

© 2002р. М.В. Ткач, М.Я. Міхальова, Р.Б. Фартушинський,  
О.М. Войцехівська

Чернівецький національний університет ім. Ю. Федьковича, Чернівці

## ПЕРЕНОРМУВАННЯ ЕЛЕКТРОННОГО СПЕКТРА ВЗАЄМОДІЄЮ З ФОНОНАМИ У НАНОГЕТЕРОСИСТЕМІ СКЛО/НАПІВПРОВІДНИК/СКЛО

Методом діаграмної техніки для функцій Гріна досліджені механізми перенормування основного електронного рівня обмеженими та інтерфейсними фононами з урахуванням усіх неперервних та континуальних станів електронного спектра у квантовій точці (КТ), що оточена з обох боків шарами діелектричного середовища. На прикладах КТ CdSe, введеної у скло, показано, що при скінченній глибині потенціальної ями КТ зі збільшенням розмірів КТ величина зсуву основного електронного рівня прямує до величини зсуву основного рівня в масивному аналогу гетерокристала.

The electron levels renormalised by  $L$ - and  $I$ -phonons taking into account the interaction of the all states of discrete and continuous spectrum of semiconductor quantum dot (QD) embedded into dielectric are studied using the diagram technique for the Green functions. On the examples of CdSe QDs embedded into glass it is shown that for the QDs with potential wells of finite depth the magnitudes of electron levels close to the shifts of ground levels in massive crystal creating QD.

Електрон-фононна взаємодія у низькорозмірних системах взагалі [1-3] і у КТ зокрема [3-8] досліджується на основі різних теоретичних моделей (полумікроскопічна модель Хуанга-Цу, модель діелектричного континууму, модель гідродинамічного континууму).

Для дослідження квантовоточкових наносистем зі слабким зв'язком застосовувалися різновиди теорії збурень [3-5]. У таких системах усі механізми дають практично адитивний вклад у величину зсуву основного рівня, а тому в різних моделях наносистем вивчалася роль  $L$ - та  $I$ -фононів, а також внутрі- і міжрівневої взаємодії в перенормуванні положень електронних рівнів у шкалі енергій. Головна увага зверталася на аналіз відносних вкладів різних механізмів у величину зсуву основного рівня в залежності від розмірів КТ.

У деяких роботах [3,5,8] при вивченні перенормування електронного спектра поляризаційними фононами використовувалось наближення безмежно глибокої потенціальної ями. Це значно спрощувало громіздкі математичні розрахунки, однак приводило до некоректних результатів при малих радіусах квантових точок. Так, у роботах [5,8] показано, що при зменшенні радіуса напівпровідникових сферичних КТ, розташованих у діелектрику, різко зростають величини зсувів основних електронних рівнів у наносистемах. Такий

результат є фізично некоректним. Адже у наближенні безмежно глибокої потенціальної ями зменшення розміру КТ локалізує у просторі квазічастинку, чим збільшує силу її зв'язку з фононами, що й призводить до формально правильного збільшення величини зсуву. Однак при реально скінченній глибині ями зменшення радіуса КТ зумовлює "виштовхування" квазічастинки з ями, тобто делокалізує її у просторі, а тому зменшує взаємодію з фононами, внаслідок чого величина зсуву повинна зменшуватися, що й буде показано далі.

Мета цієї роботи – за допомогою функцій Гріна при  $T=0$  К дослідити всі фононні механізми перенормування електронного спектра сферичної КТ, оточеної з обох боків діелектричним середовищем. Перевага цього апарата в тому, що він не тільки дозволяє розв'язати сформульовану задачу, але й дасть можливість дослідити вплив багатофононних процесів і температури на перенормування електронного спектра у КТ.

