КОНДЕНСИРОВАННЫЕ СРЕДЫ И МЕЖФАЗНЫЕ ГРАНИЦЫ, Том 15, № 2, С. 133—138

УДК 538.915

ПРАВИЛА ОТБОРА ДЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ПЕРЕХОДОВ В ОТКРЫТЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ

© 2013 **Н. В. Королев, С. Е. Стародубцев, Е. Н. Бормонтов, А. Ф. Клинских**

Воронежский государственный университет, Университетская пл., 1, 394006 Воронеж, Россия

Поступила в редакцию 01.04.2013 г.

Аннотация. В рамках модели открытой сферической квантовой точки с дельта-потенциалом на границе рассчитана энергетическая структура рассматриваемой системы в режиме сильного конфайнмента, представляющая собой квазистационарные электронные состояния и стационарные состояния тяжелых и легких дырок. На основе полученного спектра и волновых функций рассчитан интеграл перекрытия как величина, характеризующая правила отбора для межзонных оптических переходов. Показано, что значения интеграла перекрытия для открытой квантовой системы в сравнении с закрытой, претерпевают как количественные, так и качественные изменения. В частности, для переходов из состояний легких дырок в электронные состояния становятся разрешенными все переходы с сохранением орбитального квантового числа независимо от радиального квантового числа.

Ключевые слова: открытая квантовая точка, спектр квазистационарных состояний, интеграл перекрытия, межзонные оптические переходы.

ВВЕДЕНИЕ

Оптические методы исследования квантовых точек (КТ), такие как наведенное поглощение, люминесцентная спектроскопия [1, 2] направлены на изучение как фундаментальных закономерностей физических свойств нульмерных систем [3], так и на определение возможных областей их практического применения [4—8].

Если рассматривать исключительно электронно-дырочные состояния КТ, то основным инструментом исследования является методика измерения спектров поглощения, которая характеризует оптические межзонные переходы. В первом приближении межзонные переходы между стационарными состояниями электрона и дырки для однородных параболических зон были рассмотрены в работе [9], в которой сформулировано правило отбора по орбитальному и радиальному квантовым числам. Развитием данного подхода явилось включение в модель неоднородности энергетического спектра в области, соответствующей валентной зоне объемного полупроводника, а именно вырождение для состояний легких и тяжелых дырок [10]. Однако наиболее адекватным экспериментальным результатам является рассмотрение трехкратно вырожденных дырочных состояний с учетом спин-орбитального взаимодействия [11]. Вместе с этим, разработаны и другие подходы к моделированию энергетической структуры КТ, основанные на приближении сильной связи [12], полуэмпирического псевдопотенциала [13] и локального функционала плотности [14].

Однако указанные методики расчета энергетической структуры и правил отбора оперируют с величинами, отвечающими стационарным состояниям квазичастиц, тогда как уширение уровней, присущее всем открытым квантовым системам [15, 16], либо не учитывается, либо вводится как феноменологическая поправка в конечных выражениях. Отметим, что вопрос о влиянии дополнительных каналов релаксации на правила отбора в межзонных оптических переходах ранее подробно не обсуждался.

Одной из задач данной работы является анализ квазистационарной природы энергетического спектра и ее влияние на правила отбора в межзонных оптических переходах. Для этого предложена модель открытой сферической квантовой точки, в которой учитывается вероятность туннельного ухода электрона в окружающую среду (матрицу), а также двукратное вырождение энергетических состояний дырок. Анализ правила отбора проводился на основе интеграла перекрытия волновых функций электронных и дырочных состояний.

ЭЛЕКТРОННЫЙ СПЕКТР

Рассмотрим КТ как открытую квантовую систему, особенности спектра которой будут определяться потенциалом на границе КТ и окружающей среды. Потенциал выбирается в виде:

$$U(r) = \Theta \cdot \delta(r - r_0) \tag{1}$$

с коэффициентом проницаемости Θ, который может быть выражен в параметрах высоты a и ширины b прямоугольного потенциального барьера $\Theta \approx ab/\pi$ [17].

