

Увеличение радиационного времени жизни экситонов Ванье–Мотта в полупроводниковых нанокластерах

© В.А. Кукушкин*+†

* Институт прикладной физики Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

† Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 23 мая 2014 г. Принята к печати 15 июня 2014 г.)

Цель данной работы — расчет радиационного времени жизни экситонов Ванье–Мотта в больших (по сравнению с радиусом экситона) трехмерных потенциальных ямах, образованных нанокластерами прямозонных узкозонных полупроводников в широкозонных полупроводниках. Вычисления выполнены для случая гетеросистемы InAs/GaAs. Показано, что при уменьшении размеров нанокластера до величин порядка радиуса экситона радиационное время жизни последнего увеличивается в несколько раз по сравнению с его значением в однородном полупроводнике. Указанное увеличение оказывается более ярко выраженным при низких температурах. Таким образом, установлено, что помещение экситонов Ванье–Мотта в прямозонные полупроводниковые нанокластеры с размерами порядка их радиуса может быть использовано для значительного увеличения их радиационного времени жизни.

1. Введение

Экситоны играют важную роль в объяснении оптических свойств полупроводников и расчете полупроводниковых оптоэлектронных устройств. В полупроводниках наиболее часто наблюдаются экситоны Ванье–Мотта [1]. Они, как известно, являются экситонами большого радиуса, в которых связанные электрон и дырка находятся в различных узлах кристаллической решетки или в пространстве между ними.

Одной из основных характеристик экситона является его время жизни. Это объясняется тем, что его величина ограничивает длительности всех процессов, в которых он может участвовать. Поэтому увеличение времени жизни экситона позволяет расширить круг практических приложений его свойств. Верхняя граница времени жизни экситона устанавливается временем его излучательной рекомбинации с испусканием фотона. Это время не зависит от технологии изготовления полупроводникового кристалла или гетероструктуры и определяется только их основными параметрами.

В моей предыдущей работе [2] оценивалось радиационное время жизни экситонов Ванье–Мотта, находящихся в трехмерных потенциальных ямах. Последние были образованы нанокластерами узкозонных полупроводников как с „прямой“, так и с „непрямой“ зонными структурами, внедренными в широкозонные полупроводники. При этом рассматривался случай, когда размер нанокластера превышает радиус экситона, так что соответствующий удерживающий потенциал не разрушает внутреннюю структуру последнего. Такая ситуация принципиально отличается от ситуации, имеющей место при исследовании радиационного времени жизни экситонов в квантовых точках [3–6], размеры которых, как правило, меньше радиуса экситона. В этом

случае удерживающий потенциал квантовой точки существенно нарушает внутреннюю структуру экситона Ванье–Мотта и соответствующие зависимости радиационного времени жизни экситона от размеров квантовой точки относятся фактически уже к экситону другого (не ванье-моттовского) типа.

Настоящая работа посвящена детальному исследованию зависимости радиационного времени жизни экситонов Ванье–Мотта в нанокластерах узкозонных полупроводников от их размеров в том случае, когда последние имеют „прямую“ зонную структуру. Статья организована следующим образом. В следующем разделе в модели сферического прямозонного нанокластера получены общие формулы для определения радиационного времени жизни находящегося в нем экситона Ванье–Мотта и его зависимости от радиуса нанокластера. В разд. 3 они применены для случая нанокластера InAs в матрице GaAs.

2. Математическая модель излучательной рекомбинации экситона Ванье–Мотта

Будем описывать состояния электрона в нанокластере узкозонного прямозонного полупроводника, внедренном в широкозонный полупроводник, блоховской волновой функцией $\phi_{jlk} = u_{jlk}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r})/\sqrt{V}$, где индекс j используется для обозначения энергетической зоны, $j = v, c$ для валентной зоны и зоны проводимости соответственно, индекс l — для нумерации различных вырожденных состояний в зоне, \mathbf{r} — радиус-вектор электрона, \mathbf{k} — его квазиволновой вектор, V — объем нанокластера и функция $u_{jlk}(\mathbf{r})$ — периодическая спиновая функция, $u_{jlk}(\mathbf{r}) = u_{jlk}(\mathbf{r} + \mathbf{a})$, где \mathbf{a} — любой вектор трансляции решетки Бравэ.

† E-mail: vakuk@appl.sci-nnov.ru

Основное состояние электронов в нанокластере описывается волновой функцией $\Psi_0 = (1/N!) \sum_{\mathbf{l}\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{v}\mathbf{l}\mathbf{k}}$, где знак суммы без индексов означает антисимметризацию по радиус-векторам и спинам электронов, \mathbf{k} пробегает всю вервую зону Бриллюэна, а его дискретные значения определяются периодическими граничными условиями Борна–Кармана, N — число разрешенных состояний в валентной зоне.

