ВПЛИВ ДОМІШОК НА ЕЛЕКТРОН-ДІРКОВІ СПЕКТРИ СФЕРИЧНОЇ КВАНТОВОЇ ТОЧКИ

Василь БОЙЧУК, Ігор БІЛИНСЬКИЙ, Роман ЛЕШКО

Дрогобицький державний педагогічний університет
імені Івана Франка, кафедра теоретичної фізики,
вул. Стрийська 3, Дрогобич 82100

Редакція отримала статтю 18 травня 2010 р.

Досліджено вплив позитивно й негативно зарядженої домішок на енергетичний спектр електрон-діркової пари в сферичній квантовій точці. Енергія знайдена лінійним варіаційним методом на основі хвильових функцій, які описують комплекси: заряджений іон і квазічастинка. Отримані результати показали, що наявність іона домішки призведе до зниження енергії електрон-діркової пари порівняно з випадком без домішки. Встановлено також, що негативно заряджений іон домішки сильніше зменшує енергію, ніж позитивно заряджений іон. Для квантової точки гетеросистеми Si/SiO_2 шляхом аналізу залежності середніх відстаней між частинками визначено, що наявність іона домішки перешкоджає утворенню зв'язаного екситонного стану.

1. ВСТУП

Останнім часом проведено значну кількість теоретичних робіт, присвячених дослідженню електронних [1–3], діркових [4–6], донорних [7–10], акцепторних [6, 11–12] та екситонних [2, 6, 13–14] станів у сферичних квантових точках (КТ) у рамках одно- та багатозонних моделей. Одержані результати демонструють якісне та добре кількісне узгодження з експериментальними роботами, що стосуються квантових точок [15-21].

Як у масивних напівпровідниках, так і в КТ оптичні збудження можуть привести до появи екситонних станів. Зважаючи на те, що реальні структури можуть містити різні дефекти, зазначені стани можуть змінюватися. Наявність іона домішки у КТ приведе до зміни електрон-діркового спектру. Хоча існує значне число робіт [22-24], в яких досліджуються екситонні комплекси, пов'язані з іоном домішки, вони не враховують, що заряджені частинки індукують поляризаційні заряди на гетеромежах і взаємодіють з ними. Для гетеросистем, у яких існує велика різниця між діелектричними проникностями, вплив поляризаційних зарядів буде значним. Зміна діелектричних властивостей матриці з урахуванням поляризаційних зарядів веде до вагомої зміни енергії як електрона та дірки [1-2, 6], так і енергії екситона

PACS numbers: 71.55.-i, 73.21.La, 79.60.Jv

[6, 14]. Зважаючи на це все, метою цієї роботи є визначення енергії електрон-діркової пари у сферичній КТ за наявності в ній зарядженого іона домішки з урахуванням поляризаційних зарядів, що виникають на гетеромежах.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧІ ТА ЇЇ РОЗВ'ЯЗАННЯ

У статті розглянемо сферичну наногетероструктуру. Вона складається з нанокристала з діелектричною проникністю ε_1 радіусом a, поміщеного в матрицю з діелектричною проникністю ε_2. У центрі квантової точки знаходиться заряджений іон домішки.

Гамільтоніан електрон-діркової пари в наближенні однозонних моделей зони провідності та валентної зони з врахуванням параболічності закону дисперсії набуває вигляду:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_e + \mathbf{H}_h + W(\vec{r}_e, \vec{r}_h) + E_g, \tag{1}$$

де E_g – енергія забороненої зони,

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} &= -\frac{1}{2}\nabla\frac{1}{m^*_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}}\nabla + U_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) + V\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) + V_p\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) \\ &= \mathbf{H}^0_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} + V_p\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) \end{aligned} \tag{2}$$

