

УДК 535.23; 539.194

© 1992

ВЕРОЯТНОСТЬ ВОЗБУЖДЕНИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ПЕРЕХОДОВ МЕЖДУ ДВУМЕРНЫМИ ЗОНАМИ

Н. И. Григорчук

Проведен расчет вероятности поглощения излучения при переходах электронов между двумя плоскими зонами разной ширины и феноменологическим учетом затухания в системе. В случаях, когда энергия затухания намного превышает разность ширины этих зон или намного меньше этой разности, получены аналитические выражения, позволяющие определить форму линии поглощения в зависимости от температуры кристалла, разности ширины зон и затухания. Обсуждается конкурирующая роль этих факторов. Предложенная модель электронных переходов позволяет интерпретировать результаты экспериментальных измерений поглощения света в тонких пленках PbI_2 .

Исследования оптических переходов электронов в тонких пленках, в слоях, вообще в системах с пониженной размерностью, какими являются, например, сверхрешетки, МДП- или гетероструктуры, важны для изучения параметров приборов и схем, использующих такого рода материалы [1]. В последние годы возрос интерес к явлениям, происходящим в двумерных системах [2]. Недавние экспериментальные исследования тонких пленок PbI_2 в области фундаментального поглощения [3] обнаружили влияние фотолиза на величину показателя поглощения образцов, предварительно подверженных УФ облучению при температуре 300 °С. Наблюдаемая индуцированная полоса поглощения отнесена к образованию электронных состояний в запрещенной зоне. Ранее подобные полосы при тех же обстоятельствах наблюдали на других объектах [4].

Судя по особенностям полос, их можно было бы интерпретировать в рамках следующей модели. Предположим, что в результате УФ облучения после ряда нелинейных процессов, при которых произойдет основная потеря энергии электронов, в запрещенной зоне как «конечный продукт» возникает плоская зона из локализованных электронных состояний с достаточно большим временем жизни, на протяжении которого электроны успевают термализоваться, а их число можно считать заданным.¹ Затем другим источником с регулируемой частотой излучения эти электроны перебрасываются в следующую более высокую плоскую зону. При этом в спектре возникает новая полоса поглощения с характерными особенностями. Коэффициент поглощения такой полосы с точностью до постоянных величин можно выразить через вероятность поглощения.

Ниже мы остановимся на расчете вероятности предложенного механизма электронных переходов.

Пусть функция $|f_i k_{\parallel}\rangle$ описывает состояние электрона в i -й плоской зоне, где f_i — совокупность квантовых чисел, описывающих состояние электрона в зоне i ; k_{\parallel} — его квазиимпульс в плоскости. Энергию, соответствующую такому состоянию, примем как

$$E_{f_i}(k_{\parallel}) = E_{f_i} - \Delta_{\parallel} (\cos k_{1x}a + \cos k_{1y}a). \quad (1)$$

¹ Такие процессы известны, например [5], при образовании триплетных экситонных состояний в треках α -частиц.

Это выражение моделирует ситуацию, при которой в узлах плоской периодической решетки (периода a) находятся однородные поглощающие центры с сильно связанными электронами, осуществляющими когерентное движение как блоховские волны. Возникающие зоны ширины $\sim 2\Delta_{11}$ являются достаточно узкими вследствие слабого перекрытия атомных волновых функций соседних узлов и более длительного, но конечного времени пребывания электрона у своего узла. Альтернативной моделью может быть система неупорядоченных изолированных центров (атомов разной природы, примесей, узлов), атомные волновые функции которых не перекрываются, с прыжковым механизмом перехода электронов между соседними узлами и δ -образным распределением их по энергии изолированных уровней. Она имеет свои преимущества и заслуживает отдельного рассмотрения. Для интерпретации наблюдаемых в [3, 4] особенностей полос более удобной, однако, оказывается модель спектра (1).

Тогда вероятность перехода $|f_1 k_{11}\rangle \rightarrow |f_2 k_{21}\rangle$ в дипольном приближении можно представить в виде [6]

$$W(\nu) = \frac{4\pi}{\Gamma} n_{\sigma} N_1 |\sigma d_{f_2 f_1}|^2 \sum_{\mathbf{k}_{11}} w(\mathbf{k}_{11}) \left\{ \omega_{f_2 f_1} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} dt e^{it(\nu - \omega_{f_2 f_1}) - \frac{\Gamma t}{2}} \right\}_{\mathbf{k}_{21} = \mathbf{k}_{11} + \mathbf{Q}}, \quad (2)$$

