

УДК 621.315.592

ВЛИЯНИЕ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ОКРУЖЕНИЯ НА ЭКСИТОННЫЙ СПЕКТР КРЕМНИЕВЫХ КВАНТОВЫХ НИТЕЙ

М. Г. Лисаченко, В. Ю. Тимошенко

(кафедра общей физики и молекулярной электроники)

Численное решение задачи об экситоне в кремниевой квантовой нити диаметром $2 \div 4$ нм с диэлектрической проницаемостью ϵ_i , окруженной средой с диэлектрической проницаемостью ϵ_e , показало, что для $\epsilon_e < \epsilon_i$ радиус экситона меньше, а энергия связи больше, чем в случае $\epsilon_e = \epsilon_i$; для $\epsilon_e > \epsilon_i$, наоборот, радиус экситона увеличивается, а энергия связи резко понижается, что объясняет известные экспериментальные данные по диэлектрическому гашению экситонной люминесценции пористого кремния.

Введение

В последние годы интенсивно исследуются физические явления в твердотельных системах пониженной размерности, таких, как квантовые нити и точки [1, 2]. Прежде всего это вызвано потребностями современной полупроводниковой электроники и освоением новых субмикронных технологий. Диаметр квантовых нитей d имеет величину порядка $1 \div 10$ нм, что меньше или сравнимо с длиной волны де Бройля электронов в полупроводниках. Следствием этого является так называемый квантовый размерный эффект — увеличение запрещенной зоны в низкоразмерной структуре по сравнению с макроскопическим кристаллом [2]. Кроме того, для полупроводниковых квантовых нитей, как было впервые отмечено в работе [3], исключительное значение имеет кулоновское взаимодействие носителей заряда (электронов и дырок). Это взаимодействие делает возможным существование связанных состояний — экситонов с энергией связи E_{exc} , в десятки раз превышающей ее величину в объеме кристалла [4]. Параметры экситонных состояний зависят от диэлектрических свойств среды, окружающей квантовую нить [3]. Это позволяет объяснить экспериментальные данные о влиянии диэлектрических сред на экситонную люминесценцию пористого кремния, в структуре которого присутствуют кремниевые квантовые нити [5, 6].

Задача об экситонах в полупроводниковых квантовых нитях с диэлектрической проницаемостью ϵ_i

в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ_e была теоретически рассмотрена в работе [3] для случая $\epsilon_i \gg \epsilon_e$. Установлено, что с ростом параметра $\gamma = \epsilon_i/\epsilon_e$ величина E_{exc} возрастает, а радиус экситона уменьшается. Эффект объясняется влиянием зарядов изображения, наводимых носителями заряда на границе нить-диэлектрическая среда. Однако применить полученные результаты к кремниевым квантовым нитям сложно ввиду того, что условие аналитического представления потенциала изображения, использованного в работе [3], не выполняется. Кроме того, для сравнения с экспериментом важно исследовать случай $\epsilon_e \geq \epsilon_i$, не рассмотренный в работе [3].

В настоящей работе выполнен расчет энергии связи экситонов в кремниевых квантовых нитях, окруженных средой, диэлектрическая проницаемость которой как меньше, так и больше диэлектрической проницаемости вещества нити. Определены значения энергии возбужденных состояний и волновые функции экситонов для различных значений ϵ_i/ϵ_e и радиуса квантовых нитей.

1. Модель и метод расчета

В качестве модели кремниевой квантовой нити рассмотрим бесконечный цилиндр с диаметром $d \gg a_0$, где a_0 — постоянная решетки кремния. В этом случае можно использовать макроскопические значения величин ϵ_i и ϵ_e . Выберем цилиндрическую систему координат и гауссову систему единиц. Тогда потенциальная энергия электрона в поле

дырки, помещенной на оси цилиндра в начале координат, с учетом поляризации среды имеет вид [7]

$$U(r, z) = -\frac{e^2}{\epsilon_i \sqrt{r^2 + z^2}} - \frac{4e^2(\gamma - 1)}{\epsilon_i \pi} \times \int_0^\infty \frac{\cos(xz) K_0(xd) K_1(xd) I_0(xr)}{\gamma K_0(xd) I_1(xd) + I_0(xd) K_1(xd)} dx, \quad (1)$$

где e — заряд электрона; K_n, I_n — функции Бесселя мнимого аргумента. Второй член в выражении (1) представляет собой вклад наведенных на поверхности зарядов. Эта добавка может как увеличить, так и уменьшить потенциальную энергию электрона. Знак добавки определяется только величиной $\gamma = \epsilon_i/\epsilon_e$, поскольку интеграл может принимать только положительные значения. Если $\gamma > 1$, то энергия взаимодействия электрона и дырки резко увеличивается по сравнению с энергией кулоновского взаимодействия в однородной среде. Если $\gamma < 1$, то наблюдается обратный эффект. На рис. 1 представлены потенциальные кривые для различных значений γ при фиксированном d .

