СПЕКТРИ ТА ХВИЛЬОВІ ФУНКЦІЇ ЕЛЕКТРОНА, ДІРКИ ТА ЕКСИТОНА У ПРОСТІЙ ВІДКРИТІЙ СФЕРИЧНІЙ НАНОГЕТЕРОСИСТЕМІ

М. В. Ткач, Ю. О. Сегі, Р. Б. Фартушинський
*Чернівецький національний університет ім. Ю. Федьковича,
вул. Коцюбинського, 2, Чернівці, 58012, Україна*
(Отримано 30 березня 2005 р.; в остаточному вигляді — 31 березня 2006 р.)

У наближенні прямокутних потенціалів та ефективних мас розроблено теорію квазістаціонарного спектра та часів життя електрона, дірки та екситона у простій відкритій сферичній напівпровідниковій наносистемі. На прикладі наносистеми $\text{HgS}/\text{CdS}/\text{HgS}$ розраховано та проаналізовано особливості енергетичних спектрів у широкому діапазоні енергій та відповідних часів життя екситонів. Показано, що коли розміри наносистеми не перевищують двох-трьох десятків постійних ґратки, то залежність від радіуса квантової точки низькоенергетичної частини екситонного спектра й відповідних часів життя подібна до електронного, а високоенергетичні екситонні стани з різними значеннями головного квантового числа електрона (n_e) мають тенденцію до “квазивиродження” часів життя.

Ключові слова: сферична квантова точка, екситон, електрон, дірка.

PACS number(s): 68.65.Hb, 71.35.-y

I. ВСТУП

Фізичні явища в закритих наногетеросистемах (КТ, КД, КЯ) вивчають уже тривалий час, і тому теорія спектрів квазічастинок і їх взаємодії в таких системах досить добре розвинута [1, 2]. Стосовно теорії квазічастинок у відкритих наносистемах, то вона перебуває на початковій стадії [3], хоча такі системи є цікавішими, бо в них квазічастинки мають додатковий канал релаксації енергії через можливість проникнення з квантової ями крізь потенціальний бар'єр на безмежну відстань, що, своєю чергою, дає змогу впливати на час життя у квазістаціонарних станах. Отже, підбором геометричних розмірів наносистем можна регулювати тривалість переходу збуджених систем в основний стан, а оскільки часи життя у квазістаціонарних станах можуть сягати пікосекунд, фемтосекунд і менше, то такі системи є природною базою для безінерційних електронних приладів нового покоління. Це викликає безсумнівний практичний інтерес.

Відкриті наносистеми не менш цікаві й з теоретичного погляду. Адже для них існують принципи, не розв'язані досі проблеми. Зокрема, наскільки нам відомо, не розв'язувалася задача про перенормування електронного й екситонного спектрів взаємодією цих квазічастинок з фононами у відкритих системах. Математичний апарат (наприклад, метод функцій Гріна), добре розроблений для систем зі стаціонарними станами [1], вимагає обережної модифікації для систем із квазістаціонарними станами, оскільки в цьому разі енергії невзаємодіючих квазічастинок уже є не дійсними, а комплексними, з істотно відмінною від нуля уявною частиною.

Теорія електрон–і екситон–фононної взаємодії в закритих наносистемах [4] показала, що в них є істотним фактором міжрівнева (міжзонна) взаємодія через фонони, а тому така ж ситуація є очікуваною і для відкритих систем. Звідси виникає необхідність знати спектр і хвильові функції всіх станів або хоча б до-

статню їх кількість для невзаємодіючих із коливною підсистемою електронів, дірок, екситонів.

Метою цієї роботи є отримання та аналіз спектра, часів життя та хвильових функцій екситонів у найпростішій відкритій сферичній наногетеросистемі з тим, щоб на прикладі конкретної наносистеми ($\text{HgS}/\text{CdS}/\text{HgS}$) вивчити їхню поведінку, з одного боку, і потім використати як базу для побудови теорії взаємодії з фононами — з другого. Теорію спектрів і часів життя електронів і дірок у досліджуваній наносистемі розвивали в роботі [1], тому, зосереджуючи головну увагу на екситонній задачі, доведеться частково використати результати попередніх праць.

II. ГАМІЛЬТОНІЯН, СПЕКТР, ЧАСИ ЖИТТЯ ТА ХВИЛЬОВІ ФУНКЦІЇ ЕКСИТОНА В НАНОГЕТЕРОСИСТЕМІ

Будемо шукати розв'язок задачі про спектр екситонів у відкритій сферичній наногетеросистемі, що складається з ядра-ями (0) та шару-бар'єра (1), які вміщені в зовнішнє середовище (2).

