

Особенности спектров электронов и дырок в открытой сферической наногетероструктуре (на примере GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs)

© Н.В. Ткач, В.А. Головацкий, О.Н. Войцеховская

Черновицкий государственный университет,
274012 Черновцы, Украина

(Получена 17 июня 1999 г. Принята к печати 25 ноября 1999 г.)

В приближении эффективной массы, используя теорию S-матрицы, получены спектры квазистационарных состояний электронов и дырок в открытой сферической наногетероструктуре. Конкретный расчет выполнялся на примере системы GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs. Получена полная система волновых функций электрона и дырки для произвольного количества слоев наногетеросистемы. Рассчитаны зависимости времен жизни квазичастиц от геометрических размеров наносистемы GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs и от концентрации Al(x).

Введение

Экспериментальные [1–5] и теоретические [6–12] исследования спектров электронов, дырок, экситонов, фононов и взаимодействия этих квазичастиц в сферических полупроводниковых нанокристаллах, которые внедрены в массивные полупроводниковые или диэлектрические среды, выполняются уже длительное время. Это дало возможность исследователям детально изучить физические явления, которые происходят в простых квантовых точках.

Современные технологические методы [13–15] позволили создать многослойные сферические наногетероструктуры. Это обстоятельство стимулировало интерес к теоретическому исследованию спектров и взаимодействия квазичастиц (электронов, дырок, экситонов, фононов) в таких системах.

Теория дискретных спектров, которые соответствуют стационарным состояниям электронов, дырок и экситонов в многослойных сферических квантовых ямах, развита в работах [13,14,16] в приближении эффективной массы. В работах [16,17] на основании модели диэлектрического континуума разработана теория фононного спектра многослойных сферических наногетероструктур. Там же получены гамильтонианы взаимодействия ограниченных и интерфейсных фононов с электронами, дырками и экситонами и выполнен расчет перенормированных взаимодействием с фононами энергий основных стационарных состояний электронов и экситонов.

Развитая в упомянутых работах [13,14,16] теория явно или неявно допускала, что внешняя среда, в которой находится многослойная сферическая наногетероструктура, является потенциальным барьером по отношению к внутренним слоям системы, поскольку только для таких закрытых систем (рис. 1,а) возможно существование стационарных состояний электронов, дырок и экситонов. Для открытых сферических многослойных наноструктур, в которых внешняя среда не является потенциальным барьером для электронов или дырок, теория, развитая в цитированных работах, не может быть применена, поскольку в таких системах квазичастицы имеют отличную от нуля вероятность пребывания на бесконечном

расстоянии от центра гетероструктуры, что кардинально изменяет волновые функции системы, приводя к возникновению квазистационарных состояний с конечным временем жизни. Насколько нам известно, теории спектров электронов и дырок и их взаимодействия между собой и с другими квазичастицами в открытых полупроводниковых сферических наногетероструктурах до сих пор не существует.

Цель настоящей работы — изучение квазистационарных спектров и определение волновых функций электронов и дырок в открытых многослойных сферических наногетероструктурах. Приближение эффективной массы, апробированное для наноструктур закрытого типа [13,16,17], позволяет не только рассчитать зависимость спектральных параметров электронов и дырок от геометрических характеристик структуры, но и при необходимости, используя полученную в этой работе полную систему волновых функций, определить гамильтониан взаимодействия с ограниченными и интерфейсными фононами и исследовать это взаимодействие.

1. Общая теория

Исследуется электронный спектр открытой сферической наногетероструктуры, которая состоит из ядра (O) и произвольного количества (*N*) слоев, помещенных в бесконечную среду (*N* + 1). Схема открытой наногетероструктуры и потенциальная энергия электрона в ней изображены на рис. 1,б. В каждом *i*-м слое электрон характеризуется эффективной массой (*m_i*) соответствующего массивного кристалла и потенциальной энергией (*U_i*), причем потенциал внешней среды считается равным нулю (*U_{N+1}* = 0).

