

О.В. Деревянчук, Н.К. Крамар, В.М. Крамар

Прояви міжрівневої екситон-фононної взаємодії в екситонному спектрі іонного напівпровідника

Чернівецький національний університет ім. Юрія Федьковича, вул. Коцюбинського 12, м. Чернівці, 58000, Україна,
E-mail: kramar@itf.cv.ua

У наближенні діелектричного континууму для фононної системи та ефективних мас – для електронної, методами теорії функцій Гріна вивчено вплив поздовжніх оптичних фононів на формування спектрів поглинання, пов'язаних з прямими фотопереходами у nS -стани ($n = 1, 2, 3$) екситона Ваньє-Мотта з урахуванням міжрівневої взаємодії. Розрахунки виконані на прикладі напівпровідникового кристалу β -CdS при 0 К. Показано, що екситон-фононна взаємодія за участі станів сусідніх екситонних зон приводить до зростання величини довгохвильового зміщення смуг поглинання порівняно з аналогічними розрахунками у рамках однозонної моделі. Викликані нею зміщення можуть бути причиною порушення серіальних закономірностей екситонних спектрів у іонних напівпровідниках.

Ключові слова: екситон, спектр поглинання, напівпровідник, екситон-фононна взаємодія.

Стаття поступила до редакції 02.04.2009; прийнята до друку 15.06.2009.

Вступ

Екситонна спектроскопія дозволяє одержати обширну інформацію про кристалічну і зонну структуру напівпровідників, стаціонарні стани теплових та електромагнітних збуджень, їх взаємодію, а також вплив на них різноманітних зовнішніх чинників [1]. Зокрема, дослідження характеристик смуг поглинання світла, що реалізується за різними механізмами, у т.ч. й внаслідок переходів у основний та збуджені екситонні стани, дозволило довести співіснування прямих і непрямих вертикальних екситонних переходів у селеніді індію [2]. Для цього авторами [2] була використана теорія Елліота-Тоязави [3, 4] (без урахування можливості екситон-фононної взаємодії за участі станів сусідніх екситонних зон) та ряд емпірично встановлених співвідношень і параметрів. Проте, у кристалах, енергія фонона у яких перевищує відстань між екситонними зонами, використання однозонної моделі виглядає необґрунтованим.

У цій статті продемонстровано можливість методу функцій Гріна для дослідження смуг екситонного поглинання у рамках багатозонної моделі. Використовуючи модель діелектричного континууму для фононної системи та наближення ефективних мас для електронної, на прикладі іонних напівпровідників зі слабким електрон-фононним зв'язком отримано явний вигляд дійсної і уявної частин масового оператора функції Гріна $M(\omega) = \Delta(\omega) - i\pi\Gamma(\omega)$ [5], що дозволяє встановити

форму смуги екситонного поглинання та її характеристики. Показано, що екситон-фононна взаємодія за участі станів сусідніх екситонних зон (міжрівнева або конфігураційна взаємодія) приводить до зміщення максимумів екситонних смуг у бік менших енергій, порівняно з визначеними за формулою Елліота

$$E_n = E_g - \frac{R_{ex}}{n^2} \quad (1)$$

(тут n – квантове число, $R_{ex} = \mu^2 e^4 / (2\hbar^2 \epsilon^2)$ – екситонний рідберг, $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$, а m_e (m_h) – маса електрона (дірки) у напівпровіднику з шириною забороненої зони E_g). Величини зміщень та розширення смуг у цьому випадку суттєво зростають порівняно з аналогічними розрахунками у рамках однозонної моделі.

I. Постановка задачі та досліджувана модель

Сpektри оптичного поглинання на довгохвильовій межі фундаментальної смуги формуються взаємодією трьох систем квазічастинок – фотонів, екситонів та фононів. В околі абсолютного нуля температур у прямозонному напівпровіднику така взаємодія може реалізуватися за схемою прямого фотопереходу – збудження екситона (внаслідок взаємодії фотона з електронним станом $\vec{k} = 0$ валентної зони) та подальшого його

релаксацією, наприклад шляхом випромінення фонона. Частотна залежність коефіцієнта поглинання за таким механізмом визначається формулою

$$\alpha(\omega) = \frac{2\pi |D_0|^2 \Gamma(\omega)}{[\omega - \omega_0 - \Delta(\omega)]^2 + \Gamma^2(\omega)} = 2\pi |D_0|^2 S(\omega), \quad (2)$$

де D_0 – матричний елемент дипольного моменту переходу, а $S(\omega)$ – функція форми смуги поглинання, яка визначається дійсною і уявною частинами масового оператора $M(\omega, \vec{k}) = \Delta(\omega, \vec{k}) - i\Gamma(\omega, \vec{k})$ функції Гріна екситонів [5].