Уважаємо відомими потенціальні енергії електрона, дірки та ефективні маси цих квазічастинок такими, що залежать лише від відстані від центра наносистеми

$$U_{e,h}(r) = \begin{cases} 0 & r < r_0, r > r_1 \\ V_{e,h} & r_0 \leq r \leq r_1 \end{cases} \quad (1)$$

$$m_{e,h}(r) = \begin{cases} m_{e,h}^0 & r < r_0, r > r_1 \\ m_{e,h}^1 & r_0 \leq r \leq r_1 \end{cases}.$$

Енергію взаємодії електрона й дірки між собою ви-

значаємо кулонівським потенціалом

$$U_{\text{ex}}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = -\frac{e^2}{\varepsilon(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|}, \quad (2)$$

у якому діелектрична проникливість $\varepsilon(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$ є складною функцією координат обох квазічастинок, оскільки проникливість наносистеми залежить від відстані від її центра

$$\varepsilon(r) = \begin{cases} \epsilon_0 & r < r_0 \\ \epsilon_1 & r_0 \leq r \leq r_1 \\ \epsilon_0 & r > r_1 \end{cases}, \quad (3)$$

де ϵ_0 — діелектричні проникливості ядра й зовнішнього середовища, а ϵ_1 — матеріалу-бар'єра.

Щоб знайти спектр, часи життя та хвильові функції екситона як системи взаємодіючих між собою електрона й дірки, потрібно розв'язати повне рівняння Шредингера

$$i\hbar \frac{d\Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)}{dt} = H(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)\Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \quad (4)$$

з гамільтонієм

$$H = H_0 + U_{\text{ex}}, \quad (5)$$

де

$$H_0(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \sum_{i=e,h} \left(-\frac{\hbar^2}{2} \nabla_i^2 \frac{1}{m_i(\mathbf{r}_i)} \nabla_i + U_i(r_i) \right) \quad (6)$$

— гамільтоніян незважених електрона й дірки в наносистемі, а гамільтоніян взаємодії електрона й дірки задано (2).

Зрозуміло, що через складність гамільтоніана така задача не має точного розв'язку, тому для його знаходження наближеним методом можна використати

S -матричний підхід при розв'язуванні стаціонарного рівняння Шредингера. У такому разі задачу можна переформулювати так.

Якщо розміри ядра наносистеми (r_0) зіставляються з розмірами екситона (a_{ex}) так, що при цьому енергія кулонівської взаємодії є малою порівняно з різницею енергій між сусідніми екситонними станами, то можна застосувати теорію збурень на основі таких міркувань. Досвід розв'язування задач про спектр квазістаціонарних станів відкритих наносистем показує, що енергії резонансних квазістаціонарних станів із великою точністю ($\ll 1\%$) збігаються з величинами енергій тих же квазічастинок у закритих системах з тим же потенціальним бар'єром безмежної товщини. У зв'язку з цим можна вважати, що коли екситон збуджений у ділянці ядрами, то від моменту збудження до виходу екситона за межі наносистеми, тобто за час життя, його енергія у квазістаціонарному стані може бути розрахована як

$$E_{n'l'm'}^{nlm} = E_{g_0} + E_{nlm}^e + E_{n'l'm'}^h + \mathcal{E}_{n'l'm'}^{nlm}, \quad (7)$$

де E_{g_0} — енергія забороненої зони напівпровідникового кристала-ядра, $E_{nlm}^{e,h}$ — відповідні енергії електрона й дірки, розраховані для цієї ж системи в моделі без урахування взаємодії цих квазічастинок між собою, тобто такі, що визначаються розв'язками стаціонарного рівняння Шредингера

$$\begin{aligned} & \left[-\frac{\hbar^2}{2} \nabla_s^2 \frac{1}{m_i(r_i)} \nabla_s + U_s(r_i) \right] \Psi_{nlm}^i(\mathbf{r}_i) \\ & = E_{nlm}^i \Psi_{nlm}^i(\mathbf{r}_i). \end{aligned} \quad (8)$$

Рівняння (8) розв'язані точно методом S -матриці у праці [1], де показано, що хвильові функції є сферично-симетричними

$$\Psi_{nlm}^i(r, \theta, \varphi) = R_{nl}^i(r) Y_{lm}(\theta, \varphi). \quad (9)$$