Таким образом, в сферической системе координат с началом в центре гетероструктуры

$$m(r) = \sum_{i=0}^{N+1} m_i \sigma(r - r_i), \quad U(r) = \sum_{i=0}^{N+1} U_i \sigma(r - r_i), \quad (1)$$

где

$$\sigma(r - r_i) = \begin{cases} 1, & r_{i-1} \leq r \leq r_i, \\ 0, & 0 \leq r \leq r_{i-1}, \quad r_i < r < \infty. \end{cases} \quad (2)$$

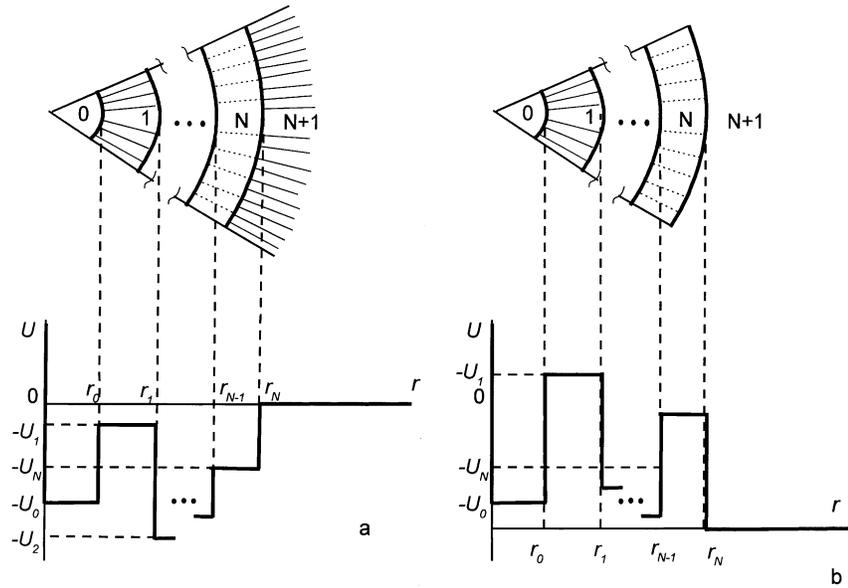


Рис. 1. Геометрическая схема и потенциал электрона в закрытой (a) и открытой (b) сферической наногетероструктуре.

Решение уравнения Шредингера

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2} \nabla \frac{1}{m(r)} \nabla + U(\mathbf{r})\right) \Psi(\mathbf{r}) = E \Psi(\mathbf{r}) \quad (3)$$

ищем в виде

$$\Psi(\mathbf{r}) = R_l(r) Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (4)$$

где

$$R_l(r) = \sum_{i=0}^{N+1} R_l^{(i)}(r) \sigma(r - r_i) \quad (5)$$

— радиальные волновые функции, а $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ — сферические гармоники.

После подстановки (4) в (3) для $R_l^{(i)}(r)$ получаем систему $N + 2$ уравнений

$$\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dR_l^{(i)}}{dr} \right) + \left[K_i^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] R_l^{(i)}(r) = 0, \quad (6)$$

где

$$K_i^2 = \frac{2m_i}{\hbar^2} (E - U_i) = \begin{cases} k_i^2, & E > U_i, \quad i = 0, \dots, N, \\ -\chi_i^2, & E \leq U_i, \quad k_{N+1} \equiv k. \end{cases} \quad (7)$$

Решения системы (6) имеют вид [18]

$$R_l^{(0)}(r) = K_0 A_l^{(0)} \left[h_l^-(K_0 r) + h_l^+(K_0 r) \right],$$

$$R_l^{(i)}(r) = K_i A_l^{(i)} \left[h_l^-(K_i r) - S_l^{(i)} h_l^+(K_i r) \right], \quad i = 1, \dots, N,$$

$$R_l^{(N+1)}(r) = k A_l \left[h_l^-(kr) - S_l h_l^+(kr) \right], \quad (8)$$

где h_l^\pm — функции Ханкеля. Коэффициент $A_l = 1/\sqrt{2\pi}$ определяется из условия нормировки радиальной волно-