Назовем экситоном [7] возбужденное состояние электронов в нанокластере, описываемое волновой функцией

$$\Psi_{k_e n} = (1/N!) \sum_{\mathbf{l}'\mathbf{k}} c_{\mathbf{l}'\mathbf{k}n} \phi_{c\mathbf{l}\mathbf{k}} \prod_{\mathbf{l}'' \neq \mathbf{l}', \mathbf{k}' \neq \mathbf{k} - \mathbf{k}_e} \phi_{\mathbf{v}\mathbf{l}''\mathbf{k}'},$$

где \mathbf{k}_e — квазиволновой вектор центра масс экситона, n означает номер его внутреннего квантового состояний и $c_{\mathbf{l}'\mathbf{k}n}$ — коэффициенты, выбираемые как было объяснено в [2].

Взаимодействие экситона с квантованным электромагнитным полем описывается матричным элементом

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{k_e n} | -i\hbar e/(mc) \sum_{\mathbf{r}} \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t) \nabla_{\mathbf{r}} | \Psi_0 \rangle &\simeq \frac{ie}{\hbar c} \sum_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} A_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} \hat{a}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} \frac{V_c}{V} \\ &\times \sum_{\mathbf{r}_c} \exp[-i\omega_{ph}t - i(\mathbf{k}_e - \sqrt{\epsilon}\mathbf{k}_{ph})\mathbf{r}_c] \sum_{\mathbf{l}'\mathbf{k}} \mathbf{P}_{c\mathbf{v}\mathbf{l}'\mathbf{k}} c_{\mathbf{l}'\mathbf{k}n}^*, \end{aligned} \quad (1)$$

где в правой части учтена только резонансная часть нерелятивистского гамильтониана взаимодействия электронов с электромагнитным полем,

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{c\mathbf{v}\mathbf{l}'\mathbf{k}} &= -\frac{\hbar^2}{mV_c} \int_{\text{cell}} u_{c\mathbf{l}\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) [\nabla_{\mathbf{r}} u_{\mathbf{v}\mathbf{l}'\mathbf{k}}(\mathbf{r}) + i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_e) u_{\mathbf{v}\mathbf{l}'\mathbf{k}}(\mathbf{r})] \\ &\times \exp[-i(\mathbf{k}_e - \sqrt{\epsilon}\mathbf{k}_{ph})\mathbf{r}] d^3r, \end{aligned} \quad (2)$$

интегрирование проводится по примитивной кристаллической ячейке с объемом V_c , \mathbf{r}_c — радиус-векторы узлов решетки Бравэ, с каждым из которых связана своя примитивная кристаллическая ячейка, e — абсолютная величина элементарного заряда, m — масса свободного электрона, c — скорость света в вакууме, \hbar — постоянная Планка, суммирование выполняется по радиус-векторам \mathbf{r} всех электронов, $\nabla_{\mathbf{r}}$ — набла-оператор, действующий на координаты радиус-вектора \mathbf{r} ,

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} \left[\hat{a}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} \exp(-i\omega_{ph}t + i\sqrt{\epsilon}\mathbf{k}_{ph}\mathbf{r}) \right. \\ &\left. + \hat{a}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}^+ \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}^* \exp(i\omega_{ph}t - i\sqrt{\epsilon}\mathbf{k}_{ph}\mathbf{r}) \right] \end{aligned}$$

— оператор вектор-потенциала электромагнитного поля [8], ω_{ph} и \mathbf{k}_{ph} — частота и вакуумный волновой вектор фотона, связанные дисперсионным соотношением $\mathbf{k}_{ph} = \omega_{ph}/c$, ϵ — диэлектрическая проницаемость нанокластера на частоте ω_{ph} , индекс α нумерует две ортогональные \mathbf{k}_{ph} поляризации фотона, $\hat{a}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}$, $\hat{a}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}^+$ — операторы уничтожения и рождения фотона с волновым вектором \mathbf{k}_{ph} и поляризацией α , $\mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} = c\sqrt{2\pi\hbar/(\epsilon\omega_{ph}V)} e_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}$,

где вследствие $\epsilon \neq 1$, согласно [9], учтена поправка к вакуумной формуле из [8], V' — объем содержащего нанокластер кристалла, $V' \gg V$, $\mathbf{e}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}$ — единичные векторы, описывающие две поляризации фотона, $\mathbf{k}_{ph}\mathbf{e}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} = 0$, $\mathbf{e}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}^* \mathbf{e}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha'} = \delta_{\alpha\alpha'}$, $\delta_{\alpha\alpha'}$ — символ Кронекера.