– гамільтоніани електрона (дірки). У цій роботі для запису всіх формул використовуємо атомну систему одиниць ($\hbar = 1, e = 1, m_0 = 1$). Потенціальну енергію взаємодії електрона з діркою визначено із точного розв'язку рівняння Пуассона так само, як у роботі [2]. Потенціальна енергія, зумовлена розривом зони провідності та валентної зони (потенціали обмеження для носіїв) вибрана у вигляді сферичної прямокутної потенціальної ями:

$$U_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) = \begin{cases} 0, & r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} \le a, \\ U^0_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}, & r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} > a. \end{cases} \tag{3}$$

Потенціальну енергію взаємодії зарядженого іона домішки з електроном (діркою) визначено також з розв'язку рівняння Пуассона і записано наступним чином:

$$V_c\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}\right) = \mp q \begin{cases} \frac{1}{\varepsilon_1 r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}} + U^*(a), & r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} \le a, \\ \frac{1}{\varepsilon_2 r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}}}, & r_{\left\{\begin{smallmatrix} e \\ h \end{smallmatrix}\right\}} > a, \end{cases} \tag{4}$$

де $U^*(a) = (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/(\varepsilon_1\varepsilon_2 a)$, а $\mp$ – для позитивно та негативно зарядженого іона домішки відповідно. У гамільтоніані (1) враховано, що заряджені квазічастинки індукують поляризаційні заряди і взаємодіють

з ними. Потенціальну енергію цієї взаємодії у випадку стрибкоподібної зміни діелектричної проникності можна записати за допомогою формули:

$$V_p\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}\right)=\begin{cases}\dfrac{\gamma}{2a\varepsilon_1}\left[\dfrac{a^2}{a^2-r^2_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}}+\dfrac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\mathrm{F}\left(1,\gamma_1;\gamma_2;\left(\dfrac{r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}}{a}\right)^2\right)\right], & r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}<a,\\ \dfrac{\gamma}{2a\varepsilon_2}\left[\dfrac{a^2}{a^2-r^2_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}}+\left(\dfrac{a}{r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}}\right)^2\mathrm{F}\left(1,\gamma_1;\gamma_2;\left(\dfrac{a}{r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}}\right)^2\right)\right], & r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}>a,\end{cases}\tag{5}$$

де $\gamma=(\varepsilon_1-\varepsilon_2)/(\varepsilon_1+\varepsilon_2)$, $\gamma_1=\varepsilon_2/(\varepsilon_1+\varepsilon_2)$, $\gamma_2=\varepsilon_2/(\varepsilon_1+\varepsilon_2)+1$, $\mathrm{F(a,b;c;x)}$ – узагальнена гіпергеометрична функція. Підставивши (2) у гамільтоніан (1), отримано:

$$\begin{aligned}&\mathbf{H}=\mathbf{H}_e+\mathbf{H}_h+E_g+W\left(\vec{r}_e,\vec{r}_h\right)=\\&=\mathbf{H}_e^0+\mathbf{H}_h^0+E_g+V_p\left(r_e\right)+V_p\left(r_h\right)+W\left(\vec{r}_e,\vec{r}_h\right)=\\&=\mathbf{H}_e^0+\mathbf{H}_h^0+E_g+\mathbf{H}'.\end{aligned}\tag{6}$$

Рівняння Шредінгера з гамільтоніанами $\mathbf{H}^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}$ розв'язуються точно:

$$\mathbf{H}^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}\psi^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\};n,l,m}=E^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\};n,l}\psi^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\};n,l,m},\tag{7}$$

де $\psi^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\};n,l,m}\left(\vec{r}_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}\right)=R^0_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\};n,l}\left(r_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}\right)Y_{l,m}\left(\theta_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}},\varphi_{\left\{\begin{smallmatrix}e\\h\end{smallmatrix}\right\}}\right)$.