вой функции

$$\int_0^\infty R_{lk}^*(r) R_{lk'}(r) r^2 dr = \delta(k - k'), \quad (9)$$

S -матрица S_l и остальные неизвестные коэффициенты $A_l^{(i)}$, $S_l^{(i)}$ определяются из системы $2(N + 1)$ граничных условий,

$$\left. \begin{aligned} R_l^{(i)}(K_i r_i) &= R_l^{(i+1)}(K_{i+1} r_i), \\ \frac{1}{m_i} \frac{dR_l^{(i)}(r)}{dr} \Big|_{r=r_i} &= \frac{1}{m_{i+1}} \frac{dR_l^{(i+1)}(r)}{dr} \Big|_{r=r_i} \end{aligned} \right\} (i=0, 1, \dots, N), \quad (10)$$

которым удовлетворяют радиальные волновые функции и их производные. Система (10) решается аналитически в общем виде. Действительно, обозначив

$$\Phi_l^{(0)}(K_0 r_0) = h_l^-(K_0 r_0) + h_l^+(K_0 r_0),$$

$$\Phi_l^{(0)\prime}(K_0 r_0) = \frac{d\Phi_l^{(0)}(K_0 r)}{dr} \Big|_{r=r_0}, \quad (11)$$

для коэффициента $S_l^{(1)}$ получим

$$S_l^{(1)} = \frac{m_1 \Phi_l^{(0)\prime}(K_0 r_0) h_l^-(K_1 r_0) - m_0 \Phi_l^{(0)}(K_0 r_0) h_l^{\prime-}(K_1 r_0)}{m_1 \Phi_l^{(0)}(K_0 r_0) h_l^+(K_1 r_0) - m_0 \Phi_l^{(0)}(K_0 r_0) h_l^{\prime+}(K_1 r_0)}. \quad (12)$$

Все остальные коэффициенты $S_l^{(i)}$ получаются из рекуррентных соотношений

$$S_l^{(i)} = \frac{m_i \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1})h_l^-(K_i r_{i-1}) - m_{i-1} \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1})h_l^-(K_i r_{i-1})}{m_i \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1})h_l^+(K_i r_{i-1}) - m_{i-1} \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1})h_l^+(K_i r_{i-1})}, \quad (13)$$

где

$$\begin{aligned} \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1}) &= h_l^-(K_{i-1}r_{i-1}) - S_l^{(i-1)}h_l^+(K_{i-1}r_{i-1}), \\ \Phi_l^{(i-1)}(K_{i-1}r_{i-1}) &= \left. \frac{d\Phi_l^{(0)}(K_{i-1}r)}{dr} \right|_{r=r_{i-1}}. \end{aligned} \quad (14)$$

Таким образом, S -матрица, которая определяет квазистационарный спектр системы, имеет вид

$$S_l(k) = \frac{m_{N+1} \Phi_l^{(N)}(K_N r_N)h_l^-(k r_N) - m_N \Phi_l^{(N)}(K_N r_N)h_l^-(k r_N)}{m_{N+1} \Phi_l^{(N)}(K_N r_N)h_l^+(k r_N) - m_N \Phi_l^{(N)}(K_N r_N)h_l^+(k r_N)}. \quad (15)$$

Так как коэффициенты $A_l^{(i)}$ теперь определяются однозначно

$$A_l^{(i)} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{k}{K_i} \prod_{p=i}^N \frac{\Phi_l^{(p)}(K_{p+1}r_p)}{\Phi_l^{(p)}(K_p r_p)}, \quad (16)$$

таким образом, однозначно определяются и радиальные волновые функции $R_{nl}(r)$, а значит и волновые функции $\Psi_{nlm}(\mathbf{r})$.

Согласно общей теории [18], полюса S -матрицы (15) нумеруются индексом $n = 1, 2, \dots, n_{\max}$ и действительная составляющая полюсов определяет энергии квазистационарных состояний (E_{nl}), а мнимая часть характеризует время жизни τ_{nl} частицы в соответствующем состоянии. Волновые функции квазистационарных состояний имеют вид

$$\Psi_{nlm}(\mathbf{r}) = R_{nl}(r)Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (17)$$

а непрерывный спектр описывается функциями

$$\Psi_{klm}(\mathbf{r}) = R_{kl}(r)Y_{lm}(\theta, \varphi). \quad (18)$$

Набор волновых функций $\Psi_{nlm}(\mathbf{r})$ и $\Psi_{klm}(\mathbf{r})$ является полным и ортонормированным. Это позволяет исследовать в представлении вторичного квантования взаимодействие электрона с квантованными полями (фононами, фотонами) в открытой сферической наногетероструктуре.