Розглядається взаємодія поздовжніх оптичних фононів з екситонами в основному (1S) та двох наступних nS -станах ($n = 2, 3$) у іонному напівпровіднику зі слабким електрон-фононним зв'язком (ЕФЗ). Припущення про слабкість ЕФЗ дозволяє обмежитись однофононним наближенням і розглядом взаємодії, лінійної за фононними операторами. Тоді для дослідження функції форми смуги екситонного поглинання, пов'язаного з переходом у nS -стан, при абсолютному нулі температур масовий оператор подається [6] у вигляді

$$M_n(\omega) = \frac{1}{N\hbar} \sum_{n', \vec{q}} \frac{|F_{nn'}(\vec{q})|^2}{\hbar\omega - E_{n'\vec{q}} - \hbar\Omega + i\gamma}, \quad (3)$$

де

$$F_{nn'}(\vec{q}) = \sqrt{\frac{2\pi\hbar e^2 \Omega}{V_0 \epsilon}} \cdot \frac{1}{q} [I_{nn'}^{(h)}(\vec{q}) - I_{nn'}^{(e)}(\vec{q})]^{-}$$

функція зв'язку екситона з n -ої зони, енергія якого

$$E_{n\vec{k}} = E_g - \frac{R_{ex}}{n^2} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{ex}},$$

та оптичного фонона, енергія якого $\hbar\Omega$ не залежить від хвильового вектора \vec{q} , за участі станів n' -ої зони;

$$I_{nn'}^{(p)}(\vec{q}) = \iiint \varphi_n^*(\vec{r}) e^{i(\vec{q}_p, \vec{r})} \varphi_{n'}(\vec{r}) d^3r; \quad (4)$$

γ – величина, що враховує поздовжню релаксацію екситонів у кристалі з діелектричною проникністю ϵ , який налічує N елементарних комірок об'єму V_0 кожна; індекс p розрізняє характеристики електрона ($p = e$) та дірки ($p = h$); $\vec{q}_e = m_h \vec{q} / m_{ex}$, $\vec{q}_h = m_e \vec{q} / m_{ex}$ [5], $m_{ex} = m_e + m_h$.

Використовуючи набір ортонормованих хвильових функцій $\varphi_n(\vec{r})$ водневоподібної системи у nS -станах ($n = 1, 2, 3$) [7], розвинення

$$e^{i(\vec{q}, \vec{r})} = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l j_l(qr) P_l(\cos \theta_{qr}) \quad (5)$$

у ряд за сферичними функціями Бесселя $j_l(x)$ ($P_l(\cos \theta)$ – поліноми Лежандра l -го порядку, θ_{qr} – кут між векторами \vec{q} і \vec{r}), та враховуючи сферичну симетрію функцій S -станів, отримуємо аналітичний вигляд функцій ЕФЗ (4):

$$I_{11}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{1}{[1 + \alpha_p^2/4]^2},$$

$$I_{12}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{64\sqrt{2}(2\alpha_p/3)^2}{27[1 + (2\alpha_p/3)^2]^3},$$

$$I_{13}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{3\sqrt{3}(3\alpha_p/4)^2}{16} \cdot \frac{1 + 3(3\alpha_p/4)^2}{[1 + (3\alpha_p/4)^2]^4},$$

$$I_{22}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{1 - 3\alpha_p^2 + 2\alpha_p^4}{(1 + \alpha_p^2)^4},$$

$$I_{23}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{192\sqrt{6}(6\alpha_p/5)^2}{15625} \times$$

$$\frac{115 - 194(6\alpha_p/5)^2 + 75(6\alpha_p/5)^4}{[1 + (6\alpha_p/5)^2]^5},$$

$$I_{33}^{(p)}(\vec{q}) = \frac{1}{[1 + (3\alpha_p/2)^2]^6} \cdot [1 - \frac{28(3\alpha_p/2)^2}{3} +$$

$$+ 24(3\alpha_p/2)^4 - 16(3\alpha_p/2)^6 + 3(3\alpha_p/2)^8],$$

де $\alpha_p = q_p a_{ex}$.