Нехай $q=+1$ (позитивно заряджений іон домішки D^+). Тоді розв'язки рівняння (7) для електрона можна виразити функціями Віттекера та Кулона, як в [7]. Для дірки з рівняння (7) можна отримати радіальні рівняння всередині й зовні КТ. Нехай $r_h\le a$, тоді радіальне рівняння матиме вигляд:

$$\begin{aligned}&-\frac{1}{2m^*_{h,1}}\left(\frac{\partial^2}{\partial r_h^2}+\frac{2}{r_h}\frac{\partial}{\partial r_h}-\frac{l\left(l+1\right)}{r_h^2}\right)R^0_{h,1}\left(r_h\right)+\\&+\left(\frac{1}{\varepsilon_1 r_h}+U^*(a)\right)R^0_{h,1}\left(r_h\right)=E^0_h\,R^0_{h,1}\left(r_h\right).\end{aligned}$$

Оскільки розглядаються зв'язані стани, то $U^*(a)<E<U^0_h$, тому введено величини $\xi_1=\beta_1 r_h$, $\beta_1^2=2m^*_{h,1}\tilde{E}_1$, $\delta_1=-m^*_{h,1}/(\varepsilon_1\beta_1)$, $R^0_{h,1}(\xi_1)=g_1(\xi_1)/\xi_1$, $\tilde{E}_1=E^0_h-U^*(a)>0$ і одержано рівняння, що відрізняється від рівняння Кулона знаком біля δ_1:

$$\frac{\partial^2}{\partial\xi_1^2}g_1\left(\xi_1\right)+\left[1+\frac{2\delta_1}{\xi_1}-\frac{l(l+1)}{\xi_1^2}\right]g_1\left(\xi_1\right)=0.$$

Його розв'язком буде регулярна функція Кулона:

$$g_1(\xi_1) = D_1 \mathrm{F}_l(-\delta_1, \xi_1). \tag{8}$$

Якщо $r_h > a$, то можна отримати рівняння Віттекера, розв'язком якого є функція Віттекера:

$$g_2(\xi_2) = D_2 \mathrm{W}_{\lambda_2, l+1/2}(\xi_2), \tag{9}$$

де $\xi_2 = \alpha_2 r_h$, $(\alpha_2)^2 = -8m^*_{h,2}\tilde{E}_2$, $\lambda_2 = 2m^*_{h,2}/(\varepsilon_2\alpha_2)$, $R^0_{h,2}(\xi_2) = g_2(\xi_2)/\xi_2$, $\tilde{E}_2 = E^0_h - U^0_h$. На основі граничних умов

$$R_1(r_h)|_{r_h=a} = R_2(r_h)|_{r_h=a}, \qquad \frac{1}{m^*_1}\frac{\partial}{\partial r_h}R_1(r_h)\bigg|_{r_h=a} = \frac{1}{m^*_2}\frac{\partial}{\partial r_h}R_2(r_h)\bigg|_{r_h=a} \tag{10}$$

можна визначити спектр дірки у КТ з позитивно зарядженим іоном домішки. Хоча дірка відштовхується від іона, однак потенціал обмеження утримує дірку в КТ.

Якщо $q = -1$ (негативно заряджений іон домішки D^-), то можна скористатися тими ж розв'язками, що і для D^+ , провівши формальну заміну у формулах $e \leftrightarrow h$.

Для обчислення енергії основного стану системи використано лінійний варіаційний метод. Хвильову функцію для електрон-діркової пари, що пов'язана з іоном домішки, вибрано у вигляді:

$$\psi_{ex}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \sum_i c_i \psi^0_{e;n_i,l_i,m_i}(\vec{r}_e)\, \psi^0_{h;n_i,l_i,m_i}(\vec{r}_h). \tag{11}$$

Підстановкою (11) у рівняння Шредінгера з гамільтоніаном (6) отримано систему лінійних однорідних рівнянь відносно коефіцієнтів c_i

$$\sum_i \left[\left(E^0_{e;n_i,l_i} + E^0_{h;n_i,l_i} + E_g - E\right)\delta_{n_j,n_i}\delta_{l_j,l_i}\delta_{m_j,m_i} + \mathrm{H}'_{ji}\right] c_i = 0,$$

з якої знайдено енергію основного стану системи.