Согласно [2], $\sum_{\mathbf{l}'\mathbf{k}} \mathbf{P}_{c\mathbf{v}\mathbf{l}'\mathbf{k}} c_{\mathbf{l}'\mathbf{k}n}^* \simeq \mathbf{P}_{cv} \sqrt{V/(\pi r_{ex}^3)}$, где r_{ex} — радиус экситона, \mathbf{P}_{cv} — некоторый вектор, величина которого порядка модуля параметра Кейна P [10], а направление определяется коэффициентами $c_{\mathbf{l}'\mathbf{k}n}$, т.е. детальной структурой экситона и ориентацией \mathbf{k}_e относительно кристаллографических осей.

Далее будет рассматриваться радиационная рекомбинация экситона, находящегося в основном внутреннем квантовом состоянии. Это означает, что в вышеприведенных формулах следует положить $n = 1$ и считать r_{ex} радиусом основного внутреннего квантового состояния экситона.

Рассмотрим сферический нанокластер с радиусом R и $V = 4\pi R^3/3$. Заменяя суммирование по \mathbf{r}_c в (1) на интегрирование, легко получить, что

$$(V_c/V) \sum_{\mathbf{r}_c} \exp[-i(\mathbf{k}_e - \sqrt{\epsilon}\mathbf{k}_{ph})\mathbf{r}_c] = 3(\sin \kappa - \kappa \cos \kappa)/\kappa^3,$$

где

$$\kappa = R\sqrt{k_e^2 + \epsilon k_{ph}^2 - 2k_e\sqrt{\epsilon}k_{ph} \cos \theta},$$

θ — угол между \mathbf{k}_e и \mathbf{k}_{ph} .

Из уравнения Шредингера следует, что амплитуда состояния, в котором в нанокластере находится один экситон с квазиволновым вектором \mathbf{k}_e , а фотоны отсутствуют, $c_{\mathbf{k}_e}$, и амплитуда состояния, в котором экситон в нанокластере отсутствует, но в содержащем нанокластер кристалле имеется один фотон с волновым вектором \mathbf{k}_{ph} и поляризацией α , $c_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}$, удовлетворяют системе дифференциальных уравнений:

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{c}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} &= -\frac{ie}{\hbar c} \sqrt{\frac{V}{\pi r_{ex}^3}} (\mathbf{P}_{cv}^* \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}^*) \\ &\times \exp[it(\hbar\omega_{ph} - E_{\mathbf{k}_e})/\hbar] c_{\mathbf{k}_e} 3 \frac{\sin \kappa - \kappa \cos \kappa}{\kappa^3}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{c}_{\mathbf{k}_e} &= \frac{ie}{\hbar c} \sqrt{\frac{V}{\pi r_{ex}^3}} (\mathbf{P}_{cv} \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}) \\ &\times \exp[-it(\hbar\omega_{ph} - E_{\mathbf{k}_e})/\hbar] c_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} 3 \frac{\sin \kappa - \kappa \cos \kappa}{\kappa^3}, \end{aligned} \quad (4)$$

где $E_{\mathbf{k}_e}$ — энергия экситона, определяемая в следующем разделе.

Решая (3) и подставляя результат в (4), легко получить уравнение для $c_{\mathbf{k}_e}$:

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{c}_{\mathbf{k}_e} &= -\frac{ie^2 V}{\pi \hbar^3 c^2 r_{ex}^3} \int_0^t \sum_{\mathbf{k}_{ph}\alpha} |\mathbf{P}_{cv} \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{ph}\alpha}|^2 \exp[-i(t-t')] \\ &\times (\hbar\omega_{ph} - E_{\mathbf{k}_e})/\hbar \left[c_{\mathbf{k}_e}(t') \left(3 \frac{\sin \kappa - \kappa \cos \kappa}{\kappa^3} \right)^2 dt'. \end{aligned} \quad (5)$$

Поскольку объем содержащего нанокластера кристалла V' достаточно велик, суммирование по дискретным векторам \mathbf{k}_{ph} , допускаемым периодическими граничными условиями Борна–Кармана, можно заменить на интегрирование с помощью формулы

$$\sum_{\mathbf{k}_{\text{ph}\alpha}} \rightarrow \varepsilon^{3/2} V' / (2\pi)^3 \sum_{\alpha} \int d^3 k_{\text{ph}}.$$