где $d_{f_2 f_1}$ и $\omega_{f_2 f_1}$ — дипольный момент и частота перехода из состояния f_1 в состояние f_2 ; n_{σ} — концентрация фотонов, имеющих частоту ν , квазиимпульс \mathbf{Q} и поляризацию σ ; Γ — феноменологический параметр, учитывающий затухание, обусловленное рассеянием электронов в плоскости и друг на друге; N_1 — число электронов в первой зоне; $w(\mathbf{k}_{11})$ — функция, описывающая распределение электронов по подуровням нижней плоской зоны. В случае двумерного электронного газа она имеет вид [7]

$$w(\mathbf{k}_{11}) = N_1^{-1} I_0^2(\beta \Delta_{11}) \exp\{\beta \Delta_{11} (\cos k_{1x} a + \cos k_{1y} a)\}, \quad \beta = (k_B T)^{-1}, \quad (3)$$

где $I_0(x)$ — модифицированная функция Бесселя нулевого порядка, k_{1x} и k_{1y} — компоненты квазиимпульса в плоскости зоны.

Наиболее просто вычисление вероятности перехода с учетом выражения (3) удается провести в случае, когда справедливо соотношение $\Gamma \gg \Delta L$, т. е. когда энергия затухания электронов превышает разность ширины двух плоских зон ΔL . В этом случае находим

$$W(\nu) \approx \frac{2\pi}{\hbar} n_{\sigma} \Omega \frac{|\sigma d_{f_2 f_1}|^2}{(\Gamma/2)^2 + (\nu - \Omega)^2} \left[1 - \frac{4\Delta L (\nu - \Omega) \frac{I_1(\beta \Delta_{11})}{I_0(\beta \Delta_{11})}}{(\Gamma/2)^2 + (\nu - \Omega)^2} \right], \quad (4)$$

в котором

$$\Omega = \hbar^{-1} (E_{f_2} - E_{f_1}), \quad \Delta L = \hbar^{-1} (\Delta_{21} - \Delta_{11}). \quad (5)$$

Из выражения (4) следует, что при одинаковой ширине зон, когда $\Delta L \rightarrow 0$, вероятность переходов в зависимости от частоты определяется лоренцевой кривой с полушириной $\Gamma/2$ (при учете затухания Γ) и является δ -образной линией без такого учета. Если же разность ΔL — величина конечная, тогда вероятность переходов определяется асимметричной лоренцевой линией с возросшей интенсивностью и смещением относительно $\Delta L = 0$ пиком (рис. 1). Причем если ширина верхней зоны больше нижней, то асимметрия положительна и сдвиг происходит в длинноволновую сторону спектра. Величина асимметрии, сдвиг

пика и рост интенсивности поглощения при фиксированной температуре пропорциональны ΔL .

Остановимся далее на обратном первом случае, когда $\Gamma \ll \Delta L$. Для вероятности межзонного поглощения в этом случае имеем

$$W(\nu) \approx \frac{4\Omega}{\hbar\Gamma\Delta L} n_{\sigma} |\sigma d_{i_2 i_1}|^2 \operatorname{Re} |k| K(k) \left[1 - 2i \frac{\alpha}{\Delta L} \frac{I_1(\beta\Delta_{1\mu})}{I_0(\beta\Delta_{1\mu})} \right], \quad (6)$$

где $K(k)$ — эллиптический интеграл первого рода,

$$k = \frac{2\Delta L}{\sqrt{\alpha^2 + 4\Delta L^2}}, \quad \alpha = \frac{\Gamma}{2} - i(\nu - \Omega). \quad (7)$$

При получении (6) мы воспользовались теоремой умножения бесселевых функций, в сумме ряда которых

$$J_0(i\Delta L - i\beta\Delta_{1\mu}) \approx \left[J_0(i\Delta L) + 2iJ_1(i\Delta L) \frac{I_1(\beta\Delta_{1\mu})}{I_0(\beta\Delta_{1\mu})} \right] I_0(\beta\Delta_{1\mu}) \quad (8)$$

сохранили только первые члены ввиду малости аргументов этих функций. Можно показать, что такое приближение соответствует приближению, учитывающему взаимодействие между ближайшими соседями в квадратной решетке. Для этого достаточно представить структуру первых двух функций Грина $G_{0,0}$ и $G_{0,1}$, найденных в указанном приближении [7]. Если в (6) устремить $\Delta L \rightarrow 0$, то первый член суммы (6), как и в предыдущем случае, дает лоренцевую линию с полушириной $\Gamma/2$, а второй член, хотя и становится бесконечно большим, должен быть отброшен, поскольку будет чисто мнимой величиной.