3. АНАЛІЗ ОДЕРЖАНИХ РЕЗУЛЬТАТІВ

У статті обчислена енергія основного стану електрон-діркової пари, що пов'язана із зарядженою домішкою в центрі сферичної КТ гетеросистеми Si/SiO_2 . У цій роботі ми нехтували анізотропністю ефективної маси електрона у кремнію, а для обчислень брали усереднене за напрямками значення ефективної маси електрона. В обчисленнях для дірки використовували масу важкої дірки. Обчислені та експериментальні залежності енергії від розмірів КТ зображені на рис. 1.

Якщо врахувати умову нормування хвильової функції, то можна визначити коефіцієнти c_i і отримати явний вигляд хвильової функції ψ_{ex} , що дає змогу обчислити середні відстані зарядів до центру КТ

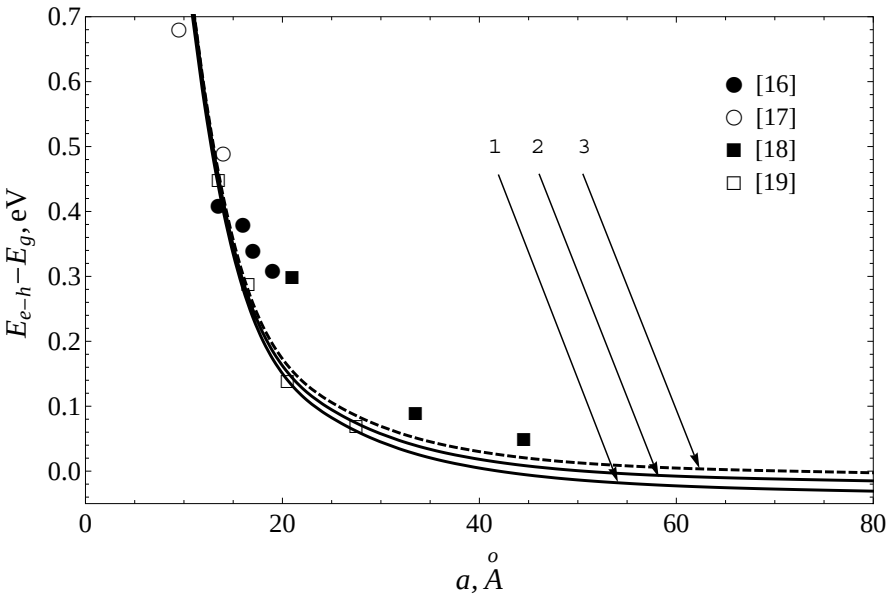

Рис. 1. Енергія основного стану електрон-діркової пари, що взаємодіє з негативно D^- (крива 1) та з позитивно D^+ зарядженою (крива 2) домішкою. Штрихова крива 3 позначає енергію екситона у КТ без домішки, що одержана на основі результатів роботи [2].

та між ними (рис. 2, 3). Аналіз показує, що енергія електрон-діркової системи в основному визначається ефектом розмірного квантування та кулонівською взаємодією між зарядами, яка залежить від відстаней між ними.

За відсутності домішки середні відстані кожної з частинок до центру пропорційно зростають при збільшенні радіуса КТ (штрихові криві 3, 4 на рис. 2), причому середня відстань для дірки є меншою, ніж для електрона, внаслідок того, що $m_h^* > m_e^*$. Міжчастинкова відстань $< r_{eh} >$ для малих радіусів зростає пропорційно радіусу, однак для $a > 100$ Å виходить на насичення (штрихова крива 1, рис. 3). Тоді $< r_{eh} >$ прямує до величини, що відповідає середній відстані для екситона у масивному кристалі кремнію $< r_{eh} >= 54.8$ Å. Енергія електрон-діркової пари у КТ прямує до енергії екситона у масивному кристалі Si, $E_{e-h} = -17.25$ meV.