Для проведения этого интегрирования выберем цилиндрическую систему координат в осью z вдоль \mathbf{k}_e , так что

$$\int d^3 k_{\text{ph}} = \int_0^{\infty} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} k_{\text{ph}}^2 dk_{\text{ph}} d\theta d\phi,$$

и заметим, что

$$\int_0^{2\pi} \sum_{\alpha} |\mathbf{P}_{cv} \mathbf{A}_{\mathbf{k}_{\text{ph}\alpha}}|^2 d\phi \propto F_1 + F_2 \cos^2 \theta,$$

где F_1, F_2 — некоторые действительные коэффициенты порядка единицы, определяемые направлением \mathbf{P}_{cv} , т.е. детальным структурой экситона и ориентацией \mathbf{k}_e относительно кристаллографических осей. Коэффициент F_2 отвечает за анизотропию экситон-фотонного взаимодействия. В [2] этот коэффициент был положен равным нулю с целью сокращения громоздких математических выкладок. Таким образом, как и указывалось в [2], полученная там формула для радиационного времени жизни экситонов Ванье–Мотта в нанокластерах узкозонных прямозонных полупроводников может рассматриваться лишь как оценочная. Для его точного вычисления следует использовать полученные далее с учетом анизотропии экситон-фотонного взаимодействия соотношения (6) и (7).

После интегрирования по θ уравнение (5) принимает вид

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{c}_{\mathbf{k}_e} = & -\frac{6ie^2 |P|^2 R}{\pi \hbar^3 c k_e r_{\text{ex}}^3} \int_0^{+\infty} \int_0^t \exp[-i(t-t')(\hbar\omega_{\text{ph}} - F_{\mathbf{k}_e})/\hbar] \\ & \times c_{\mathbf{k}_e}(t') \left\{ F_1 f_1 + \frac{4F_2}{(\kappa_+^2 - \kappa_-^2)^2} [f_2 - (\kappa_+^2 + \kappa_-^2) f_3 \right. \\ & \left. + (\kappa_+^2 + \kappa_-^2)^2 f_1 / 16] \right\} dt' dk_{\text{ph}}, \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} \kappa_{\pm} &= R \sqrt{(k_e \pm \sqrt{\varepsilon} k_{\text{ph}})^2}, \\ f_1 &= \sin(2\kappa_+) / \kappa_+^3 - 1/\kappa_+^2 - \sin^2(\kappa_+) / \kappa_+^4 \\ &\quad - \sin(2\kappa_-) / \kappa_-^3 + 1/\kappa_-^2 + \sin^2(\kappa_-) / \kappa_-^4, \\ f_2 &= [\ln(\kappa_+ / \kappa_-) + \text{Ci}(2\kappa_-) - \text{Ci}(2\kappa_+)] / 2 \\ &\quad + [\kappa_+^2 - \kappa_-^2 + \kappa_+ \sin(2\kappa_+) - \kappa_- \sin(2\kappa_-)] / 4 \\ &\quad + 5[\cos(2\kappa_+) - \cos(2\kappa_-)] / 8, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} f_3 &= \sin^2(\kappa_-) / (2\kappa_-^2) - \sin^2(\kappa_+) / (2\kappa_+^2) + \sin(2\kappa_+) / (2\kappa_+) \\ &\quad - \sin(2\kappa_-) / (2\kappa_-) + [\ln(\kappa_+ / \kappa_-) + \text{Ci}(2\kappa_-) - \text{Ci}(2\kappa_+)] / 2, \end{aligned}$$

$$\text{Ci}(z) = \gamma + \ln(z) + \int_0^z \{[\cos(z') - 1] / z'\} dz',$$

$|\arg z| < \pi$ — интегральный косинус [11], $\gamma \simeq 0.5772$ — постоянная Эйлера.