Энергетический спектр электрона рассчитывался на основе решения сферически симметричного уравнения Шредингера в приближении эффективной массы $E(k)$. Базовым являлся анализ трансцендентного уравнения [18]:

$$\begin{gathered} \frac{m_2}{m_1}\frac{j_{l+1}(k_1 r_0)}{j_l(k_1 r_0)} - \frac{k_1}{k_2}\frac{h_{l+1}^{(1)}(k_2 r_0)}{h_l^{(1)}(k_2 r_0)} - \\ -\frac{2m_2\Theta}{k_1\hbar^2} + \frac{l}{k_1 r_0}\left(1 - \frac{m_2}{m_1}\right) = 0 \end{gathered}. \tag{2}$$

Здесь $j_l(kr)$, $h_l^{(1)}(kr)$ сферические функции Бесселя и Ханкеля первого рода [19], l — орбитальное квантовое число, $m_{1,2}$ — эффективная масса электрона в КТ матрице. Решения уравнения (2) представляют собой квазистационарный спектр $\tilde{E}_{nl}^{O} = E_{nl}^{O} - i\Gamma_{nl}/2$, где E_{nl}^{O} является аналогом стационарных значений энергий, а Γ_{nl} — уширение квазистационарных состояний, определяемое вероятностью туннельного ухода электрона из КТ; n — радиальное квантовое число, определяющее порядок корней функции Бесселя. Поправка на кулоновское взаимодействие между электроном и дыркой не учитывалась, поскольку ее величина в представленном формализме не вносит изменения в правила отбора межзонных переходов.

Отметим, что спектр для закрытой сферической КТ E_{nl}^{C} был получен как частный случай из трансцендентного уравнения $j_l(k_1 r_0) = 0$.

ДЫРОЧНЫЙ СПЕКТР

В случае коллоидных КТ область спектра, соответствующую валентной зоне объемного полупроводника, можно описать сферически симметричным гамильтонианом в приближении бесконечно глубокой потенциальной ямы, полученным в работе [20] и подробно рассмотренным в [21].

При условии $\gamma_2 = \gamma_3$ и сильного спин-орбитального расщепления данный гамильтониан представляет собой выражение:

$$H = \frac{1}{2m_0}\left[\left(\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2\right)\hat{\vec{p}}^2 - 2\gamma_2\left(\hat{\vec{p}}\cdot\hat{\vec{J}}\right)^2\right], \tag{3}$$

где $\gamma_{1,2}$ — эмпирические параметры Латтинжера (параметры эффективной массы), m_0 — масса свободного электрона, $\hat{\vec{J}}$ — оператор момента импульса, соответствующий значению $j = 3/2$ [21, 22].

Непосредственно для вычисления дырочного спектра удобно выражение (3) представить в матричном виде путем вычисления матричных элементов по ортогональным волновым функциям момента импульса для проекций $m_j = \pm 3/2, \pm 1/2$:

$$\begin{gathered} \langle jm' | H | jm \rangle = \\ = \frac{1}{2m_0}\begin{vmatrix} P+Q & L & M & 0 \\ L^* & P-Q & 0 & M \\ M^* & 0 & P-Q & -L \\ 0 & M^* & -L^* & P+Q \end{vmatrix}, \end{gathered} \tag{4}$$

где $P = \gamma_1 p^2$, $Q = \gamma_2\left(p_\perp^2 - 2p_z^2\right)$, $M = \sqrt{3}\gamma_2 p_-^2$, $L = -2i\sqrt{3}\gamma_2 p_- p_z$. При этом P соответствует закону дисперсии свободной частицы в поле кристаллической решетки; Q, L и M описывают эффект анизотропии энергетической (валентной) зоны.

Вид волновых функций с использованием коммутирующего с гамильтонианом полного момента импульса $\vec{F} = \vec{L} + \vec{J}$ для отдельной дырки приводился ранее в ряде работ. Так, например, в [22] с использованием $3j$-символов Вигнера [23] волновая функция была записана в виде:

$$\psi_{FM}(r,\theta,\phi) = \sqrt{2F+1}\sum_l (-1)^{l-3/2+M} R_{Fl}(r)\sum_{m\mu}\begin{pmatrix} l & 3/2 & F \\ m & \mu & -M \end{pmatrix} Y_{lm}(\theta,\phi)\chi_\mu. \tag{5}$$

где χ_μ — компоненты волновой функции Блоха в области $\vec{k} = 0$. При заданном значении $F = 1/2, 3/2, 5/2...$ величина l может принимать четыре значения $l = F \pm 3/2$ и $l = F \pm 1/2$, за исключением случая $F = 1/2$, когда возможны лишь значения $l = 1,2$. Вид волновой функции (5) отвечает задаче сложения моментов, что, в свою очередь, подчеркивает важность взаимосвязи отдельных подсистем.

