырок на первый возбужденный уро-

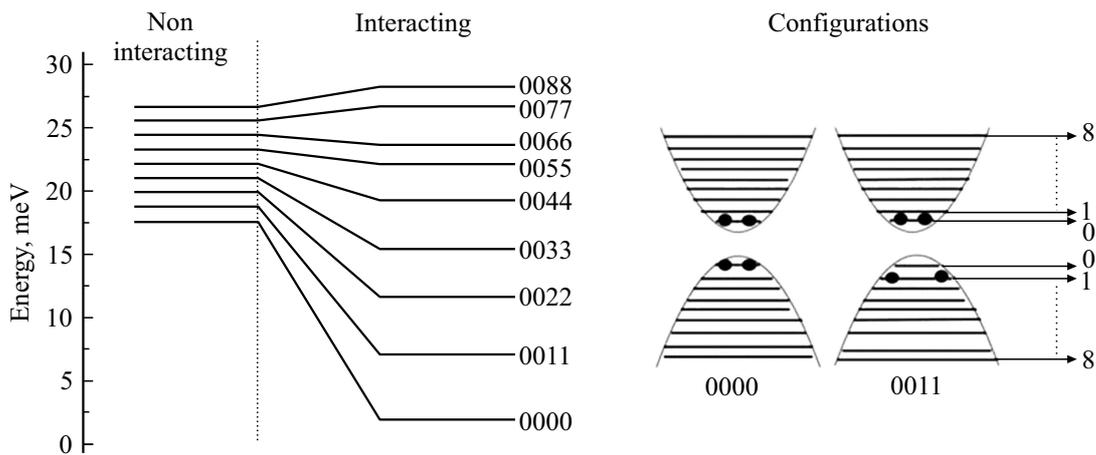


Рис. 7. Уровни энергии четырехчастичного экситона, состоящего из двух электронов и двух тяжелых дырок. Показаны уровни энергии конфигураций „00 n “, в которых оба электрона находятся в основном состоянии ($n = 0$), а обе дырки — на n -ом дырочном уровне энергии.

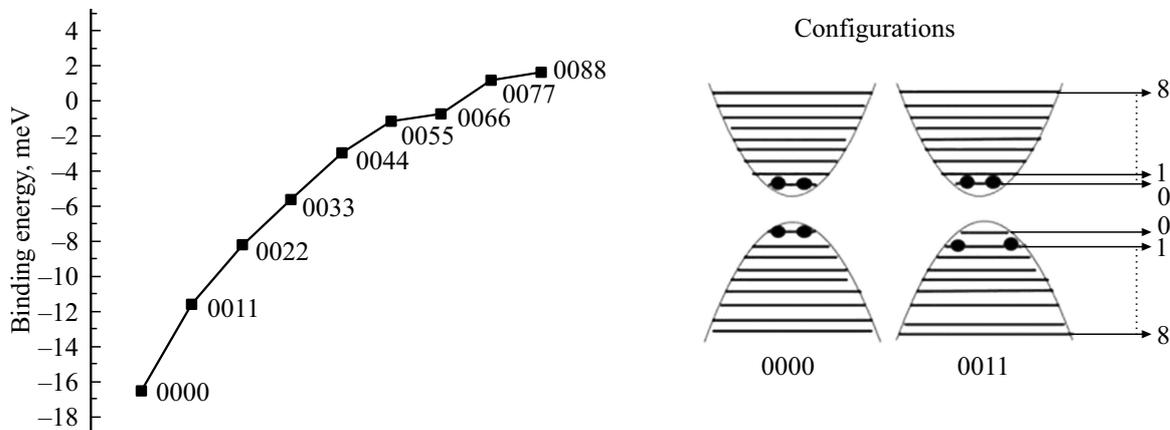


Рис. 8. Энергия связи четырехчастичного экситона, состоящего из двух электронов и двух тяжелых дырок, для конфигураций „00 n “, в которых оба электрона находятся в основном состоянии ($n = 0$), а обе дырки — на n -ом дырочном уровне энергии.

вень происходит существенное снижение энергии связи, а при возбуждении дырок на более высокие уровни энергия связи изменяется более слабо. Также виден переход от конфигураций с преобладающим притяжением к конфигурациям с преобладающим отталкиванием.

5. Сопоставление с данными эксперимента

Нами были рассчитаны энергии рекомбинации четырехчастичных экситонов для структуры, экспериментально исследованной в работе [12], с V-образным продольным потенциалом. Схема рекомбинации приведена на рис. 9, *a*. Сначала рекомбинирует одна электрон-дырочная пара ($2x \rightarrow x$), затем другая ($x \rightarrow 0$). В спектре фотолюминесценции этим двум стадиям должны соответствовать две линии, причем линия, соответствующая переходу $2x \rightarrow x$, должна наблюдаться при меньших частотах, чем линия, обусловленная переходом

$x \rightarrow 0$. Соответствующий экспериментальный спектр фотолюминесценции, взятый из работы [12], приведен на рис. 9, *b*. Как видно, линия $2X$, соответствующая переходу $2x \rightarrow x$, сдвинута относительно линии X ($x \rightarrow 0$) в сторону меньших энергий на величину ~ 7 мэВ. Рассчитанное нами положение линии $2X$ также сдвинуто относительно линии X в сторону меньших энергий, при этом величина сдвига составляет 4.58 мэВ, что достаточно близко к экспериментальному значению.