Решение (6) может быть найдено с помощью преобразования Лапласа [12], после которого это интегродифференциальное уравнение становится алгебраическим уравнением для образа Лапласа $c_{\mathbf{k}_e p}$ искомой функции $c_{\mathbf{k}_e}$. Решая его, легко найти явную формулу для $c_{\mathbf{k}_e p}$:

$$\begin{aligned} c_{\mathbf{k}_e p} = & c_{\mathbf{k}_e}(0) \left(p + \frac{6e^2 |P|^2 R}{\pi \hbar^3 c k_e r_{\text{ex}}^3} \int_0^{+\infty} \frac{1}{i(\hbar c k_{\text{ph}} - E_{\mathbf{k}_e}) / \hbar + p} \right. \\ & \times \left\{ F_1 f_1 + \frac{4F_2}{(\kappa_+^2 - \kappa_-^2)^2} [f_2 - (\kappa_+^2 + \kappa_-^2) f_3 \right. \\ & \left. \left. + (\kappa_+^2 + \kappa_-^2)^2 f_1 / 16] \right\} dk_{\text{ph}} \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (7)$$

где $c_{\mathbf{k}_e}(0)$ — начальное значение $c_{\mathbf{k}_e}(t)$, $|c_{\mathbf{k}_e}(0)| = 1$.

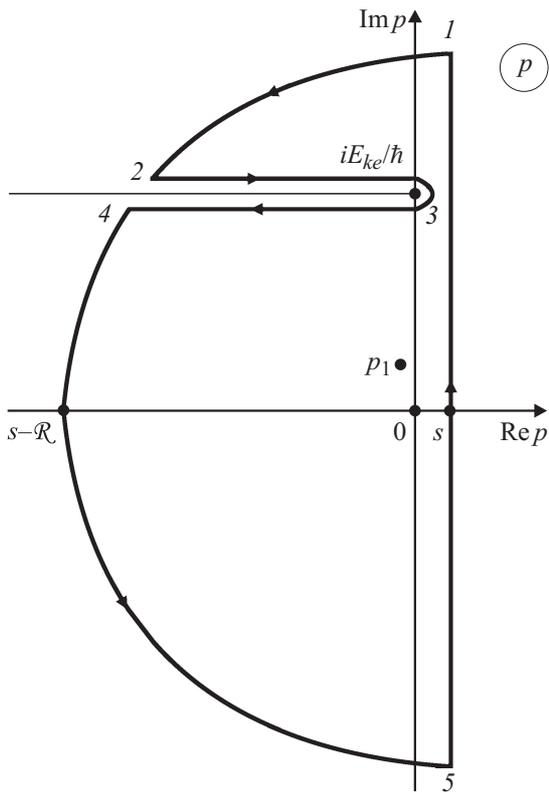
Согласно теории преобразования Лапласа, формула (7) справедлива для $\text{Re } p > 0$ и определяет $c_{\mathbf{k}_e}$ в полуплоскости $\text{Re } p > 0$ комплексной переменной p , где $c_{\mathbf{k}_e p}$ является, очевидно, аналитической функцией p . В полуплоскости $\text{Re } p \leq 0$ функция $c_{\mathbf{k}_e p}$ определяется как аналитическое продолжение (7) на нулевые и отрицательные значения $\text{Re } p$. Однако легко видеть, что при таком определении $c_{\mathbf{k}_e p}$ в полуплоскости $\text{Re } p \leq 0$ она будет там неоднозначной функцией p . Для того чтобы сделать ее однозначной функцией в этой полуплоскости, достаточно разрезать последнюю вдоль луча, параллельного действительной оси и выходящего из точки с координатами $(0, iE_{\mathbf{k}_e} / \hbar)$ в отрицательном направлении этой оси (см. рисунок).

Искомая величина $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ дается обратным преобразованием Лапласа от $c_{\mathbf{k}_e p}$ [12]:

$$c_{\mathbf{k}_e}(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{s-i\infty}^{s+i\infty} \exp(pt) c_{\mathbf{k}_e p} dp, \quad (8)$$

где s — любое действительное число, при котором $c_{\mathbf{k}_e p}$ является аналитической функцией в полуплоскости $\text{Re } p \geq s$. Согласно сказанному выше, s может быть любым положительным числом.

Интеграл в (8) вычисляется с помощью теоремы Коши о вычетах [12], согласно которой он равняется произведению $2\pi i$ на сумму вычетов подынтегральной функции в полуплоскости $\text{Re } p \leq 0$, разрезанной как было указано выше, минус интеграл по контуру $I-2-3-4-5$, состоящему из двух ($I-2$ и $4-5$) дуг окружности с



Контур интегрирования в комплексной плоскости p для вычисления интеграла в (8). Направление обхода контура указано стрелками.

радиусом $\mathcal{R} \rightarrow +\infty$ и кривой 2–3–4, огибающей разрез в полуплоскости $\text{Re } p \leq 0$ (см. рис. 1). С помощью леммы Жордана [12] легко показать, что интегралы вдоль дуг 1–2 и 4–5 стремятся к нулю при $\mathcal{R} \rightarrow +\infty$. Интеграл вдоль кривой 2–3–4, однако, остается при этом конечным. В то же время численный анализ, проведенный для материальных параметров, указанных в следующем разделе, показывает, что с ростом t он стремится к нулю много быстрее, чем произведение $2\pi i$ на указанную выше сумму вычетов. Таким образом, именно это произведение и определяет поведение $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ при больших t .