Коли в центрі КТ знаходиться негативно заряджена домішка, то величини $< r_{e,D^-} >$ і $< r_{eh,D^-} >$ пропорційні радіусу КТ, а $< r_{h,D^-} >$ в області $a > 80$ Å виходить на насичення з $< r_{h,D^-} >= 19.5$ Å (рис. 2, крива 1). Отже в системі утворюється зв'язаний дірково-домішковий стан. Наявність домішки веде до зменшення відстані дірки і збільшення відстані електрона до центру КТ. Взаємодія дірки з іонізованою акцепторною домішкою (D^-) для великих радіусів КТ веде до пониження діркових енергетичних рівнів – вони будуть знаходитись нижче дна потенціальної ями $U(r)$ для дірки.

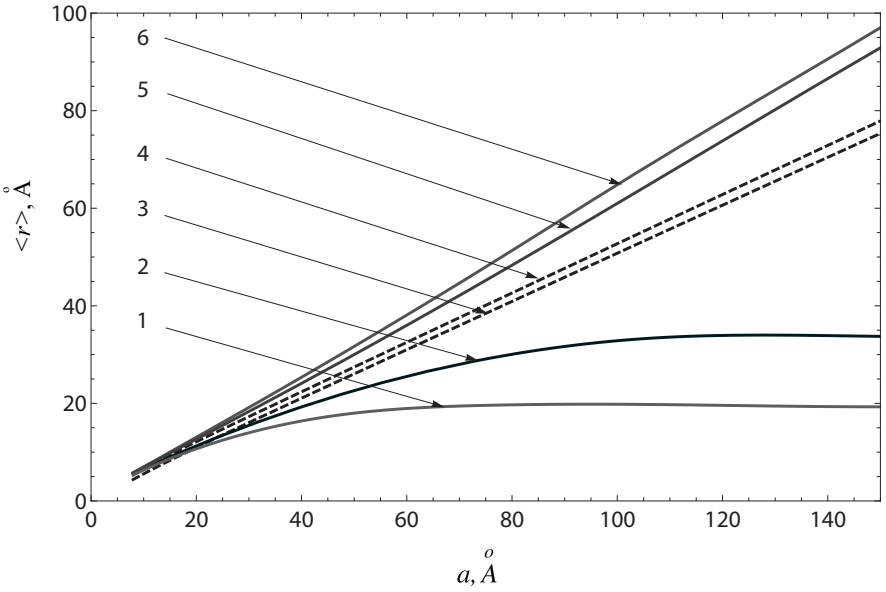

Рис. 2. Залежність середніх відстаней електрона та дірки від радіуса сферичної КТ. 1 – $< r_{h,D^-} >$, 2 – $< r_{e,D^+} >$, 3 – $< r_h >$, 4 – $< r_e >$, 5 – $< r_{h,D^+} >$, 6 – $< r_{e,D^-} >$.

На відміну від діркових, електронні рівні при взаємодії електрона з негативним іоном домішки для великих радіусів КТ незначно відрізнятимуться від енергії електрона без домішки. У цьому випадку і вплив поляризаційних зарядів буде незначний. Крім того, потенціальна енергія елекрон-діркової взаємодії ще зблизить електрон і дірку за енергетичною шкалою. Саме ці фактори спричинять зменшення енергії електрон-діркової пари, що пов'язана з іоном акцепторної домішки, від відповідної енергії екситона без домішки у випадку великих радіусів КТ (крива 1, рис. 1). Дещо інша ситуація буде для малих радіусів. Енергія електронних рівнів завдяки потенціалу конфайменту та взаємодії з поляризаційними зарядами збільшиться, адже при малих радіусах вплив поляризаційних зарядів, що виникають на гетеромежах, досить значний. Такі ж фактори збільшать енергію електрона. Все це призведе до зростання енергії електрон-діркової пари за наявності іона акцепторної домішки для малих радіусів КТ порівняно з великими. Однак енергія системи зарядів в цьому випадку буде меншою, ніж без домішки для всієї області зміни радіуса (крива 1 на рис. 1).