### Гамільтоніан електрон-фононної системи у КТ, оточеної з обох боків діелектричним середовищем

Будемо розглядати електрон-фононну систему у сферичній напівпровідниковій квантовій точці, яка розміщена між двома діелектричними сере-

довищами. Згідно з роботою [6], у наближенні ефективної маси та прямокутного потенціалу скінченної величини для електрона

$$m(r) = \begin{cases} m_0, & r \leq r_0 \\ m_1, & r_0 \leq r \leq r_1 \\ m_2, & r \geq r_1 \end{cases}, \quad (1)$$

$$U(r) = \begin{cases} -U, & r \leq r_0 \\ 0, & r_0 \leq r \leq r_1 \\ -U, & r \geq r_1 \end{cases}, \quad (1)$$

рівняння Шредінгера розв'язується точно. У результаті в зображенні вторинного квантування гамільтоніан має вигляд

$$\hat{H}_e = \sum_{p\ell m} E_{p\ell} \hat{a}_{p\ell m}^+ \hat{a}_{p\ell m}, \quad (2)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} p=n, k; \ell=0,1,2,\dots; \\ m=0, \pm 1, \dots, \pm \ell \end{array} \right\},$$

де  $E_{n\ell}$  та  $E_k$  – дискретна та неперервна частини спектра відповідно, які визначені в роботі [9], а  $|p\ell m\rangle = \Psi_{p\ell m}(\vec{r}) = R_{p\ell}(r)Y_{\ell m}(\theta, \varphi)$ ,

$$R_{p\ell}(r) = \begin{cases} R_{p\ell}^0(r), & r \leq r_0 \\ R_{p\ell}^1(r), & r_0 \leq r \leq r_1 \\ R_{p\ell}^2(r), & r \geq r_1 \end{cases} \quad (3)$$

– повний ортонормований набір хвильових функцій.

Фононний спектр та потенціал поля поляризації в моделі діелектричного континууму знайдені у [5]. У такій моделі гамільтоніан фононної підсистеми в зображенні чисел заповнення

$$\hat{H}_{ph} = \hat{H}_L + \hat{H}_I, \quad (4)$$

де

$$\hat{H}_L = \sum_{s=1}^{\infty} \sum_{\ell m} \Omega_L (\hat{b}_{s\ell m}^+ \hat{b}_{s\ell m} + 1/2),$$

$$\hat{H}_I = \sum_{m\ell} \Omega_{I\ell} (\hat{b}_{\ell m}^+ \hat{b}_{\ell m} + 1/2) \quad (5)$$

– гамільтоніани обмежених фононів і інтерфейсних фононів відповідно. Тут енергії  $\Omega_L$  збігаються з енергіями поздовжніх фононів відповідного масивного кристала, а енергії  $\Omega_{I\ell}$  визначаються розв'язками дисперсійного рівняння [5].

Гамільтоніан взаємодії електрона з обмеженими та інтерфейсними фононами в зображенні вторинного квантування за всіма змінними системи знаходиться через потенціал поля поляризації на ортонормованій системі хвильових функцій (3) і має вигляд

$$\hat{H}_{int} = \hat{H}_{e-L} + \hat{H}_{e-I}, \quad (6)$$

де  $\hat{H}_{e-L}, \hat{H}_{e-I}$  – гамільтоніани взаємодії з обмеженими та інтерфейсними фононами, які, згідно з [5], виражаються через функції зв'язку ( $\lambda=\{s, I\}$ )

$$\Phi_{p_1 \ell_1 m_1}^{p_2 \ell_2 m_2}(\lambda, \ell, m) = (Y_{\ell m})_{\ell_1 m_1}^{\ell_2 m_2} (F_{\ell \lambda})_{p_1 \ell_1}^{p_2 \ell_2}. \quad (7)$$

Вони містять спільну для обмежених і інтерфейсних фононів кутову частину

$$(Y_{\ell m})_{\ell_1 m_1}^{\ell_2 m_2} = \int_0^{\infty} \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \times$$

$$\times Y_{\ell_2 m_2}^*(\theta, \varphi) Y_{\ell m}(\theta, \varphi) Y_{\ell_1 m_1}(\theta, \varphi). \quad (8)$$

Радіальна частина функцій зв'язку електрона з обмеженими фононами задається виразом ( $\lambda=s$ )

$$(F_{s\ell})_{p_1 \ell_1}^{p_2 \ell_2} = \sqrt{\frac{4\pi\Omega_L e^2}{r_1} \left( \frac{1}{\epsilon_{\infty}} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)} \times$$

$$\times \frac{\int_0^{r_0} r^2 z_{\ell}(k_s r) R_{p_2 \ell_2}^{0*}(r) R_{p_1 \ell_1}^0(r) dr}{\sqrt{\left| 1 - \frac{r_1 n_{\ell}^2(k_s r_1)}{r_0 n_{\ell}^2(k_s r_0)} \right|}}, \quad (9)$$