Тут $Y_{nlm}(\theta, \varphi)$ — сферичні функції,

$$R_{nl}^s(r_i) = \begin{cases} R_0^i(r_i) = k A_l^{i(0)} [h_l^-(kr_i) + h_l^+(kr_i)] & 0 \leq r_i < r_0 \\ R_1^i(r_i) = K A_l^{i(1)} [h_l^-(Kr_i) - S_l^i h_l^+(Kr_i)] & r_0 \leq r_i < r_1 \\ R_2^i(r_i) = \frac{k}{\sqrt{2\pi}} [h_l^-(kr_i) - S_l h_l^+(kr_i)] & r_1 \leq r_i < \infty \end{cases} \quad (10)$$

— радіальні функції, у які входять функції Ханкеля $h_l^\pm(Kr)$, де

$$K_i^2 = \frac{2m_i}{\hbar^2}(E - U_i) = \begin{cases} k^2 & i = 0, 2 \\ -\chi^2 & i = 1 \end{cases}. \quad (11)$$

Коефіцієнти $A_l^{i(0)}$, $A_l^{i(1)}$ та вирази S_l -матриці однозначно знаходимо з граничних умов

$$\left. \begin{aligned} R_l^{(i)}(K_i r_i) &= R_l^{(i+1)}(K_{i+1} r_i) \\ \frac{1}{m_i} \frac{dR_l^{(i)}(K_i r)}{dr} \Big|_{r=r_i} &= \frac{1}{m_{i+1}} \frac{dR_l^{(i+1)}(K_{i+1} r)}{dr} \Big|_{r=r_i} \end{aligned} \right\}, \quad (12)$$

а полюси S_l -матриць визначають енергетичний спектр резонансних станів $E_{nlm}^{(i)}$ і часи життя $\tau_{nlm}^{(i)}$.

Енергію електрон-діркової взаємодії $\mathcal{E}_{n'l'm'}^{nlm}$ у нижній частині спектра можна розрахувати за теорією збурень, але при цьому неможливо користуватися безпосередньо радіальними хвильовими функціями (10), оскільки вони не локалізовані в ділянці квантової точки, а поширюються до безмежності. У зв'язку з цим та беручи до уваги, що протягом часу життя екситона спектри і хвильові функції його електрона і дірки близькі до тих, що виникають у закритій системі, розрахунок $\mathcal{E}_{n'l'm'}^{nlm}$ можна здійснювати на екситонних хвильових функціях, які визначаються так:

$$\begin{aligned} \Psi_{n'l'm'}^{nlm}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) &= \tilde{\Psi}_{nlm}^e(\mathbf{r}_e) \tilde{\Psi}_{n'l'm'}^h(\mathbf{r}_h) = \\ &= \tilde{R}_{nl}(r_e) \tilde{R}_{n'l'}(r_h) Y_{lm}(\theta_e, \varphi_e) Y_{l'm'}(\theta_h, \varphi_h), \end{aligned} \quad (13)$$

де

$$\mathcal{E}_{n'l'm'}^{nlm} = -\frac{4\pi e^2}{\epsilon_0} \sum_{l_1=0}^{\infty} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \frac{r_e^2 r_h^2 dr_e dr_h}{2l_1 + 1} \Phi(r_e, r_h) |R_{nl}(r_e)|^2 |R_{n'l'}(r_h)|^2 \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} (Y_{l_1 m_1}^*)_{l'm'}^{l'm'} (Y_{l_1 m_1})_{lm}^{lm}. \quad (18)$$

Тут $(Y_{l_1 m_1})_{lm}^{lm}$ — частковий випадок відомих інтегралів від добутку трьох сферичних функцій [5].

У цьому ж наближенні слабо взаємодіючих електронів і дірок час життя екситона знаходимо з міркувань, що півширина енергетичної смуги є адитивною величиною, а тому

$$(\tau_{n'l'm'}^{nlm})^{-1} = \tau_{nlm}^{-1} + \tau_{n'l'm'}^{-1}. \quad (19)$$

Наведені аналітичні результати дають розв'язок задачі про нижню частину спектра, часів життя та хвильових функцій екситонів у простій відкритій сферичній наносистемі, але лише при умові сумірності радіуса екситона з величиною радіуса квантової точ-

$$\tilde{R}_{nl}(r) = \lim_{\Delta_1 \rightarrow \infty} R_{nl}(r). \quad (14)$$

Отже, енергію взаємодії між електроном і діркою тепер можна знайти у вигляді

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{n'l'm'}^{nlm} &= - \iint \frac{e^2 d^3 \mathbf{r}_e d^3 \mathbf{r}_h}{\epsilon(r_e, r_h) |\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \\ &\times |\Psi_{nlm}(\mathbf{r}_e)|^2 |\Psi_{n'l'm'}(\mathbf{r}_h)|^2. \end{aligned} \quad (15)$$