Для пористого кремния, люминесцирующего в видимой области спектра, толщины нитей $d = 1 \div 4$ нм таковы, что энергия размерного квантования существенно превышает энергию связи экситонов [4–6]. В этом случае движением электронов поперек нитей можно пренебречь [3]. Из энергетических соображений электрон с наибольшей вероятностью будет находиться на оси нити ($r = 0$), поэтому в расчете энергии связи экситона можно ограничиться одномерным приближением.

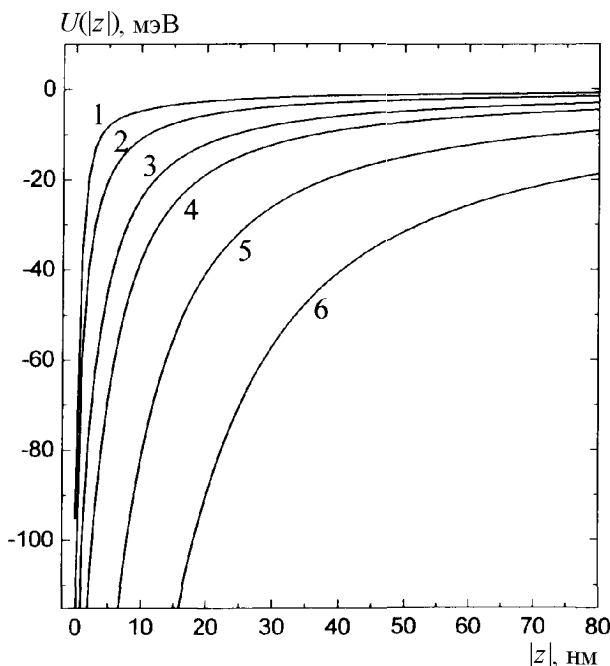


Рис. 1. Зависимость потенциальной энергии электрона от координаты в поле дырки в кремниевой нити диаметром $d = 4$ нм с учетом поляризации среды при $\gamma = \epsilon_i/\epsilon_e = 0,5$ (1), 1 (2), 2 (3), 3 (4), 6 (5), 12 (6)

Одномерное уравнение Шрёдингера для относительного движения электрона в поле дырки имеет вид

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2 \varphi_n(z)}{dz^2} + U(r=0, z) \varphi_n(z) = E_n \varphi_n(z), \quad (2)$$

где μ — приведенная эффективная масса электрона и дырки, φ_n — волновая функция экситона. Использовались следующее граничное условие и нормировка для волновой функции:

$$\varphi_n(0) = 0, \quad \int_{-\infty}^{\infty} |\varphi_n(z)|^2 dz = 1. \quad (3)$$

Уравнение (2) с условиями (3) решалось численно с применением метода тригонометрической прогонки [8]. При расчетах использовалось значение $\mu = 0,15 m_0$ (m_0 — масса свободного электрона), полученное методом сильной связи в работе [4]. Расчеты проводились для $\epsilon_e = 1 \div 24$ ($\gamma = 0,5 \div 12$). Предполагалось, что значение диэлектрической проницаемости кремниевой нити ($\epsilon_i = 12$) приблизительно такое же, как в объемном монокристалле кремния.

2. Результаты и их обсуждение

На рис. 2 представлены зависимости квадрата волновой функции от координаты для основного и первого возбужденного состояния экситона в кремниевой квантовой нити диаметром 4 нм. Как и следовало ожидать, в основном состоянии при $\gamma = 1$ (нить окружена средой с такой же диэлектрической проницаемостью) значение радиуса экситона $a_{exc} = 4,2$ нм почти такое же, как в объемном монокристалле кремния. Для нити в вакууме ($\gamma = 12$) величина a_{exc} уменьшается почти в два раза, что свидетельствует о дополнительной локализации экситона (рис. 2, а). Этот результат согласуется с выводами работы [3]. В то же время для нити в диэлектрике с большой диэлектрической проницаемостью ($\gamma = 0,5$) волновая функция становится более размытой, а радиус экситона возрастает до 6,7 нм.