у якому значення  $k_s$  визначаються з рівняння

$$j_{\ell}(k_{s1} r_0) n_{\ell}(k_{s1} r_1) - j_{\ell}(k_{s1} r_1) n_{\ell}(k_{s1} r_0) = 0, \quad (10)$$

а введене позначення

$$z_{\ell}(k_s r) = j_{\ell}(k_s r_0) n_{\ell}(k_s r) - j_{\ell}(k_s r_1) n_{\ell}(k_s r), \quad (11)$$

де індекс  $s=1, 2, \dots$ , нумерує корені цих рівнянь при заданому  $\ell$ , а  $\ell=0, 1, 2, \dots$

Радіальна частина функції зв'язку електрона з інтерфейсними фононами задається виразом ( $\lambda=I$ )

$$(F_{I\ell})_{p_1 \ell_1}^{p_2 \ell_2} = \sqrt{\frac{2\pi e^2 \Omega_{\ell}}{r_0 y_{\ell s}}} \times$$

$$\times \left\{ \int_0^{r_0} R_{p_2 \ell_2}^{0*}(r) R_{p_1 \ell_1}^0(r) \left( \frac{r}{r_0} \right)^{\ell} r^2 dr + \right.$$

$$\left. + \int_{r_0}^{r_1} R_{p_2 \ell_2}^{1*}(r) R_{p_1 \ell_1}^1(r) \left[ \alpha_1 \left( \frac{r}{r_0} \right)^{\ell} + \beta_1 \left( \frac{r_0}{r} \right)^{\ell+1} \right] r^2 dr + \right.$$

$$\left. + \int_{r_1}^{\infty} R_{p_2 \ell_2}^{2*}(r) R_{p_1 \ell_1}^2(r) \beta_2 \left( \frac{r_0}{r} \right)^{\ell+1} r^2 dr \right\}, \quad (12)$$

де вирази для  $\alpha_i, \beta_i$  і  $y_{\ell s}$  знайдені в [6].

Отже, гамільтоніан електрон-фононної системи в напівпровідниковій СКТ, розташованій між двома діелектричними середовищами, в зображенні чисел заповнення визначений

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_L + \hat{H}_I + \hat{H}_{e-L} + \hat{H}_{e-I}, \quad (13)$$

що дозволяє застосувати метод функцій Гріна для

знаходження перенормованого фононами основного електронного рівня.

Оскільки електронний спектр – багаторівневий, то для розрахунку його перенормування зручно використати апарат функцій Гріна. Для системи, що досліджується, це можна зробити за допомогою діаграмної техніки Фейнмана-Пайнса при

$$G_{\mu}(\omega) = G_{\mu\mu}(\omega) = \{\omega - E_{\mu} - M_{\mu}(\omega)\}^{-1}, \quad (14)$$

$T=0$  К [10].

Фур'є-образ діагональної функції Гріна пов'язаний з масовим оператором рівнянням Дайсона

$$G_{\mu}(\omega) = G_{\mu\mu}(\omega) = \{\omega - E_{\mu} - M_{\mu}(\omega)\}^{-1}, \quad (14)$$

через масовий оператор (МО)  $M_{\mu}(\omega)$ , який задається нижченаведеним діаграмним зображенням:

У випадку слабого електрон-фононного зв'язку, який реалізується в наногетеросистемі скло/CdSe/скло, основний внесок у масовий оператор робить перша діаграма з ряду (14), і згідно з правилами діаграмної техніки Фейнмана-Пайнса для системи з гамільтоніаном (12), отримується масовий оператор, який визначає перенормування основного стану електрона

$$M(\omega) = M_L(\omega) + M_I(\omega), \quad (16)$$

де

$$M_L(\omega) = M_{Ld}(\omega) + M_{Lc}(\omega) = \sum_{\ell=0}^{\infty} \frac{2\ell+1}{4\pi} * \quad (17)$$

$$* \left[ \sum_n \frac{\sum_{s_1} |F_{s_1\ell}|_{10}^{n\ell}{}^2}{\omega - E_{n\ell} - \Omega_{L_1}} + \frac{\hbar}{\sqrt{2m\Omega_{L_1}}} \int_0^{\infty} \frac{\sum_{s_1} |F_{s_1\ell}|_{10}^{k\ell}{}^2}{\omega - E_k - \Omega_{L_1}} dk \right]$$