Далі зручно перейти до безрозмірних змінних $y = qa/\pi$ (a – постійна ґратки), записавши

$$F_{nn'}(y) = \frac{\sqrt{f_0 \Omega}}{y} [I_{nn'}^{(h)}(y) - I_{nn'}^{(e)}(y)] \quad (6)$$

($f_0 = 4\hbar e^2 a^2 / (V_0 \epsilon)$ – константа ЕФЗ) прононор-мувати усі енергетичні характеристики на ширину екситонної зони $L = \hbar^2 \pi^2 / (2m_{ex} a^2)$ та визначати їх у шкалі, початок якої збігається з найнижчим екситонним рівнем $E_0 = E_g - R_{ex}$.

Переходячи у масовому операторі (3) від суми за квазіімпульсом \vec{q} до інтегрування за змінною y , його реальної та уявної частини подаємо у вигляді

$$\Delta_n(w) = f_0 \Omega \int_0^1 \frac{i_n(y)}{y^2 - q_n^2(w)} dy \quad (7)$$

та

$$\Gamma_n(w) = \Gamma_{n0} + \pi f_0 \Omega \sum_{n'} \frac{i_{nn'}[q_{n'}(w)]}{2q_{n'}(w)}, \quad (8)$$

відповідно. Тут $i_{nn'}(y) = [I_{nn'}^{(h)}(y) - I_{nn'}^{(e)}(y)]^2$, $q_n(w) = w - R_{ex}(1 - 1/n^2) - \Omega$, $w = (\hbar\omega - E_0)/L$, Γ_{n0} – стала, що враховує поздовжню релаксацію відповідного екситонного стану [5], а інтеграл у (7) береться у розумінні головного значення.

Частотна залежність функції форми смуги поглинання, пов'язаного з екситонним переходом у n -й стан, встановлюється за відомими значеннями дійсної і уявної частин масового оператора:

$$S_n(w) = \frac{\Gamma_n(w)}{[w - R_{ex}(1 - 1/n^2) - \Delta_n(w)]^2 + \Gamma_n^2(w)} \quad (9)$$

II. Результати розрахунків

Конкретні розрахунки виконані на прикладі кристалу β -CdS енергія оптичного фонона у якому перевищує відстані між сусідніми екситонними зонами ($\hbar\Omega = 57,2$ меВ, $R_{ex} = 25,6$ меВ) з використанням параметрів $a = 5,818$ Å; $\epsilon_0 = 9,1$; $\epsilon_\infty = 5,5$; $m_e = 0,20m_0$; $m_h = 0,70m_0$; $E_g = 2,5$ еВ. У якості Γ_{n0} взято величину природного розширення екситонної лінії, однакову для усіх n .

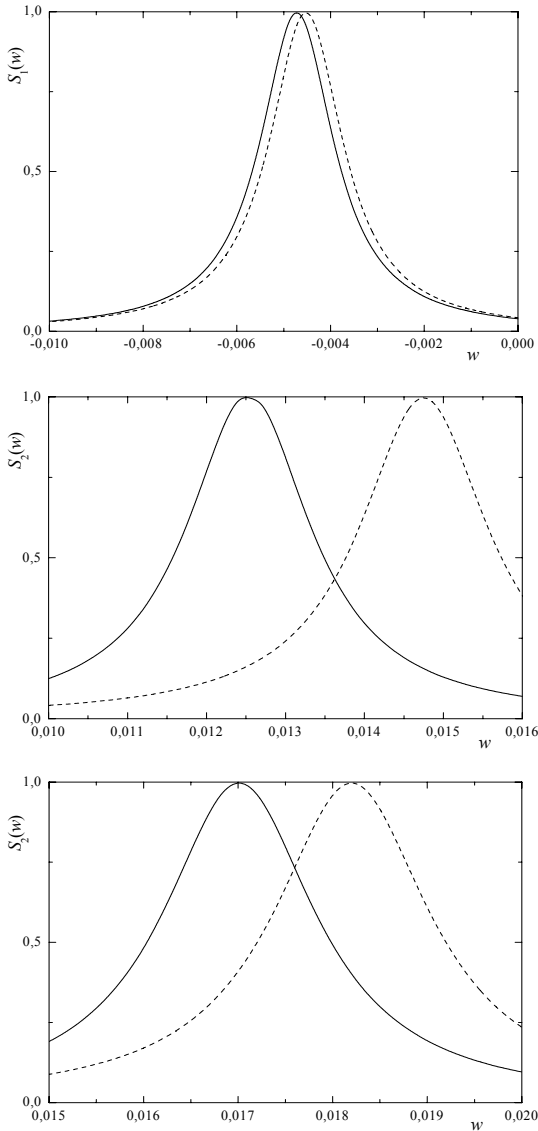


Рис. 1. Залежність функцій форми смуг поглинання від енергії (в одиницях $w = (\hbar\omega - E_0)/L$) переходу у nS -стани. (Розривні криві – результати однозонної моделі).