Как следует из рис. 2, б, еще более чувствителен к диэлектрической проницаемости окружающей нить среды радиус экситона в возбужденном состоянии. Так, для кремниевой нити в вакууме область локализации возбужденного состояния экситона почти в 4 раза меньше, чем в среде с той же, что и у нити, диэлектрической проницаемостью.

Как показали расчеты, при уменьшении диаметра кремниевой нити в вакууме одновременно с усилением локализации экситона происходит увеличение энергии связи (рис. 3). Зависимость $E_{exc}(d)$ хорошо аппроксимируется формулой

$$E_{exc}(d) = \frac{2e^2}{\epsilon_i d} \left[\ln \left(\frac{d}{a_b} \right) + 4,838 \right], \quad (4)$$

где a_b — боровский радиус экситона в объеме кремния.

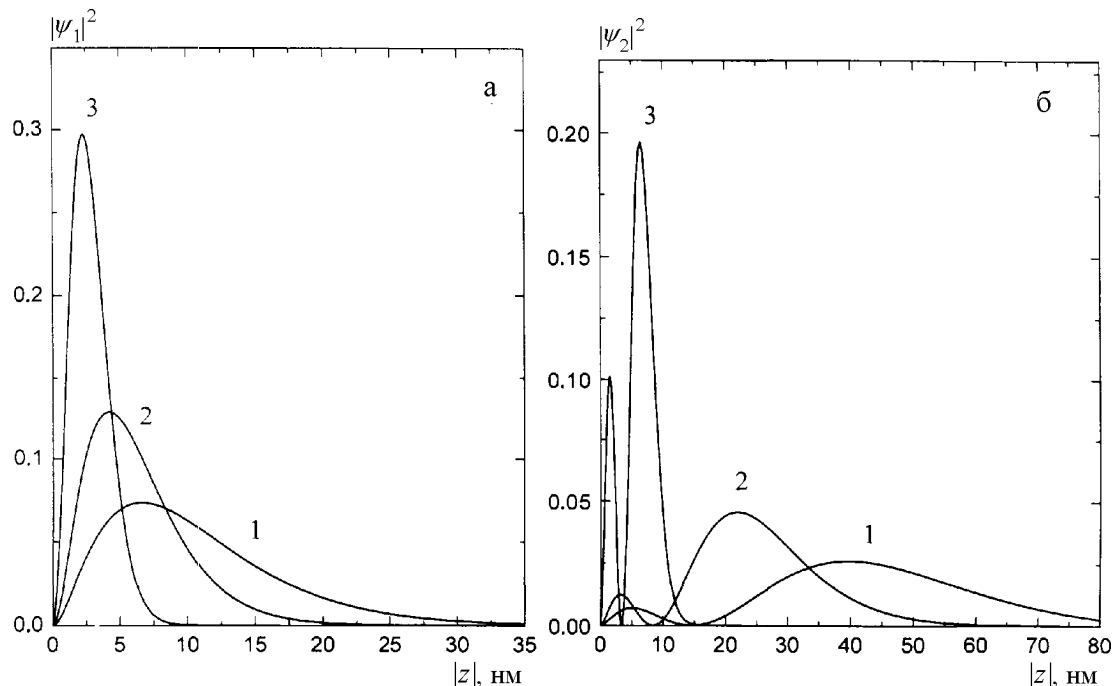


Рис. 2. Зависимость квадрата волновой функции от координаты для экситона в основном (а) и первом возбужденном состоянии (б) в квантовой нити диаметром $d = 4$ нм, помещенной в различные диэлектрические среды: $\gamma = \epsilon_i/\epsilon_e = 0,5$ (1), 1 (2), 12 (3)