2. Квазистационарные состояния в открытой сферической наногетероструктуре

На основе теории, развитой в предыдущем разделе, изучаются квазистационарные состояния электрона и дырки в сферической наногетероструктуре GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs.

S -матрица, рассчитанная согласно (15) при $l = 0$, имеет следующий вид:

$$S_0(k) = e^{-2ikR_1} \frac{g^- + \Delta m}{g^+ + \Delta m} \frac{e^{-2\chi\rho} + \frac{g^+ - \Delta m}{g^- + \Delta m} \xi_0(k)}{e^{-2\chi\rho} + \frac{g^- - \Delta m}{g^+ + \Delta m} \xi_0(k)}, \quad (19)$$

где

$$\xi_0(k) = \frac{m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(k R_0) + m_0 R_0 \chi + \Delta m}{m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(k R_0) - m_0 R_0 \chi + \Delta m}, \quad (20)$$

$\rho = R_1 - R_0$, $\Delta m = m_0 - m_1$, $g^\pm = (m_0 \chi \pm i k m_1) R_1$, а при $l = 1$ получаем

$$S_1(k) = e^{-2ikR_1} G_+(k) \frac{e^{-2\chi\rho} - G_-^*(k) \xi_1(k)}{e^{-2\chi\rho} - G_-(k) \xi_1(k)}, \quad (21)$$

где

$$\begin{aligned} G_\pm(k) &= \frac{2\Delta m(1 \pm ikR_1)(xR_1 \pm 1) + R_1^2[m_0\chi^2 + m_1k^2 \pm k\chi R_1(km_1 + i\chi m_0)]}{2\Delta m(1 - ikR_1)(xR_1 + 1) + R_1^2[m_0\chi_0^2 + k\chi R_1(km_1 - i\chi m_0)]}, \\ \xi_1(k) &= \frac{2\Delta m\eta_- (1 + xR_0) + R_0^2[m_0\chi^2\eta_- + m_1k^2(1 + \chi R_0)]}{2\Delta m\eta_- (1 - xR_0) + R_0^2[m_0\chi^2\eta_+ + m_1k^2(1 + \chi R_0)]}, \\ \eta_\pm &= 1 \pm kR_0 \operatorname{ctg}(kR_0), \end{aligned} \quad (22)$$

$G_-^*(k)$ — комплексно-сопряженное к $G_-(k)$, где k и χ — действительные величины.

Из-за трансцендентности уравнений $S_l^{-1}(k) = 0$ полюса обеих S -матриц (19), (21) аналитически определить невозможно, поэтому далее они рассчитываются численно. Только при условии достаточно мощного барьера ($\chi\rho \gg 1$) выражения для S -матриц упрощаются и соответствующие уровни квазистационарного спектра определяются уравнениями

$$\xi_l(k) = 0, \quad l = 0, 1. \quad (23)$$

Для времен жизни электрона или дырки в соответствующих состояниях получаются следующие аналитические выражения:

$$\tau_{n0} = \frac{\hbar e^{2\chi_n \rho} \left[m_1^2 k_n^2 + \left(m_0 \chi_n + \frac{\Delta m}{R_1} \right)^2 \right] \eta_n (\chi_n R_0 + 1)}{16 E_{n0} m_1^2 \chi_n^3 k_n}, \quad (24)$$

$$\begin{aligned} \tau_{n1} &= \frac{\hbar e^{2\chi_n \rho} \left[\alpha_1^2 (4 + \beta_1^2) + 2\mu\alpha_1\gamma_1 (2 + \beta_1) + \mu^2\gamma_1^2 (1 + \beta_1) \right] \frac{\mu^2\gamma_0^2 - \mu\alpha_0\gamma_0 - 2\alpha_0^2 + \delta}{\mu^2\chi_n^6 k_n^3 R_0^3 R_1^6}}{16 E_{n1}}, \end{aligned} \quad (25)$$

где

$$\eta_n = \left(m_0^2 \chi_n^2 + m_1^2 k_n^2 + m_0 \Delta m \frac{\chi_n}{R_1} \right),$$

$$\alpha_p = R_p \chi_n \pm 1, \quad \beta_p = R_p^2 k_n^2, \quad \gamma_p = 1 + \alpha_p^2 \quad (p = 0, 1),$$

$$\delta = 3\beta_0 + R_0 \chi_0 \beta_0 (2 + \alpha_0), \quad \mu = \frac{m_0}{m_1}.$$

Конкретный расчет характеристик электронного и дырочного спектров выполнялся для сферической наногетероструктуры GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs согласно развитой выше теории.