6. Заключение

Рассчитаны энергетические спектры комплексов носителей заряда в квантовых проволоках с ограничивающим продольным потенциалом, обеспечивающим малые энергии размерного квантования носителей заряда и одновременно с этим сильное их кулоновское взаимодействие. При этом характерная энергия кулоновского взаимодействия превышает межуровневое расстояние в спектре носителей.

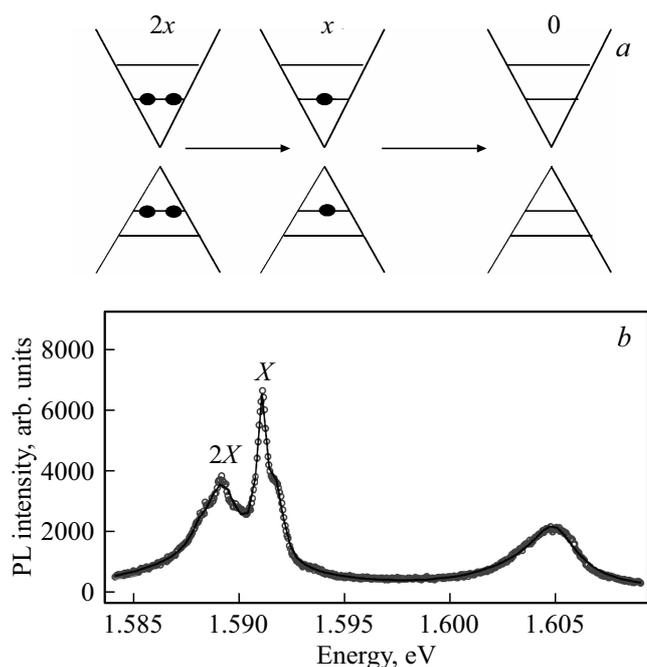


Рис. 9. *a* — схема рекомбинации четырехчастичного экситона, состоящего из двух электронов и двух дырок. *b* — измеренный в работе [12] спектр фотолуминесценции квантовой проволоки с V-образным потенциалом. Данные взяты из работы [12] с разрешения авторов. Параметры структуры указаны в подписи к рис. 2.

Обнаружено, что при переходе одного из носителей заряда на возбужденный уровень существенно падает энергия связи мультиэкситона — на величину, в несколько раз превышающую энергию размерного квантования. Данный эффект обусловлен изменением степени локализации носителя заряда в возбужденном состоянии.

Проведено сопоставление рассчитанных значений энергии связи экситона с измеренными экспериментально. Получено хорошее количественное согласие теоретических расчетов с экспериментальными данными.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M. Lazarev, J. Szeszko, A. Rudra, K.F. Karlsson, E. Kapon. *J. Cryst. Growth*, **414**, 196 (2015). DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2014.11.008>

- [2] Q. Zhu, J.D. Ganiere, Z.B. He, K.F. Karlsson, M. Byszewski, E. Pelucchi, A. Rudra, E. Kapon. *Phys. Rev. B*, **82**, 165315 (2010). DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.165315>
- [3] V. Troncale, K.F. Karlsson, E. Pelucchi, A. Rudra, E. Kapon. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 241909 (2007). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.2820693>
- [4] J. He, H.J. Krenner, C. Pryor, J.P. Zhang, Y. Wu, D.G. Allen, C.M. Morris, M.S. Sherwin, P.M. Petroff. *Nano Lett.*, **7** (3) 802 (2007). DOI: <https://doi.org/10.1021/nl070132r>
- [5] G. Biasiol, E. Kapon. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 2962 (1998). DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.2962>
- [6] Q. Zhu, E. Pelucchi, S. Dalessi, K. Leifer, M.-A. Dupertuis, E. Kapon. *Nano Lett.*, **6** (5) 1036 (2006). DOI: <https://doi.org/10.1021/NL060066D>
- [7] M.H. Baier, E. Pelucchi, E. Kapon, S. Varoutsis, M. Gallart, I. Robert-Philip I. Abram. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 648 (2004). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.1643533>
- [8] Y. Arakawa, M.J. Holmes. *Appl. Phys. Rev.*, **7**, 021309 (2020). DOI: <https://doi.org/10.1063/5.0010193>
- [9] T. Miyazawa, K. Takemoto, Y. Nambu, S. Miki, T. Yamashita, H. Terai, M. Fujiwara, M. Sasaki, Y. Sakuma, M. Takatsu, T. Yamamoto, Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.*, **109** (13), 132106 (2016). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.4961888>
- [10] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* (Wiley-Interscience, 1998).
- [11] I. Vurgaftmana, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. *J. Appl. Phys.*, **89** (11), 5815 (2001). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.1368156>
- [12] J. Szeszko, V.V. Belykh, A. Rudra, B. Dwir, N.N. Sibeldin, E. Kapon. *Phys. Rev. B*, **91**, 245304 (2015). DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.245304>

Редактор А.Н. Смирнов

Energy structure of multiexcitons in quantum wires with a longitudinal confining potential

Ravi Kumar^{1,2}, M.P. Telenkov¹, Yu.A. Mityagin¹

¹ Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, 119991 Moscow, Russia

² The National University of Science and Technology „MISIS“, 119049 Moscow, Russia

Abstract The energy spectra of many-particle excitons in quantum wires with a longitudinal confining potential providing a size-quantization energy comparable with the characteristic energy of the Coulomb interaction of charge carriers are calculated. It has been found that, upon excitation of one of the charge carriers, the binding energy of a multiexciton decreases by a value several times greater than the quantum confinement energy.

Продолжение публикации материалов Симпозиума см. в No 5/23