Численный анализ при материальных параметрах, указанных в следующем разделе, показывает, что функция $c_{\mathbf{k}_e,p}$ в полуплоскости $\text{Re } p \leq 0$, разрезанной как было объяснено выше, имеет только одну особую точку p_1 , являющуюся полюсом 1-го порядка. Она находится как точка, в которой сумма во внешних скобках в (7) равна нулю. При этом интеграл по k_{ph} в ней для $\text{Re } p \leq 0$, согласно сказанному выше, определяется как аналитическое продолжение этого интеграла из полуплоскости $\text{Re } p > 0$. Такой способ нахождения p_1 является точным и отличается от использованного в [2] приближенного метода Вигнера–Вайскопфа [8], в котором указанный интеграл по k_{ph} вычисляется только при $p = 0$, т.е. его зависимость от p пренебрегалось. Поэтому, как уже указывалось выше, полученная в [2] формула для радиационного времени жизни экситонов Ванье–Мотта в на-

нокластерах узкозонных прямозонных полупроводников может рассматриваться лишь как оценочная. Численный анализ для материальных параметров, указанных в следующем разделе, показывает, что производная от суммы во внешних скобках в (7) в точке p_1 близка к единице, т.е. коэффициент в первом члене главной части ряда Лорана $c_{\mathbf{k}_e,p}$ в окрестности этой точки может быть положен равным 1. Таким образом, поведение $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ на больших временах при $c_{\mathbf{k}_e}(0) = 1$ описывается формулой

$$c_{\mathbf{k}_e}(t) \simeq \exp(p_1 t), \quad (9)$$

справедливой при $t \gtrsim -1/(\text{Re } p_1)$. Вероятность найти экситон, нерекombинировавшим при больших временах t дается выражением $|c_{\mathbf{k}_e}(t)|^2 \simeq \exp[2 \text{Re}(p_1)t]$ и поэтому определяется величиной $2 \text{Re } p_1$.

Необходимо отметить, что в [2] при обращении преобразования Лапласа от $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ интеграл вдоль кривой 2–3–4 не учитывался. Проведенный в настоящей работе детальный численный анализ для случая нанокластера InAs в GaAs подтверждает возможность этого приближения при нахождении асимптотики функции $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ при больших t . С помощью численного моделирования указанной гетеросистемы в данной работе также показано, что использовавшиеся в [2] предположения о том, что образ Лапласа функции $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ имеет только одну особую точку, которая является полюсом 1-го порядка, и его вычет в этой точке близок к $c_{\mathbf{k}_e}(0)$, являются верными. Таким образом, в настоящей работе показана правомерность использованного в [2] приближенного подхода при вычислении для больших t обратного преобразования Лапласа от $c_{\mathbf{k}_e}(t)$ в случае экситона Ванье–Мотта в нанокластере InAs, внедренном в GaAs.

Наблюдаемое время радиационной рекомбинации экситона Ванье–Мотта в нанокластере определяется, очевидно, величиной $2 \text{Re } p_1$, усредненной по тепловому распределению \mathbf{k}_p . Практически при всех рассматриваемых далее радиусах нанокластера и температурах расстояние между квантовыми уровнями энергии движения центра масс экситона внутри нанокластера значительно меньше тепловой энергии $k_B T$, где k_B — постоянная Больцмана, T — температура. Поэтому суммирование по этим уровням может быть заменено на интегрирование по ним, а их конкретные значения вследствие этого становятся несущественными. В результате энергии этих уровней можно находить из периодических граничных условий Борна–Кармана. В итоге получается следующая формула для усредненной по тепловому распределению \mathbf{k}_e величины $2 \text{Re } p_1$, $2 \text{Re } \bar{p}_1$:

$$2 \text{Re } \bar{p}_1 = \int_0^{+\infty} 2 \text{Re}(p_1) 4\pi \hbar^3 k_e^2 \times \exp[-(\hbar k_e)^2 / (2m_e k_B T)] / (2\pi m_e k_B T)^{3/2} dk_e, \quad (10)$$

где $m_e \equiv m_{e_l} + m_h$ — эффективная масса экситона, равная сумме эффективных масс электрона m_{e_l} и дырки m_h .