Используя технику приведенных матриц, из (4) можно получить системы дифференциальных уравнений на радиальные волновые функции [22, 24], решения которых в общем случае представляют собой суперпозицию сферических функций Бесселя для четных:

$$\begin{aligned} R_{F,F+1/2}(r) &= Aj_{F+1/2}(k_{hh}r) + Bj_{F+1/2}(k_{lh}r) \\ R_{F,F-3/2}(r) &= A'j_{F-3/2}(k_{hh}r) + B'j_{F-3/2}(k_{lh}r) \end{aligned}, \quad (6)$$

и нечетных состояний:

$$\begin{aligned} R_{F,F-1/2}(r) &= Aj_{F-1/2}(k_{hh}r) + Bj_{F-1/2}(k_{lh}r) \\ R_{F,F+3/2}(r) &= A'j_{F+3/2}(k_{hh}r) + B'j_{F+3/2}(k_{lh}r) \end{aligned}, \quad (7)$$

с заменой F на $-(F+1)$ в значении косинуса $\cos(\alpha_F) = (2F-3)/4$; $A' = Atg(\alpha_F/2)$, $B' = -Bctg(\alpha_F/2)$ [10, 25]. Здесь $m_l = m_0/(\gamma_1 + 2\gamma_2)$ и $m_h = m_0/(\gamma_1 - 2\gamma_2)$ — эффективные массы легкой и тяжелой дырок.

Условие равенства нулю волновых функций (6) и (7) на границе КТ вместе с нормировкой на дискретный спектр позволяют определить коэффициенты *A* и *B*, а условие разрешимости систем дает трансцендентные уравнения на спектр четных:

$$\begin{aligned} & j_{F+1/2}(k_{hh}r_0)\, j_{F-3/2}(k_{lh}r_0) + \\ & + \frac{6F-3}{2F+3} j_{F-3/2}(k_{hh}r_0)\, j_{F+1/2}(k_{lh}r_0) = 0 \end{aligned} \quad (8)$$

и нечетных дырочных состояний:

$$\begin{aligned} & j_{F-1/2}(k_{hh}r_0)\, j_{F+3/2}(k_{lh}r_0) + \\ & + \frac{6F+9}{2F-1} j_{F+3/2}(k_{hh}r_0)\, j_{F-1/2}(k_{lh}r_0) = 0 . \end{aligned} \quad (9)$$

ИНТЕГРАЛ ПЕРЕКРЫТИЯ

Интеграл перекрытия волновых функция двух состояний является количественной характеристикой радиационного перехода, наблюдаемого между этими состояниями. Так, отличные от нуля значения интеграла перекрытия определяют правила отбора для переходов в системе. Абсолютное значение интеграла перекрытия характеризует относительную интенсивность спектральных линий, а также силу осциллятора соответствующего перехода. Используя явное выражение для модуля интеграла перекрытия в приближении медленных огибающих функций:

$$\left| \int \psi_{nl}^{e}(\vec{r})^{*} \psi_{nFM}^{h}(r)\, d^3 r \right| \quad (10)$$

с учетом конкретного вида волновых функций, можно проанализировать правила отбора для радиационных переходов в открытой КТ в сравнении с закрытой. К примеру, для основного перехода $1S_{3/2} \to 1S_e$ интеграл перекрытия принимает вид:

$$\left| \int C_1^*(r_0)\, j_0^*(k_e r) Y_{0,0}^* \begin{bmatrix} R_{3/2,0}(r) Y_{0,0} + \\ + \sqrt{\frac{2}{5}} R_{3/2,2}(r) \\ \left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} Y_{2,0} - Y_{2,1} + Y_{2,2} \right\} \end{bmatrix} d^3 r \right|,$$

где $\mathrm{Y}_{l,m} \equiv \mathrm{Y}_{l,m}(\theta,\phi)$ — сферическая функция.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Численное решение уравнений на спектр (8) и (9) проводилось для КТ CdS с радиусом $r_0 = 2.06$ нм, окруженной желатиновой матрицей при следующих физических параметрах системы: $m_1 = 0.205 m_0$, $m_2 = m_0$ [18] (m_0 — масса свободного электрона), $E_g(CdS) = 2.42$ эВ, $\gamma_1 = 1.31$ [11], $\gamma_2 = 0.34$ [25], $\Theta \sim 10^{-6}$ эВ·см.