– доданки масового оператора, які описують внески в перенормування енергії основного рівня від взаємодії обмежених фононів з електроном у дискретних станах ( $M_{Ld}(\omega)$ ) та в станах неперервного спектра ( $M_{Lc}(\omega)$ );

$$M_I(\omega) = \sum_{s=\pm} M_{I^sd}(\omega) + M_{I^sc}(\omega) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \frac{2\ell+1}{4\pi} * \quad (18)$$

$$* \left[ \sum_{n,s=\pm} \frac{\sum_{s_1} |F_{s_1\ell}^{\pm}|_{10}^{n\ell}{}^2}{\omega - E_{n\ell} - \Omega_{L_1}} + \frac{\hbar}{\sqrt{2m\Omega_{L_1}}} \int_0^{\infty} \frac{\sum_{s_1} |F_{s_1\ell}^{\pm}|_{10}^{k\ell}{}^2}{\omega - E_k - \Omega_{L_1}} dk \right]$$

– доданки масового оператора, які описують внески в перенормування енергії основного рівня від взаємодії інтерфейсних ( $I^{\pm}$ ) фононів з електроном у дискретних ( $d$ ) та неперервних станах ( $c$ ).  $s=\pm$  нумерує фононні гілки в наногетеросистемі, що вивчається. Оскільки така система містить дві границі поділу типу напівпровідник/діелектрик, то існують дві фононні гілки ( $\pm$ ).

Перенормовану фононами енергію ( $\tilde{E}_{10}$ ) основного електронного рівня доцільно виразити через енергію основного стану  $E_{10}$  та повний зсув ( $\Delta$ ) основного рівня

$$\tilde{E}_{10} = E_{10} + \Delta. \quad (19)$$

Враховуючи структуру масового оператора (15), будемо досліджувати парціальні зсуви, які зумовлені відповідними механізмами електрон-фононної взаємодії:

$$\Delta = \Delta_{eL} + \Delta_{eI} + \Delta_{ec}. \quad (20)$$

Розрахунок для конкретної наногетеросистеми виконувався на основі формул (17)-(20) цього параграфа.

### Аналіз зсувів електронних рівнів на прикладі наногетеросистеми скло/CdSe/скло

Розрахунок перенормованих взаємодією з фононами електронних спектрів на основі розвинутої теорії виконувався на прикладі напівпровідникової КТ CdSe, оточеної з обох боків скло. Вибір такої системи спричинений тим, що в ній досить слабкий електрон-фононний зв'язок.

Фізичні параметри наносистеми, які використовувались при розрахунках, наведені у таблиці 1. За винятком глибин потенціальних ям, решта параметрів такі самі, як і в роботі [8].

Оскільки при  $T=0$  К взаємодія електрона відбувається лише у процесах випромінювання  $L$ - і  $I$ -фононів, то всі парціальні внески і повний зсув від'ємні.

Таблиця 1. Параметри кристалів

| Середовище | $U$ ,<br>меВ | $m_e(m_0)$ | $\epsilon_0$ | $\epsilon_\infty$ | $\Omega_L$ ,<br>меВ | $\Omega_T$ ,<br>меВ |
|------------|--------------|------------|--------------|-------------------|---------------------|---------------------|
| CdSe       | 1820         | 0,13       | 9,3          | 6,1               | 26,54               | 21,49               |

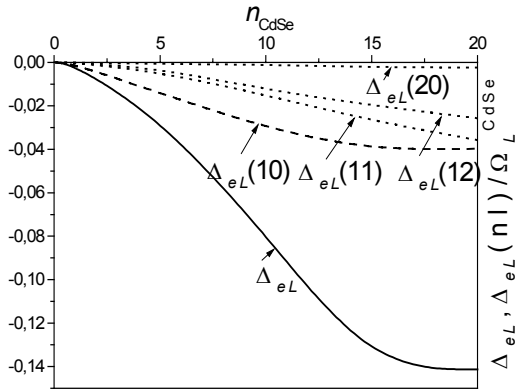


Рис.1. Залежність парціальних зсувів, що формуються обмеженими фононами, від розміру КТ.