Расчеты, проведенные по формуле (6), показали, что полосы поглощения в широком интервале температур (рис. 2) имеют слабую асимметрию: при малых значениях разности ΔL они близки к лоренцевым, тогда как при больших ΔL — к колоколообразным кривым. Форма линии становится по сравнению с рассчитанной по формуле (4) сильно чувствительной к изменению разности ширины двумерных зон и практически не изменяется при изменении температуры в значительном интервале от гелиевых до комнатных температур. Таким образом, независимо от температуры слоя возникает условие, обуславливающее конечную ширину полосы поглощения. Эту особенность, главную из тех, что наблюдались на экспериментах в [3, 4], можно пояснить в рамках нашей модели. Исходя из формул (4), (6), кроме того, можно определить особенности изменения интенсивности поглощения и направления смещения пика в зависимости от соотношений разности ширины плоских зон, температуры слоя и величины энергии затухающих процессов. В частности, из формулы (6) после ряда приближенных преобразований можно найти простое выражение

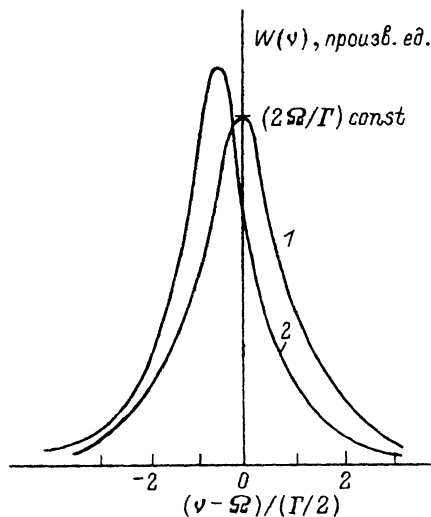


Рис. 1. Форма линии поглощения света при переходах электронов между плоскими зонами в случае $\Gamma \gg \Delta L$.

$T = 4.2 \text{ К}, L_1 = 3 \text{ см}^{-1}, \Delta L = 0$ (1) и 0.1Γ (2).

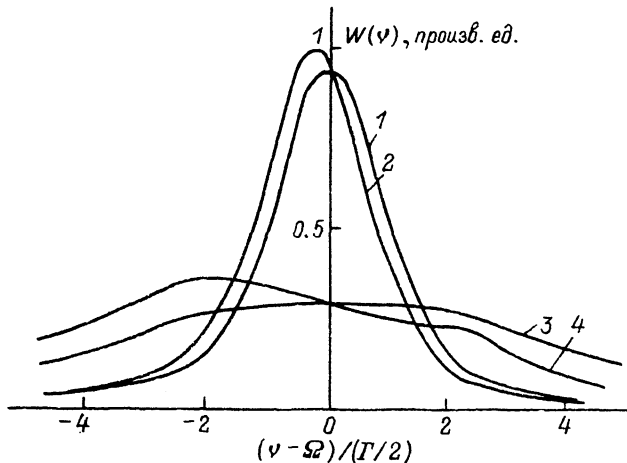


Рис. 2. Форма линии поглощения света при переходах электронов между плоскими зонами в случае $\Gamma \ll \Delta L$.

T (К), $2\Delta L$: 1 — 100, Г; 2 — 20, Г; 3 — 100, 5Г; 4 — 20, 5Г.

$$W(\nu) \approx \frac{8n_{\sigma}}{\sim \Delta L} |\sigma d_{r_2 r_1}|^2 \frac{\Omega}{\nu - \Omega} K \left(\frac{2\Delta L}{\nu - \Omega} \right) \frac{I_1(\beta L_1)}{I_0(\beta L_1)} \quad (9)$$

для вероятности электронных переходов, описывающих коротковолновый спуск крыла полосы поглощения. Это выражение имеет особенности при $\Delta L \rightarrow 0$ и $\nu - \Omega = 2\Delta L$, возникающие вследствие пренебрежения затухательными процессами, однако может быть полезным при оценках интенсивности поглощения и направления смещения линии при межзонных переходах электронов в нерезонансной области спектра.

Список литературы

- [1] Capasso F. // Physica. 1985. V. 129. B. N 1. P. 92—106.
- [2] Андо Т., Фаулер А. Б., Стерн Ф. Электронные свойства двумерных систем. М., 1985. 416 с.
- [3] El-Nahass M. M., El-Shair H. T., Soliman H. S., Ibrahim A. M., Khalil N. M., El-Sazly A. A. // J. Mater. Sci. Lett. 1989. N 8. P. 908—911.
- [4] Higuchi M., Nakajama T., Iton N. // J. Phys. Soc. Jpn. 1976. V. 40. N 1. P. 250—257.
- [5] Klein G. // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 1978. V. 44. P. 125—150.
- [6] Grigoruk N. I., Grechko L. G. // Phys. Stat. Sol. (b). 1989. V. 153. N 2. P. 633—640.
- [7] Григорчук Н. И. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 2. С. 387—393.

Институт химии поверхности
АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
1 августа 1990 г.
В окончательной редакции
15 июля 1992 г.