Скориставшись тим, що справедливий розклад [5, 6]

$$\begin{aligned} \frac{1}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} &= \sum_{l_1=0}^{\infty} \frac{4\pi}{2l_1 + 1} \Phi_{l_1}(r_e, r_h) \\ &\times \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} Y_{l_1 m_1}^*(\theta_e, \varphi_e) Y_{l_1 m_1}(\theta_h, \varphi_h), \end{aligned} \quad (16)$$

де

$$\Phi_{l_1}(r_e, r_h) = \begin{cases} \frac{1}{r_h} \left(\frac{r_e}{r_h} \right)^{l_1}, & r_e \leq r_h \\ \frac{1}{r_e} \left(\frac{r_h}{r_e} \right)^{l_1}, & r_h \leq r_e \end{cases}, \quad (17)$$

та враховуючи, що у станах, які відповідають нижній частині спектрів електрона й дірки, обидві квазічастинки, в основному, за час свого перебування в наносистемі знаходяться в матеріалі-ямі, покладемо $\epsilon(r_e, r_h) \simeq \epsilon_0$ і зведемо (15) до зручного для обчислень вигляду

ки. У протилежному разі потрібно розглядати інший граничний випадок, а саме, що екситон є однією квазічастинкою з масою, яке дорівнює сумі мас електрона й дірки у відповідних середовищах, а тому для нього справедливою є теорія, розвинута для окремої квазічастинки у простій наносистемі [2].

III. АНАЛІЗ СПЕКТРА Й ЧАСІВ ЖИТТЯ ЕКСИТОНА У ВІДКРИТІЙ НАНОСИСТЕМІ HgS/CdS/HgS

Розрахунок спектра й часів життя екситонів виконано згідно з наведеною теорією для відкритої сферичної наногетеросистеми HgS/CdS/HgS, параметри

якої [1] добре задовольняють умови застосовності розвинутої теорії. Докладний аналіз залежності електронного й діркового спектрів цієї наносистеми від її геометричних розмірів для кількох початкових значень квантових чисел n і l здійснено в цитованій пра-

ці. Тому тут ми обмежимося лише аналізом властивостей $E_{nl}^{e,h}$ і $\tau_{nl}^{e,h}$ уже в достатньо широкому спектрі значень n і l , які охоплюють головні особливості цих величин, а потім детально зупинимось на геометричних залежностях екситонного спектра й часів життя.

Рис. 1. Залежність E_{nl}^e та $\lg \tau_{nl}^e$ від квантових чисел (n, l) при $\Delta = 4, 8 a_{CdS}$, $r_0 = 30 a_{HgS}$. • — підбар'єрні, ○ — надбар'єрні стани.

На рис. 1 наведено результати розрахунку електронного спектра та часу життя при двох значеннях товщини шару-бар'єра в широких інтервалах значень квантових чисел n і l . З рис. 1 добре видно основні властивості E_{nl}^e , τ_{nl}^e . Вони такі.

Зі збільшенням величини обох квантових чисел n , l енергії електронів (дірок) у квазістаціонарних станах зростають, а часи життя зменшуються незалежно від розмірів ям і бар'єрів. При цьому залежність енергій обох квазічастинок плавна, слабобквадратична (майже лінійна) як у підбар'єрній, так і в надбар'єрній ділянках енергій. У підбар'єрній ділянці спектр нечутливий до товщини бар'єра, а в надбар'єрній — він зміщується в ділянку менших енергій зі збільшенням товщини бар'єра.

З рис. 1 видно цікаві особливості в залежностях енергій та часів життя від обох квантових чисел (n, l) . Так в околі енергій порядку висоти потенціального бар'єра залежність E_{nl}^e від nl є плавною, а в залежності $\lg \tau_{nl}^e$ спостерігаємо тим більший перепад, чим більша товщина бар'єра й величина ефективної маси квазічастинки. Отже, відзначивши ділянку переходу в залежності τ_{nl}^e від l при фіксованому значенні n і визначивши відповідне значення E_{nl} , можна отримати оцінку величини енергії потенціального бар'єра, якщо

вона невідома.

На рис. 2 показано розраховану залежність енергії взаємодії екситонних електрона й дірки ($\mathcal{E}_{n_h l_h}^{n_e l_e}$) від квантових чисел у кількох станах. Як видно, ця залежність є не простою, бо зі зміною l_e , l_h при фіксованих значеннях n_e, n_h , величина $\mathcal{E}_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ може як збільшуватися, так і зменшуватися, хоча сама величина $\mathcal{E}_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ при цьому суттєво не змінюється (перебуває в межах 5–8 meV).