Эффективная масса электрона и дырки как функция концентрации (x) Al в составе слоя Al_xGa_{1-x}As определяется из соотношений [19,20] $m_1^e = (0.067 + 0.083x)m_0$, $m_1^h = (0.35 + 0.05x)m_0$ (m_0 — масса свободного электрона). Высота потенциального барьера (в эВ), который создается этим слоем, для электрона и дырки соответственно равна

$$\begin{aligned} V_e &= 0.6(1.135x + 0.37x^2), \\ V_h &= 0.43(1.55x + 0.37x^2). \end{aligned} \quad (26)$$

На рис. 2 и 3 приведены результаты расчета зависимости энергий (E_{nl}) и времен жизни (τ_{nl}) электрона и дырки в состояниях с орбитальными квантовыми числами $l = 0$ и $l = 1$ от ширины барьера (n — количество монослоев Al_xGa_{1-x}As) при фиксированном радиусе ямы (n_{GaAs} — количество монослоев GaAs) для наногетеросистемы GaAs/Al_xGa_{1-x}As/GaAs. Из рис. 2, 3 видно, что положение энергетических уровней (E_{nl}) электрона и дырки практически не изменяется при изменении толщины барьера (Al_xGa_{1-x}As). С увеличением толщины

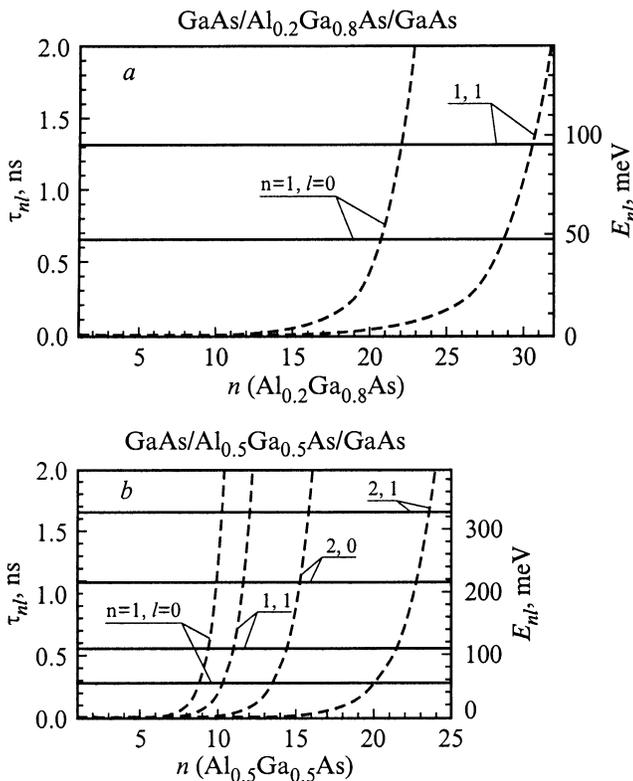


Рис. 2. Зависимость энергетических уровней E_{nl} (сплошные линии) и времен жизни τ_{nl} (штриховые линии) электронов в квазистационарных состояниях от количества монослоев барьера Al_xGa_{1-x}As при ширине ямы 15 монослоев GaAs и концентрации x: a — 0.2, b — 0.5.