Характер изменения энергетического спектра КТ в зависимости от ее размера представлен на рис. 1, где сплошная и пунктирная линии соответствуют энергетическим состояниям тяжелой и легкой дырок, а заштрихованные области представляют первые квазистационарные состояния электрона $1S_e$, $1P_e$, $1D_e$ с шириной Γ_{1l}. Для сравнения на рис. 1 также обозначены электронные состояния закрытой сферической КТ (штрихпунктирная линия).

Как в закрытой, так и в открытой КТ для разрешенных межзонных переходов из состояний тяжелой дырки $nS_{3/2}$ и $nP_{3/2}$ выполняется правило отбора по орбитальному квантовому числу $\Delta l = 0,2$ (табл. 1). Разница в абсолютных значениях интеграла перекрытия (10) связана с характером волновых функций квазистационарных состояний в открытой КТ, отражающих возможное взаимодействие с окружением (рис. 1). Аналогичная зависимость сохраняется и для состояний с $F = 5/2$ и $F = 7/2$

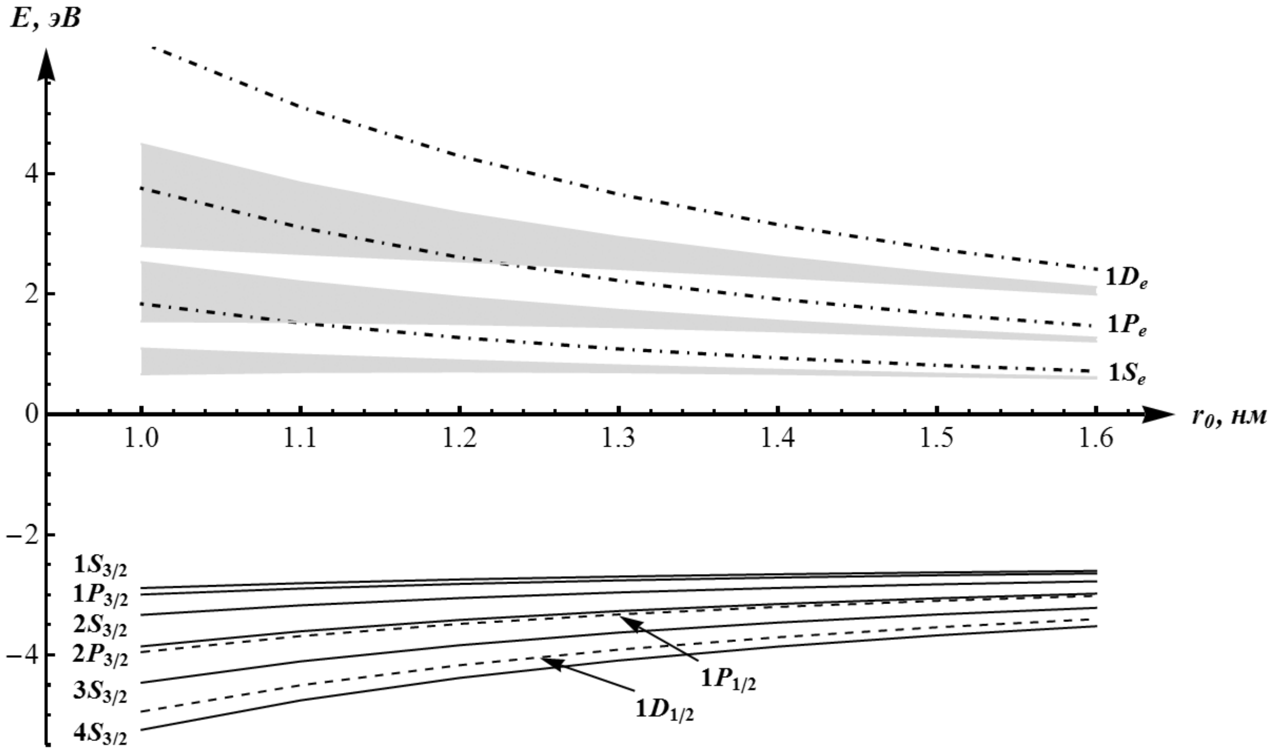

Рис. 1. Электронный E_{nl} и дырочный E_{nlF} спектры КТ CdS как функция размера частицы r_0