Тогда наблюдаемое время радиационной рекомбинации экситона Ванье–Мотта в нанокластере есть

$$\tau \equiv -1/(2 \operatorname{Re} \bar{p}_1). \quad (11)$$

3. Радиационное время жизни экситона Ванье–Мотта в нанокластере InAs, внедренном в GaAs

Вычислим τ и найдем его зависимость от R для нанокластера InAs, внедренного в GaAs. Согласно [10,13], ширина запрещенной зоны InAs для обсуждаемых далее низких температур есть $E_g \simeq 0.418$ эВ, энергия связи основного состояния экситона около 1 мэВ, эффективная масса электрона $0.0265m$, усредненные по направлениям эффективные массы тяжелых и легких дырок равняются примерно $0.57m$ и эффективной массе электрона соответственно, $2m|P|^2/\hbar^2 \simeq 21.5$ эВ, диэлектрическая проницаемость на рекомбинационной частоте экситона 12.4, статическая диэлектрическая проницаемость 15.15. При таких параметрах приведенная в [7] формула для радиуса основного внутреннего квантового состояния экситона r_e дает величину около 30 нм, а эффективная масса экситона m_e для оценок может быть положена равной m .

Согласно [13], диэлектрическая проницаемость GaAs на рекомбинационной частоте экситона порядка 11 и близка к аналогичной величине для InAs. Это, а также, как правило, малые по сравнению с длиной волны в веществе размеры нанокластера InAs, позволяют пренебречь дифракцией электромагнитного поля на нем и во всех приведенных выше формулах считать ϵ , равной ее значению для InAs, т.е. 12.4.

Для обсуждаемых далее низких температур квазикинетическая энергия движения центра масс экситона значительно меньше E_g . Учитывая также, что приведенная выше энергия связи основного внутреннего квантового состояния экситона также много меньше E_g , энергия экситона E_k (которая равняется E_g минус энергия связи основного внутреннего квантового состояния экситона плюс квазикинетическая энергия движения центра масс экситона) может быть положена равной E_g .

Находя зависимость τ от R , следует помнить, что последний не может быть меньше r_e , так как в противном случае внутренняя структура экситона Ванье–Мотта будет нарушена удерживающим потенциалом нанокластера. Кроме того, температуры, при которых определяется эта зависимость, должны быть достаточно малыми, так чтобы соответствующая тепловая энергия не превосходила энергию связи основного состояния экситона и он бы не разрушался за счет тепловых флуктуаций. Эти два условия приводят к неравенствам $R \geq 30$ нм и $T \leq 11$ К, определяющим допустимые значения R и T , при которых можно говорить о зависимости радиационного времени жизни экситона Ванье–Мотта от радиуса нанокластера в гетеросистеме InAs/GaAs.

Радиационное время жизни экситона Ванье–Мотта τ как функция R и T

R , нм	30	60	100	1000	2000
τ , нс ($T = 1.7$ К)	0.702	0.259	0.207	0.146	0.142
τ , нс ($T = 11$ К)	4.29	3.05	2.78	2.34	2.29

Величины $\tau(R)$ для некоторых допустимых R и T приведены в таблице. Из нее видно, что при $T = 1.7$ К радиационное время жизни экситона Ванье–Мотта увеличивается почти в 5 раз при уменьшении размеров нанокластера от бесконечности (что соответствует однородному InAs) до радиуса экситона. При более высокой температуре $T = 11$ К этот эффект сохраняется, но становится менее выраженным.

Из таблицы также видно, что при одних и тех же R радиационное время жизни экситона больше при большей температуре. Это связано с тем, что вследствие закона сохранения квазиимпульса системы „экситон–фотон“ эффективно рекомбинировать с испусканием фотона может лишь часть экситонов, у которых k_e лежит в определенном не зависящем от T интервале значений [2]. С ростом же температуры тепловое распределение по k_e становится все более „размазанным“ и поэтому в указанном интервале находится все меньшая доля от общего числа экситонов. Следует, однако, повторить, что здесь, как и во всей работе, речь идет только о радиационном времени жизни экситона Ванье–Мотта. На его наблюдаемое время жизни существенное влияние могут оказывать также и процессы безызлучательной рекомбинации. Если последние являются более быстрыми, чем радиационная рекомбинация, то они и будут определять наблюдаемое время жизни экситона. В этом случае оно может, конечно, не увеличиваться, а уменьшаться с ростом температуры.