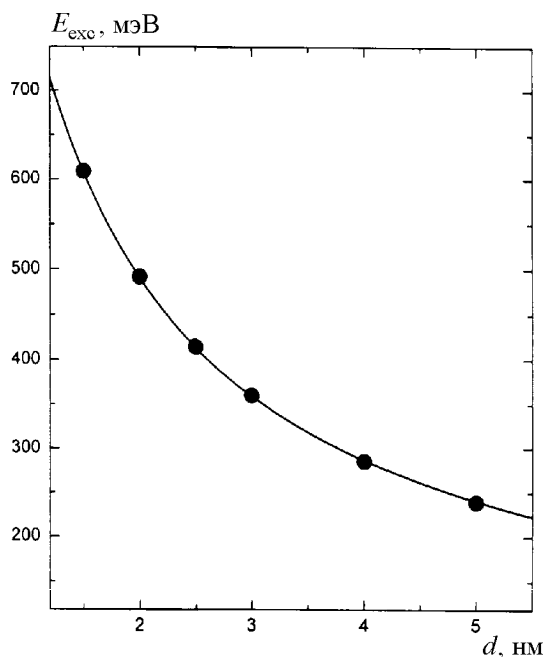


Рис. 3. Зависимость энергии связи экситона E_{exc} от диаметра d кремниевой нити в вакууме ($\gamma = 12$)

Зависимость E_{exc} от диэлектрической проницаемости внешней среды представлена на рис. 4. Для нити с $d = 4$ нм при $\epsilon_e = 1$ величина E_{exc} достигает 288 мэВ. Это в несколько раз больше энергии связи экситона для кремниевой квантовой нити близкого поперечного размера, рассчитанной в работе [4], по-видимому, из-за недостаточно точного учета в [4] диэлектрической поляризации среды. Полученное нами значение E_{exc} значительно превышает энергию связи экситона в объемном монокристалле кремния (14 мэВ), что согласуется с выводами работы [3].

Большая энергия связи позволяет экситонам существовать при комнатной температуре. Излучательной аннигиляцией подобных сильно связанных экситонов в кремниевых квантовых нитях можно объяснить эффективную люминесценцию пористого кремния в вакууме или на воздухе [6]. Повышение температуры приводит к снижению концентрации экситонов вследствие их термической диссоциации, что уменьшает эффективность люминесценции. Полученная из анализа экспериментальных данных по температурному гашению фотолюминесценции пористого крем-

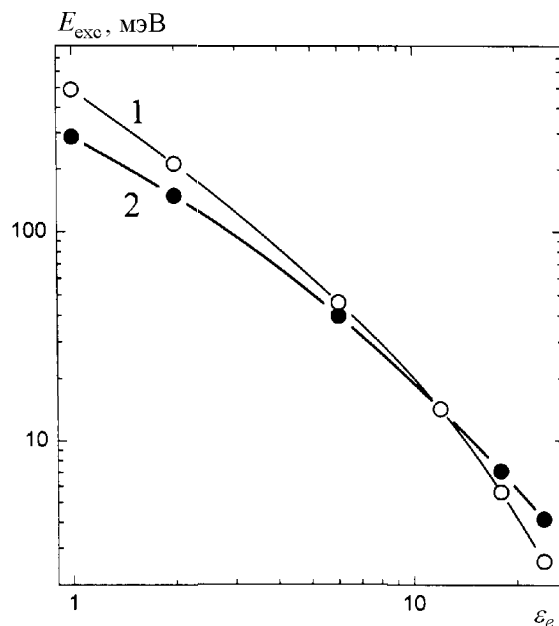


Рис. 4. Зависимость энергии связи экситона E_{exc} в кремниевой нити диаметром $d = 2$ (1) и 4 нм (2) от диэлектрической проницаемости внешней среды

ния в вакууме энергия связи экситонов составляет около 0,2 эВ [9], что согласуется с представленными на рис. 4 расчетными значениями.

Как следует из рис. 4, для квантовой нити в среде с большим значением диэлектрической проницаемости ($\gamma < 1$) энергия связи экситона уменьшается до нескольких миллиэлектрон-вольт. Поэтому уже при комнатной температуре будет происходить тепловая диссоциация таких экситонов, что должно привести к гашению люминесценции. Этот вывод хорошо согласуется с экспериментальными данными работ [5, 6, 10], в которых обнаружено сильное уменьшение интенсивности фотолюминесценции пористого кремния после заполнения пространства между его квантовыми нитями веществом с большой диэлектрической проницаемостью (этанол, метанол).