Наявність у центрі КТ домішки D^+ стає причиною того, що при $a > 100$ Å утворюється зв'язаний електрон-домішковий стан з $< r_{e,D^+} >= 33.4$ Å. Енергія системи також монотонно спадає і задається кривою 2 (рис. 1). Одержані результати енергії електрон-діркової пари є більші від відповідних результатів для D^-.

Як випливає із зазначеного вище, характерні відстані для розгляду-

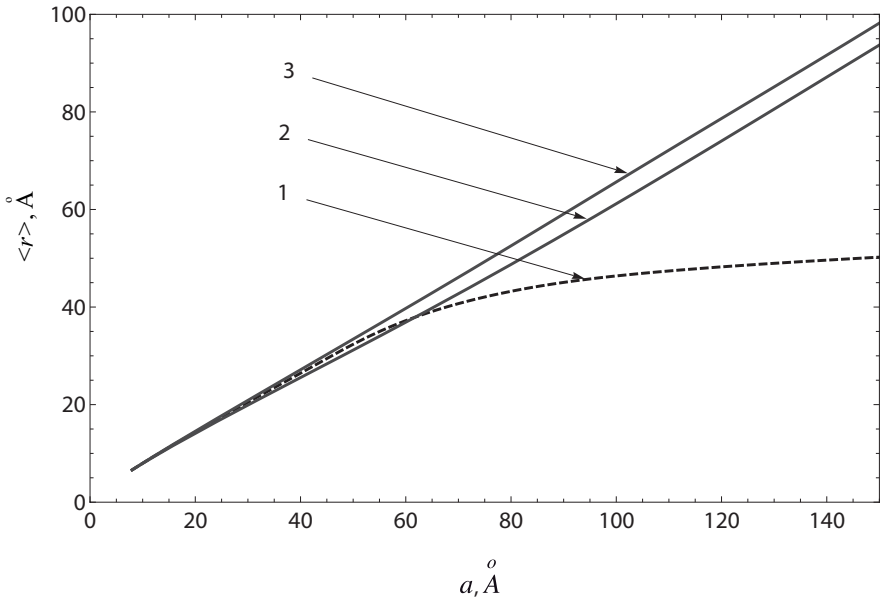

Рис. 3. Залежність середньої міжчастинкової (електрон-діркової) відстані від радіуса КТ. 1 – $< r_{eh} >$, 2 – $< r_{eh,D^-} >$, 3 – $< r_{eh,D^+} >$.

ваних трьох випадків є різними: в екситонного стану вона найбільша, а для D^- – найменша. Цим і визначається енергія системи зарядів. Без домішок вона найбільша, коли ж є домішка D^+ – енергія менша, а з домішкою D^- – ще менша. Самі характерні відстані визначаються, поряд з іншими параметрами КТ, відповідними ефективними масами у нанокристалі кремнію. Екситонний стан задається зведеною масою ($\mu = 0.165$), дірковий зв'язаний стан – ефективною масою дірки ($m_h^* = 0.459$), а електронний зв'язаний стан визначається ефективною масою електрона ($m_e^* = 0.258$).

ЛІТЕРАТУРА

[1] *Бойчук В.И., Кубай Р.Ю.* ФТТ. 2001. **43**. N 2. 226–232.

[2] *Бойчук В.І., Кубай Р.Ю., Годованець Г.М., Шевчук І.С.* ЖФД. 2006. **10**. N 3. 220–226.

[3] *Бойчук В.І., Білинський І.В., Лешко Р.Я.* Фіз. і хім. тверд. тіла. 2009. **10**. N 3. 524–528.

[4] *Pokatilov E.P., Fomin V.M., Devreese J.T.* Phys. Rev. B. 2001. **64**. N 24. 245328–245344.

[5] *Moskalenko A.S., Berakdar J., Prokofiev A.A., [and al.].* Phys. Rev. B. 2004. **76**. N 8. 085427–085436.