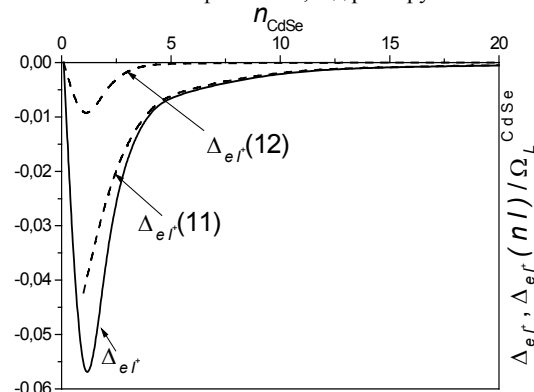


Рис.2. Залежність парціальних зсувів, що формуються інтерфейсними (+) фононами, від розміру КТ.

На рис.1 зображено картину формування парціального зсуву обмеженими фононами  $\Delta_{eL}$ . З рисунка видно, що при малих розмірах КТ у наногетеросистемі з'являються основний та кілька збуджених рівнів ( $n, \ell$  – головне та орбітальне квантові числа відповідно). Якісна поведінка зсувів, зумовлених різними рівнями, однакова: після появи рівня з ростом  $n_{CdSe}$  його внесок у величину  $\Delta_{eL}$  повільно зменшується, виходячи на насичення. Кількісно найбільший внесок дає внутрірівнева взаємодія. Хоча внески рівнів зі збільшенням  $n_{CdSe}$  зменшуються, їх кількість у квантовій ямі швидко зростає. Отже, сумарний зсув, що формується кінематичною взаємодією через обмежені фонони, поступово зростає, досягаючи максимуму.

Із загальної теорії випливає, що внутрірівнева взаємодія електрона з інтерфейсними фононами у сферично симетричних станах ( $\ell=0$ ) відсутня. Тому на рис.2,3 видно, що парціальні зсуви  $\Delta_{e\Gamma^+}$ ,

$\Delta_{e\Gamma^-}$  сформовані лише міжрівневою взаємодією (основного стану з іншими) через дві гілки ( $F^+, F^-$ ) відповідно. При всіх розмірах КТ величини  $\Delta_{e\Gamma^+}$  перевищують  $\Delta_{e\Gamma^-}$ .

Із ростом КТ величини обох зсувів швидко досягають максимуму, а потім повільно зменшуються. Це зменшення пов'язане з тим, що при рості розміру КТ електрон локалізується у квантовій ямі CdSe, тобто ймовірність його перебування на межі поділу середовищ поступово зменшується до нуля, а саме там має максимум потенціал поля поляризації, зумовлений інтерфейсними фононами.

Варто зауважити, що хоча врахування електрон-фононої взаємодії через стани неперервного спектра ( $\Delta_{ec}$ ) значно збільшує числові розрахунки, однак воно необхідне, оскільки, як показують конкретні обчислення, цей механізм дає не менше 10 % вкладу в перенормовані параметри спектра.

На рис.4 показано залежності парціальних та повного зсувів від розміру КТ. Як видно з рисунка, зсув, зумовлений взаємодією через континуальні стани, дає майже постійну величину.

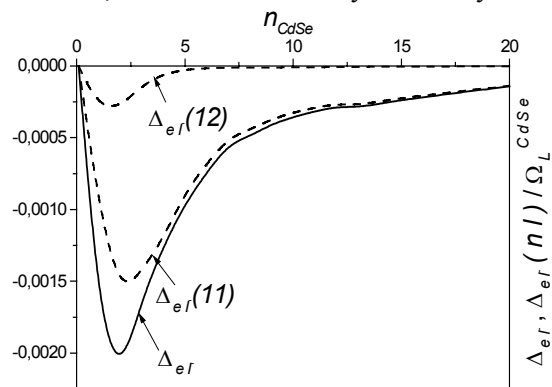


Рис.3. Залежність парціальних зсувів, що формуються інтерфейсними (-) фононами, від розміру КТ.