Сравнение таблицы с результатами [2] для случая экситона Ванье–Мотта в нанокластере InAs, внедренном в GaAs, показывает, что они качественно совпадают, однако имеются количественные отличия. Последние могут быть существенными при сопоставлении результатов численных расчетов с экспериментальными данными. Кроме того, для других химических составов нанокластера и содержащей его матрицы эти отличия могут быть более значимыми. Поэтому в этом случае для вычисления радиационного времени жизни экситона Ванье–Мотта в нанокластере следует пользоваться формулами, следующими из полученных в настоящей работе более точных (т.е. учитывающих анизотропию экситон-фотонного взаимодействия) соотношений (6) и (7).

4. Заключение

Таким образом, с помощью аналитического и численного рассмотрения показано, что радиационное время жизни экситона Ванье–Мотта в прямозонном полупроводнике увеличивается в несколько раз, если он находится в трехмерной потенциальной яме с линейными

размерами порядка его радиуса. Такая яма может быть образована нанокластером прямозонного узкозонного полупроводника, помещенным в широкозонный полупроводник. Данный эффект может быть использован для значительного увеличения времени жизни экситона Ванье–Мотта в прямозонных полупроводниках и, следовательно, для расширения круга явлений и процессов, в которых такой экситон может участвовать.

Публикация базируется на работе, финансируемой Сколковским институтом науки и технологий (Сколтех) в рамках Skoltech/MIT Initiative (договор 204-MRA), РФФИ (гранты 12-02-00855-а, 13-02-97130-р-поволжье-а и 14-02-00766-а), правительством РФ (Постановление 220 от 09.04.2010, договор 14.B25.31.0021) и Советом по грантам президента РФ для государственной поддержки ведущих научных школ (грант НШ-1041.2014.2).

Список литературы

- [1] G. Wannier. *Phys. Rev.*, **52** (3), 191 (1937).
- [2] В.А. Кукушкин. *Изв. вузов. Радиофизика*, **56** (7), 494 (2013).
- [3] Д.М. Самосват, В.П. Евтихийев, А.С. Школьник, Г.Г. Зегря. *ФТП*, **47**, 24 (2013).
- [4] Г.И. Целиков, В.Ю. Тимошенко, Ю. Пленге, Э. Рюль, А.М. Шаталова, Г.А. Шандрюк, А.С. Мерекалов, Р.В. Тальрозе. *ФТП*, **47** (5), 633 (2013).
- [5] M. Bauer, J. Keeling, M.M. Parish, P. Lopez Rios, P.V. Littlewood. *Phys. Rev. B*, **87** (3), 035 302 (2013).
- [6] В.А. Беляков, К.В. Сидоренко, А.А. Конаков, Н.В. Курова, В.А. Бурдов. *ФТП*, **46** (12), 1613 (2012).
- [7] R.J. Elliott. *Phys. Rev.*, **108** (6), 1384 (1957).
- [8] В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. *Квантовая электродинамика* (М., Физматлит, 2002) гл. 1, 6.
- [9] В.Л. Гинзбург. *Теоретическая физика и астрофизика* (М., Физматлит, 1987).
- [10] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. *J. Appl. Phys.*, **89** (11), 5815 (2001).
- [11] У. Гаучи, У. Кейхилл. В сб.: *Справочник по специальным функциям*, под ред. М. Абрамовица, И. Стиган (М., Физматлит, 1979) гл. 5.
- [12] М.А. Лаврентьев, Б.В. Шабат. *Методы теории функций комплексного переменного* (М., Физматлит, 1973) гл. 1, 6.
- [13] O. Madelung. *Semiconductors: Data Handbook* (Berlin, Springer, 2004).

Редактор Т.А. Полянская

The increase of the radiative lifetime of Wannier–Mott excitons in semiconductor nanoclusters

V.A. Kukushkin*⁺

* Institute of Applied Physics
of the Russian Academy of Science,
603950 Nizhny Novgorod, Russia
⁺ Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract The purpose of the article is to calculate the radiative lifetime of Wannier–Mott excitons in large (in comparison with the exciton radius) three dimensional potential wells formed by nanoclusters of a direct narrow-bandgap semiconductor embedded in a wide-bandgap one. The calculations were carried out for an example of the InAs/GaAs heterosystem. It is shown that under the decrease of the nanocluster dimensions down to values of order the exciton radius the radiative lifetime of the latter increases by several times in comparison with its value in a homogeneous semiconductor. This tendency proves to be more pronounced at low temperatures. So, the placement of Wannier–Mott excitons in direct semiconductor nanoclusters with dimensions of the order of their radius can be used to significantly prolong their radiative lifetime.