[6] *Boichuk V.I., Bilynskyi I.V., Leshko R.Ya.* Condensed Matter Physics. 2010. **13**. N 1. 13702(1)–13702(12).

[7] *Ткач М.В., Головацький В.А., Березовский Я.М.* Фіз. і хім. тверд. тіла. 2003. **4**. N 2. 213–220.

[8] *Бойчук В.І., Білинський І.В., Лешко Р.Я.* Науковий вісник Чернівецького університету. Фізика. Електроніка. 2008. N 420. 5–11.

[9] *Boichuk V.I., Bilynskyi I.V., Leshko R.Ya.* Ukr. J. Phys. 2008. **53**. N 10. 991–996.

[10] *Boichuk V.I., Bilynskyi I.V., Leshko R.Ya.* Condensed Matter Physics. 2008. **11**. N 4. 653–661.

[11] *Линник Т.Л., Шека В.И.* ФТТ. 1999. **41**. N 9. 1556–1563.

[12] *Boichuk V.I., Bilynskyi I.V., Leshko R.Ya., Shakleina I.O.* Ukr. J. Phys. 2010. **55**. N 3. 326–334.

[13] *Laheld U.E.H., Einevoll G.T.* Phys. Rev. B. 1997. **55**. N 8. 5184–5204.

[14] *Купчак И.М., Корбутяк Д.В., Крюченко Ю.В. [и др.].* ФТТ. 2006. **40**. N 1. 98–107.

[15] *Dabbousi B.O., Bawendi M.G., Onitsuka O.* Appl. Phys. Lett. 1995. **66**. N 11. 1316–1318.

[16] *Kanzawaa Y., Kageyamaa T., Takeokaa S., [and al.].* Solid State Commun. 1997. **102**. N 7. 533–537.

[17] *Guha S., Qadri B., Musket R.G., [and al.].* J. Appl. Phys. 2000. **88**. N 7. 3954–3957.

[18] *Takeoka S., Fujii M., Hayashi S.* Phys. Rev. B. 2000. **62**. N 24. 16820–16825.

[19] *Watanabe K., Fujii M., Hayashi S.* J. Appl. Phys. 2001. **90**. N 9. 4761–4766.

[20] *Martin J.L., Riera R., Cruz S.A.* J. Phys.: Cond. Mat. 1998. **10**. N 6. 1349–1361.

[21] *Wolkin M.V., Jorne J, Fauchet P.M., [and al.].* Phys. Rev. Lett. 1999. **82**. N 1. 197–200.

[22] *Кревчик В.Д., Левашов А.В.* ФТП. 2002. **36**. N 2. 216-220.

[23] *Кревчик В.Д., Левашов А.В.* ФТП. 2006. **48**. N 3. 548-550.

[24] *Stebe B., Assaid E., Dujardin F., [and al.].* Phys. Rev. B. 1996. **54**. N 24. 785-793.

THE EFFECT OF IMPURITIES ON THE ELECTRON-HOLE SPECTRUM IN THE SPHERICAL QUANTUM DOT

Vasil BOICHUK, Ihor BILYNSKYI, Roman LESHKO

Ivan Franko Drohobych State Pedagogical University
Department of Theoretical Physics,
3 Stryiska Str., 82100 Drohobych, Lviv region, Ukraine, 82100

The effect of the positively and negatively charged impurities on the spectrum of electron-hole pair was studied. The energy was calculated by the linear variational method on the basis of wave functions which describe the complexes such as charged ion and quasiparticle. The obtained results show that the presence of an ion of the impurity leads to a decrease of the electron-hole energy in comparison with the case without the impurity. It is established that the negatively charged ion of the impurity decreases the energy more strongly than the positively charged ion. For the quantum dot heterosystem Si/SiO_2 on the basis of the analysis of the average distances between particles, it is defined that the presence of an ion of the impurity hinders the creation of a bound exciton state.