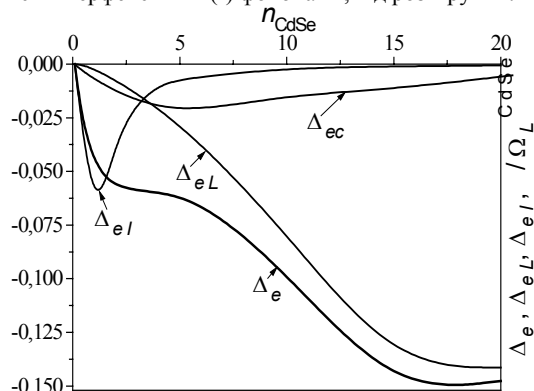


Рис.4. Залежність повного та парціальних зсувів від розміру КТ.

Основний внесок у величину повного зсуву вносять обмежені фонони. Інтерфейсні фонони обох гілок роблять суттєвий внесок лише при малих розмірах, а потім їх внесок збільшується.

При зростанні розміру КТ величина сумарного зсуву виходить на насичення, наближаючись до величину зсуву в масивному кристалі CdSe.

Отже, за допомогою апарата функції Гріна показано, що при малих розмірах КТ зсув, зумовлений взаємодією з оптичними та інтерфейсними фононами через дискретні та неперервні стани, зменшується, а при великих розмірах КТ – наближається до величину зсуву основного стану в масивному гетерокристалі CdSe.

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Mori N., Ando T.* Electron-optical-phonon interaction in single and double hetero-structures // *Phys. Rev. B.* - 1989. - **40**, No.9. - P.6175-6188.
2. *Hai G.Q., Peeters F.M. and Devreese J.T., Wendler L.* Screening of the electron-phonon interaction in quasi-one dimensional semiconductor structures // *Phys. Rev. B.* - 1993. - **48**, No.16. - P.12016-12022.
3. *Klein M., Hache F., Richard D., Flytzanis C.* Size dependence of electron-phonon coupling in semiconductor nanospheres: The case of CdSe // *Phys. Rev. B.* - 1990. - **42**, No.17. - P.11123-11133.
4. *Crus R.M., Teitsworth S.W., Strocia M.A.* Interface phonons in spherical GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum dots // *Phys. Rev. B.* - 1995. - **52**, No.12. - P.1489-1496.
5. *Marini J.S., Stebe B., Kartheuser E.* Exciton - phonon interaction in CdSe and CuCl polar semiconductor nanospheres // *Phys. Rev. B.* - 1994. - **50**, No.19. - P.14302-14308.
6. *Ткач Н.В.* Электрон-фононное взаимодействие в сферических наногетероструктурах // *ФТТ.* - 1997. - **39**, №6. - С.1109-1113.
7. *Ткач М., Holovatsky V., Voitsekhivska O., Min'kova M.* Exciton-phonon interaction in spherical nanoheterosystem CdS/HgS/H<sub>2</sub>O // *Phys. Stat. Sol.* - 1997. - **203**, No.2. - P.373-386.
8. *Oshiro K., Akai K., Matsuura M.* Polaron in a spherical quantum dot embedded in a nonpolar matrix // *Phys. Rev. B.* - 1998. - **58**, No.12. - P.7986-7993.
9. *Ткач М., Holovatsky V., Voitsekhivska O., Mykhal'yova M., Fartushynsky R.* Electron-phonon interaction in Semiconductor Spherical Quantum Dot Embedded in a Semiconductor Medium (HgS/CdS) // *Phys. Stat. Sol. B.* - 2001. - **225**, No.2. - P. 331-342.
10. *Фурсов Ю.А.* Поляроны. - М.: Наука, 1975.
11. *Madelung O.* Semiconductors - Basic Data, 2nd revised ed. (Springer, Berlin, 1996) - P.247.
12. *Абрикосов А.А., Горшков Л.П., Дзелошинский И.Е.* Методы квантовой теории поля в статистической физике. - М.: Физматгиз, 1962.