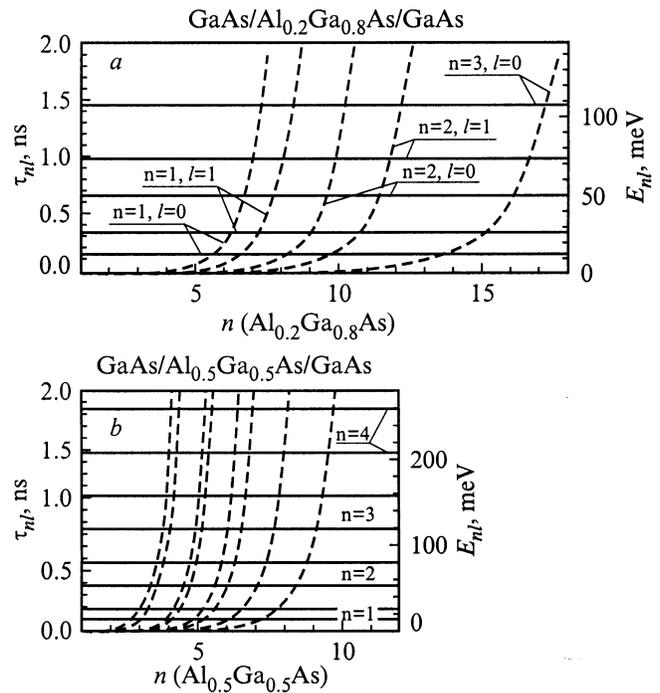


Рис. 3. Зависимость энергетических уровней E_{nl} (сплошные линии) и времен жизни τ_{nl} (штриховые линии) дырки в квазистационарных состояниях от количества монослоев барьера Al_xGa_{1-x}As при ширине ямы $n = 15$ монослоев GaAs и концентрации x: a — 0.2, b — 0.5.

барьера время жизни (τ_{nl}) обеих квазичастиц экспоненциально увеличивается во всех состояниях. При фиксированной толщине барьера время жизни тем больше, чем меньше энергия соответствующего состояния. Это понятно из физических соображений, поскольку уменьшение энергии квазичастиц в фиксированном состоянии эквивалентно увеличению "эффективной мощности барьера", что препятствует проникновению их через барьер, а значит увеличивает время жизни в квантовой яме. Поскольку $m_h > m_e$, при равных условиях время жизни дырки всегда больше, чем время жизни электрона, так как дырке тяжелее проникать сквозь барьер.

На рис. 4, a, b приведены результаты расчета зависимости энергий (E_{01}) и времен жизни (τ_{01}) электрона (a) и дырки (b) в основном состоянии от толщины материала (n_{GaAs}) при фиксированной толщине ($n = 5$) барьера в зависимости от концентрации (x) Al. Из рис. 4 видно, что увеличение ширины квантовой ямы при фиксированной концентрации x приводит к уменьшению абсолютной величины энергии основного состояния. При этом, как уже отмечалось, время жизни электрона увеличивается. Увеличение концентрации согласно (26) увеличивает высоту потенциального барьера, что приводит к увеличению как энергии основного состояния, так и его времени жизни.

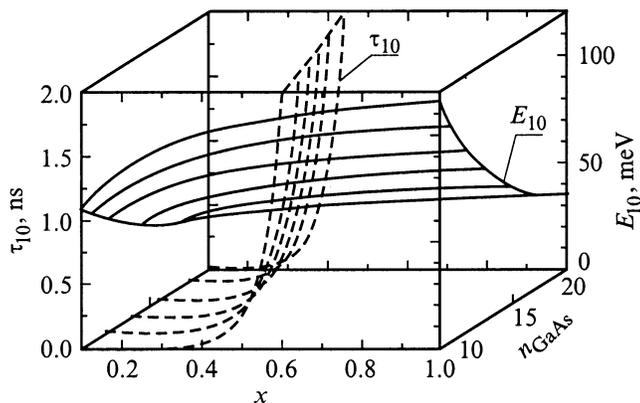


Рис. 4. Зависимость энергии основного состояния (сплошные линии) и времен жизни (штриховые линии) электрона от концентрации (x) и от числа монослоев GaAs при 10 монослоях $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

Положения энергетических уровней электрона и дырки мало чувствительны к изменению толщины барьеров, но очень чувствительны к изменению ширины квантовых ям. Время жизни квазичастиц в квазистационарных состояниях весьма существенно изменяется при изменении как ширины ямы, так и ширины барьеров.

Таким образом, предложенная теория позволяет получить полный набор волновых функций и рассчитать спектральные характеристики сложных сферических квантовых ям (наногетероструктур) с квазистационарными состояниями.