Интеграл перекрытия между волновыми функциями легкой дырки и электрона в закрытой КТ определяет правило отбора межзонных переходов с условием $\Delta l = 0$ и $\Delta n = 0$. Вместе с этим, в открытой КТ правило отбора для этих переходов претерпевает изменения, а именно, разрешенными становятся все переходы с $\Delta l = 0$ независимо от радиального квантового числа (табл. 2). Такое изменение правила отбора в открытых системах связано с учетом дополнительных каналов релаксации энергии, импульса, отвечающих процессам затухания амплитуды и фазы. Отметим, что рассмотренный интеграл перекрытия характеризует затухание амплитуды, аналогично процессу спонтанного излучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе на основе модели открытой сферической квантовой точки, учитывающей квазистационарный характер энергетических состояний электрона и двукратное вырождение дырочных состояний, проведен анализ возможного влияния окружения (матрицы) на правила отбора межзонных переходов. Оказалось, что учет уширения электронных состояний приводит к перераспределению значений интеграла перекрытия и сведению правила отбора межзонных переходов из состояний легкой дырки к условию $\Delta l = 0$. Такая особенность в правиле отбора связана, в первую очередь, с учетом дополнительного канала релаксации импульса, а во-вторых, с симметрией волновых функций.

Данный результат делает актуальным дальнейшее развитие исследований оптических свойств квантовых точек с позиции открытых квантовых систем. Расчет фундаментального края поглощения с учетом спин-орбитального расщепления дырочных состояний планируется выполнить в следующей работе.

Работа выполнена при поддержке программы стратегического развития ВГУ для молодых исследователей (№ ПСР-МГ/09-12).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Reiss P., Protiere N., Li. L.* // Small. 2009. V. 5. № 2. P. 154.

2. *Bera D., Qian L., Tseng T.— K., et al.* // Materials. 2010. V. 3. P. 2260.

3. *Woggon U.* Optical properties of semiconductor quantum dots. Berlin, 1997. 251 p.

4. *Hewa-Kasakarage N. N., El-Khoury P. Z., Tarnovsky A. N., et al.* // ACSNano. 2010. V. 4. № 4. P. 1837.

5. *Deka S., Quarta A., Lupo G. M., et al.* // J. Am. Chem. Soc. 2009. V. 131. № 8. P. 2948.

6. *Anikeeva P. O., Halpter J. E., Bawendi M. G., et al.* // Nano Lett. 2009. V. 9. № 7. P. 2532.

Таблица 1. Абсолютные значения интеграла перекрытия для волновых функций состояний тяжелой дырки и электрона в закрытой/открытой КТ

Переходы	$1S_{3/2}$	$2S_{3/2}$	$3S_{3/2}$	$1P_{3/2}$	$2P_{3/2}$	$3P_{3/2}$
$\to 1S_e$	$\frac{0.9774}{0.9054}$	$\frac{0.2050}{0.3314}$	$\frac{0.0408}{0.0872}$	0.0	0.0	0.0
$\to 1P_e$	0.0	0.0	0.0	$\frac{0.2796}{0.3717}$	$\frac{0.4980}{0.4371}$	$\frac{0.0955}{0.0448}$
$\to 1D_e$	$\frac{0.0811}{0.0781}$	$\frac{0.3312}{0.2995}$	$\frac{0.0775}{0.1522}$	0.0	0.0	0.0
$\to 2S_e$	$\frac{0.1047}{0.3711}$	$\frac{0.6387}{0.5213}$	$\frac{0.1825}{0.0345}$	0.0	0.0	0.0
$\to 1F_e$	0.0	0.0	0.0	$\frac{0.1326}{0.1100}$	$\frac{0.0500}{0.0667}$	$\frac{0.0018}{0.0272}$
$\to 2P_e$	0.0	0.0	0.0	$\frac{0.2035}{0.1854}$	$\frac{0.0635}{0.1863}$	$\frac{0.4856}{0.4785}$
$\to 2D_e$	$\frac{0.0098}{0.0224}$	$\frac{0.0169}{0.1393}$	$\frac{0.3165}{0.2461}$	0.0	0.0	0.0

Таблица 2. Абсолютные значения интеграла перекрытия для волновых функций состояний легкой дырки и электрона в закрытой/открытой КТ