Кроме основного состояния нами было рассчитано также несколько первых возбужденных состояний экситона. Зависимость энергии n -го состояния экситона E_n от номера квантового числа n для различных радиусов кремниевой нити в вакууме представлена на рис. 5. Величина E_1 по определению равна E_{exc} . Анализ показал, что спектр возбужденных состояний экситона в квантовой нити с учетом наведенных зарядов представляет собой зависимость вида

$$E_n = -\frac{\alpha}{(n + \beta)^2}, \quad (5)$$

где α и β — параметры, большие нуля и зависящие от d и γ . Так, например, для кремниевой нити диаметром 4 нм в вакууме $\alpha = 4,34$ эВ и $\beta = 2,9$. Зависимость (5) отличается от зависимости для экситона как в трехмерном, так и в одномерном объекте без учета диэлектрической неоднородности среды (водородоподобные спектры). Как видно из рис. 5 и формулы (5), зависимость энергии экситона в нити от квантового числа имеет более плавный ход, чем в трехмерном случае. С учетом большой величины E_n для первых возбужденных состояний представляется вполне реальным экспериментальное наблюдение этих состояний.

Таким образом, расчет волновых функций и энергетического спектра экситонов в кремниевых квантовых нитях, окруженных средой с различной диэлектрической проницаемостью, показал, что энергия связи экситонов значительно возрастает, когда диэлектрическая проницаемость среды меньше, чем диэлектрическая проницаемость нити, и резко падает в противоположном случае.

Авторы благодарят проф. П. К. Кашкарова за плодотворные обсуждения результатов.

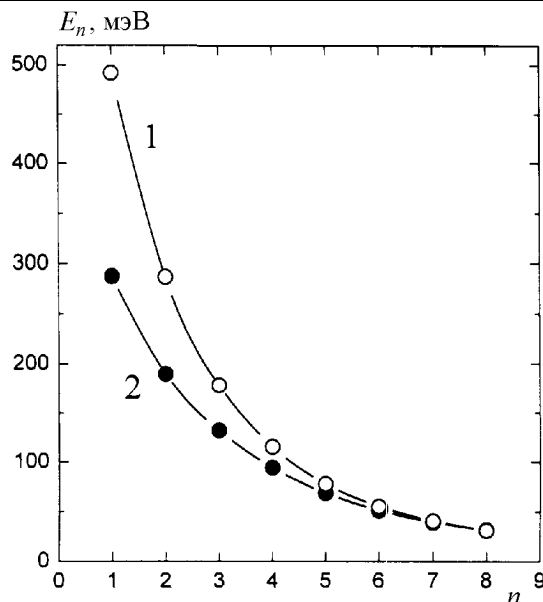


Рис. 5. Зависимость энергии n -го состояния экситона E_n от квантового числа n в кремниевой нити диаметром $d = 2$ (1) и 4 нм (2) в вакууме

Работа выполнена при поддержке Государственных научно-технических программ России «Атомные поверхностные структуры» (грант 96-1.33) и «Физика твердотельных наноструктур» (грант 1-066.3).

Литература

1. Kash K. // J. Luminescence. 1990. **46**. P. 69.
2. Brus L. // Semicond. and Semimetals: Light Emission in Silicon / Ed. D.J. Lockwood. N.Y.: Academic Press, 1996.
3. Бабиченко В.С., Кельдыш Л.В., Силин А.П. // ФТТ. 1980. **22**. С. 1238.
4. Sanders G.D., Chang Y.-C. // Phys. Rev. 1992. **В 45**. P. 9202.
5. Кашкаров П.К., Константинова Е.А., Тимошенко В.Ю. // ФТП. 1996. **30**. С. 1479.
6. Gullis A.G., Canham L.T., Calcott P.D.J. // J. Appl. Phys. 1997. **82**. P. 909.
7. Иваненко Д.Д., Соколов А.А. Классическая теория поля. Л.: ГИТТЛ, 1949.
8. Федоренко Р.П. Введение в вычислительную физику. М.: Изд-во МФТИ, 1994.
9. Кашкаров П.К., Константинова Е.А., Петрова С.А. и др. // ФТП. 1997. **31**. С. 745.
10. Kashkarov P.K., Konstantinova E.A., Pavlikov A.V., Timoshenko V.Yu. // Phys. Low-Dim. Struct. 1997. **1/2**. С. 123.

Поступила в редакцию
03.07.98