На рис. 3–4 наведено розраховані залежності енергій екситонних станів $E_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ та часів життя $\tau_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ від розмірів ядра (r_0) при фіксованих значеннях товщини (Δ) шару-бар'єра. Для того, щоб виявити особливості $E_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ і $\tau_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ при малих і великих значеннях квантових чисел (а вони різні), наведено по два рисунки, з яких ці особливості добре видно.

Зі всіх цих рисунків видно, що незалежно від величин $n_{e,h}$ і $l_{e,h}$ в ділянці високих значень екситонних енергій спостерігаємо антикросинг, а в ділянці малих енергій — плавне зменшення енергій зі збільшенням радіуса (r_0) КЯ. Цей антикросинг є проявом електронного чи діркового аналога, причини якого були докладно аналізовані в працях [5, 6] (це прояви наявних у наносистемі двох складових: ядра-ями і шару-бар'єра).

Рис. 2. Залежність енергії взаємодії екситонних електрона й дірки від квантових чисел у кількох станах.

 Рис. 3. Залежність $E_{10}^{n_{\ell}^e, n_{\ell}^h}$, $E_{11}^{n_{\ell}^e, n_{\ell}^h}$ та $\tau_{10}^{n_{\ell}^e, n_{\ell}^h}$, $\tau_{11}^{n_{\ell}^e, n_{\ell}^h}$ від r_0 при $\Delta = 6a_{\text{CdS}}$ і $\ell = 0, 1, 2$.

Рис. 4. Залежність $E_{40}^{n_e l_e}$, $E_{41}^{n_e l_e}$ та $\tau_{40}^{n_e l_e}$, $\tau_{41}^{n_e l_e}$ від r_0 при $\Delta = 6a_{\text{CdS}}$ і $l = 0, 1, 2$.

Залежності часів життя від r_0 суттєво відрізняються у двох випадках, коли або n_e , або n_h малі (рис. 3), коли обоє з цих чисел досить великі (рис. 4). Хоча в околі антикросингів криві $\tau_{n_h l_h}^{n_e l_e}$ завжди мають максимумами, але якщо при малих значеннях одного із квантових чисел (n_e чи n_h) піки на кривих не збігаються (рис. 3), то при великих значеннях n_e чи n_h спостерігаємо ефект поступового збігу часів життя у станах з

меншими числами n_e зі станами з більшими значеннями n_e при однакових l зі збільшенням r_0 (рис. 4). Отже, при достатньо великих значеннях квантового числа n_h часи життя екситонів у ділянках антикросингу збігаються, тобто виникає своєрідний ефект “квазівиродження часів життя” для різних n_e при фіксованих значеннях l_e .

- [1] М. В. Ткач, Я. М. Березовський, Укр. фіз. журн. **48**, 75 (2003).
- [2] М. Ткач, *Квазічастинки у наногетеросистемах. Квантові точки і дроти* (Рута, Чернівці, 2003).
- [3] М. V. Tkach, V. A. Holovats'ky, Y. M. Berezovs'ky, O. M. Makhnats', O. D. Val', in *Proceedings International Conference on Advanced Optoelectronics and Lasers*, **1**

- (2003), p. 8.
- [4] J. S. Marini, B. Stebe, E. Kartheuser, Phys. Rev. B **50**, 14302 (1994).
- [5] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика* (Физматгиз, Москва, 1963).
- [6] І. О. Вакарчук, *Квантова механіка* (Львів: ЛДУ ім. І. Франка, 1998).

ELECTRON, HOLE AND EXCITON SPECTRA AND WAVE FUNCTIONS IN SINGLE OPENED SPHERICAL NANOHETEROSYSTEM

M. V. Tkach, Ju. O. Seti, R. B. Fartushynsky
Chernivtsi National University, Department for Theoretical Physics,
2 Kotsiubynsky St., Chernivtsi, UA-58012, Ukraine
e-mail: theorphys@chnu.cv.ua

The theory of electron, hole and exciton quasistationary spectra and lifetimes is established in the framework of rectangular potential wells and effective mass approximation for a single spherical semiconductor nanosystem. For the nanosystem HgS/CdS/HgS there have been performed the calculations and analysis of the peculiarities of energy spectra in the wide range of energies and respective lifetimes of excitons. It is shown that when the sizes of the nanosystem are not bigger than twenty–thirty lattice constants, a dependence of the low energy part of exciton spectra and lifetimes on the radius of quantum dot is similar for the different quantum numbers of the electron (n_e) having a tendency to the “quasidegeneration” of lifetimes.