Наконец, следует отметить одно важное обстоятельство. Развита здесь общая теория применима для таких наногетероструктур, составные части которых в массивном состоянии описываются однозонными моделями для электронов и дырок. Теория квазичастиц в наногетероструктурах с многозонными моделями массивных аналогов должна основываться на матричной форме исходного уравнения Шредингера (3). Однако, поскольку в квантовых точках квазичастицы не обладают квазиимпульсом, в моделях, не учитывающих перемешивание состояний [21], остаются лишь эффективные массы и потенциальные энергии всех дырок. Вследствие этого матричная форма уравнения Шредингера для дырок распадается на соответствующее число независимых однотипных уравнений. Таким образом, в случае необходимости расчет для спектра и времен жизни других дырок в рамках модели без перемешивания состояний выполняется аналогично.

Список литературы

- [1] А.И. Екимов, А.А. Онущенко. ФТП, **16**, 775 (1982).
- [2] H. Weller, H.M. Schmidt, U. Koch, A. Fojtik, S. Baral, A. Henglein, W. Kunath, K. Weiss, E. Dieman. Chem. Phys. Lett., **124**, 557 (1986).

- [3] A. Nakamura, H. Yamada, T. Tokizaki. Phys. Rev. B, **40**, 8585 (1989).
- [4] M.G. Bawendi, W.L. Wilson, L. Rothberg, P.J. Carroll, T.M. Jedju, M.L. Steigerwald, L.E. Brus. Phys. Rev. Lett., **65**, 1623 (1990).
- [5] A.I. Ekimov, A.L. Efros, A.A. Onushenko. Sol. St. Commun., **56**, 921 (1985).
- [6] Ал.Л. Эфрос, А.Л. Эфрос. ФТП, **16**, 1209 (1982).
- [7] T. Takagahara. Phys. Rev. B, **36**, 9293 (1987).
- [8] Y. Kayanuma. Phys. Rev. B, **38**, 9797 (1988).
- [9] E. Hanamura. Phys. Rev. B, **37**, 1273 (1988).
- [10] M. Klein, F. Hache, D. Richard, C. Flytzanis. Phys. Rev. B, **42**, 11 123 (1990).
- [11] P.A. Knipp, T.L. Reinecke. Phys. Rev. B, **48**, 18 037 (1993).
- [12] J.C. Morin, B. Stebe, E. Kartheuser. Phys. Rev. B, **50**, 14 302 (1994).
- [13] D. Schooss, A. Mews, A. Eychmuller, H. Weller. Phys. Rev. B, **49**, 17 072 (1994).
- [14] J.W. Haus, H.S. Zhou, I. Honma, H. Komiyama. Phys. Rev. B, **47**, 1359 (1993).
- [15] A. Mews, A.V. Kadavanich, U. Banin, A.P. Alivasatos. Phys. Rev. B, **53**, 13 242 (1996).
- [16] Н.В. Ткач. ФТТ, **39**, 1109 (1977).
- [17] M. Tkach, V. Holovatsky, O. Voitsekhivska, M. Min'kova. Phys. St. Sol., **203**, 373 (1997).
- [18] А.И. Базь, Я.Б. Зельдович, А.М. Переломов. *Рассеяния, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике* (М., Наука, 1971) с. 463.
- [19] G.Q. Hai, F.M. Peters, J.T. Devreese. Phys. Rev. B, **48**, 4666 (1993).
- [20] S. Le Godd, B. Stebe. Phys. Rev. B, **47**, 1383 (1993).
- [21] P.C. Sercel, K.J. Vahala. Phys. Rev. B, **42**, 3690 (1990).

Редактор В.В. Чалдышев

Peculiarities of electron and hole spectra on the example of a spherical nanoheterosystem $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$

M.V. Tkach, V.A. Holovatsky, O.M. Voitsekhivska

Chernivtsi State University,
274012 Chernivtsi, Ukraine

Abstract Spectra of the quasistationary states of electrons and holes in spherical semiconductor nanoheterosystems have been obtained in the effective mass approximation on the base of the S -matrix. The numerical calculation was done on the example of a $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ system. The total set of electron and hole wave functions was obtained for an arbitrary number of shells of the nanoheterosystem. The dependencies of the energy levels and electron (hole) life-times on geometric sizes of $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ nanosystems and on the $\text{Al}(x)$ density were analyzed.