Переходы	$1P_{1/2}$	$2P_{1/2}$	$1D_{1/2}$	$2D_{1/2}$
$\to 1S_e$	0.0	0.0	0.0	0.0
$\to 1P_e$	$\frac{0.5774}{0.5392}$	$\frac{0.0}{0.1410}$	0.0	0.0
$\to 1D_e$	0.0	0.0	$\frac{0.2154}{0.1984}$	$\frac{0.0}{0.1115}$
$\to 2S_e$	0.0	0.0	0.0	0.0
$\to 1F_e$	0.0	0.0	0.0	0.0
$\to 2P_e$	$\frac{0.0}{0.1962}$	$\frac{0.5774}{0.5051}$	0.0	0.0
$\to 2D_e$	0.0	0.0	$\frac{0.0}{0.0811}$	$\frac{0.4232}{0.3652}$

7. *Klimov V. I., Mikhailovsky A. A., Xu S., et al.* // Science. 2000. V. 290. P. 314

8. *Oertel D. C., Bawendi M. G., Arango A. C., et al.* // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. № 21. P. 213505.

9. Эфрос Ал. Л., Эфрос А. Л. // ФТП. 1982. Т. 16. Вып. 7. С. 1209.

10. *Екимов А. И., Онущенко А. А., Плюхин А. Г. и др.* // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. Вып. 4. С. 1490.

11. *Григорян Г. Б., Казарян Э. М., Эфрос Ал. Л. и др.* // ФТТ. 1990. Т. 32. Вып. 6. С. 1772.

12. *Schulz S., Mourad D., Schumacher S., et al.* // Phys. Status Sol. B. 2011. V. 248. № 8. P. 1853.

13. *Schrier J., Wang L.— W.* // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. № 24. P. 245332.

14. *Mavros M. G., Micha D. A., Kilin D. S.* // J. Phys. Chem. C. 2011. V. 115. № 40. P. 19529.

15. *Scully M. O., Zubairy M. S.* Quantum optics. Cambridge, 1997. 630 p.

16. *Breuer H.–P., Petruccione F.* Theory of open quantum systems. Oxford, 2002. 645 p.

17. *Королев Н. В., Стародубцев С. Е., Бормонтов Е. Н. и др.* // КСМГ. 2011. Т. 13. № 1. С. 67.

18. *Korolev N. V., Starodubtcev S. E., Klinskikh A. F., et al.* // J. Nano- Electron. Phys. 2013. V. 5. № 1. P. 01001.

19. *Бейтман Г.* Высшие трансцендентные функции. М.: Наука, 1969. 296 с.

20. *Luttinger J. M.* // Phys. Rev. 1956. V. 102. № 4. P. 1030.

21. *Baldereschi A., Lipari N. O.* // Phys. Rev. B. 1973. V. 8. № 6. P. 2697.

22. *Гельмонт Б. Л., Дьяконов М. И.* // ФТП. 1971. Т. 5. Вып. 11. С. 2191.

23. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Квантовая механика. М.: Физмалит, 2004. 800 с.

24. *Xia J.— B.* // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. № 12. P. 8500.

25. *Richard T., Lefebvre P., Mathieu H., et al.* // Phys. Rev. B. 1996. V. 53. № 11. P. 7287.

Королев Никита Викторович — аспирант кафедры физики полупроводников и микроэлектроники, Воронежский государственный университет; тел.: (920) 4113957, e-mail: korolevn33@yandex.ru

Стародубцев Сергей Евгеньевич — аспирант кафедры физики полупроводников и микроэлектроники, Воронежский государственный университет; тел.: (908) 1435926, e-mail: starodubtcevs@yandex.ru.

Бормонтов Евгений Николаевич — д.ф.-м.н., профессор кафедры физики полупроводников и микроэлектроники, Воронежский государственный университет; тел.: (473) 2208633, e-mail: me144@phys.vsu.

Клинских Александр Федотович — д.ф.-м.н., профессор кафедры теоретической физики, Воронежский государственный университет; тел. (473) 2208756, e-mail: klinskikh@live.ru.

Korolev Nikita V. — post graduate student, Department of Physic of Semiconductor and Microelectronics, Voronezh State University; tel.: (920) 4113957, e-mail: korolevn33@yandex.ru

Starodubtcev Sergey E. — post graduate student, Department of Physic of Semiconductor and Microelectronics, Voronezh State University; tel.: (908) 1435926, e-mail: starodubtcevs@yandex.ru

Bormontov Eugenie N. — Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Department of Physic of Semiconductor and Microelectronics, Voronezh State University; tel.: (473) 2208633, e-mail: me144@phys.vsu.

Klinskikh Alexander F. — Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Department of Theoretical Physics, Voronezh State University; tel.: (473) 2208756, e-mail: klinskikh@live.ru.