Графіки функцій форми смуг поглинання, пов'язаних з екситонними переходами у nS -стани (суцільні криві) наведені на рис. 1 разом з результатами однозонної моделі (розривні лінії). Видно, що максимуми смуг зміщені відносно положень, визначених формулою (1). Величина зміщення смуг, пов'язаних з переходом в основний і збуджені стани – різна. Найбільш зміщеною

виявляється основна смуга ($n = 1$). Приріст величини зміщення порівняно з результатами однозонної моделі також різний – у основній смуги найменший.

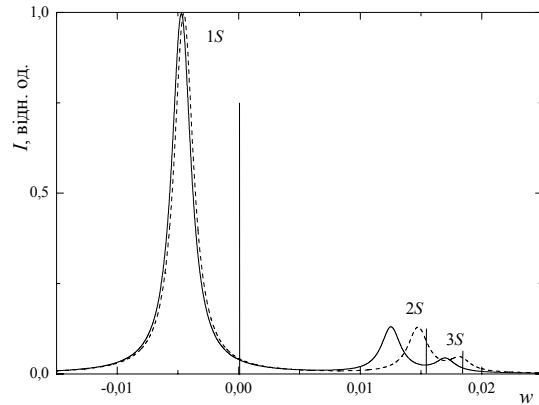


Рис. 2. Положення спектральних ліній, одержані згідно формули (1) (вертикальні прямі), без (розривна крива) та з урахуванням ЕФВ за участі 1S, 2S та 3S-станів (суцільна крива).

Спектр екситонного поглинання, побудований у припущенні, що сила осцилятора екситонного переходу обернено пропорційна до n^3 [3], показано на рис. 2. Видно, що спектральні смуги $n = 1, 2, 3$ у β -CdS мають бути добре розділені, що і спостерігається експериментально [8]. Відношення розрахованої величини відстані між їхніми піками $n = 1$ та $n = 2$ до визначеної за різницею довжин хвиль відповідних ліній 4854 Å та 4814 Å, спостережуваних у спектрі β -CdS [8] становить $1,02$ проти результатів однозонної моделі (1,12) та формули Елліотта (0,9). Аналогічні, відношення для піків $n = 1$ і $n = 3$ (4806 Å) становлять, відповідно, $1,07$, $1,1$ та $0,89$. Це свідчить про те, що а) відстані між експериментально спостережуваними екситонними піками перевищують значення, отримані за допомогою формули (1); б) найкраще узгоджений з експериментом результат дає теорія, що враховує екситон-фононну взаємодію за участі усіх екситонних станів.

Висновки

У рамках багатозонної моделі екситон-фононної взаємодії, де взято до уваги виключно прямі екситонні переходи в околі абсолютного нуля температур, розраховано положення смуг екситонного поглинання.

Урахування вказаної взаємодії приводить до збільшення, порівняно з результатами однозонної моделі, величини зміщення максимумів екситонних смуг у довгохвильову область спектра.

Величина зміщення смуг, сформованих переходами у основний та збуджені екситонні стани, різна внаслідок особливостей залежності відповідних функцій ЕФЗ від квазіімпульсу. Цей факт може бути причиною експериментально спостережуваного

порушення серіальних закономірностей у екситонних спектрах.

Деревянчук О.В. – асистент кафедри оптики і спектроскопії;

Крамар Н.К. – кандидат фізико-математичних наук, асистент кафедри оптики і спектроскопії;

Крамар В.М. – кандидат фізико-математичних наук, доцент кафедри оптики і спектроскопії.

- [1] *Экситоны*. Под ред. Э.И. Рашба, М.Д. Струджа, Наука, М. 616 с. (1985).
- [2] Yu.I. Zhirko, I.P. Zharkov. Light absorption by excited exciton states in layered InSe crystals // *Semicond. Phys., Quant. Electr. & Optoelectr.*, **5** (2), pp. 156-162 (2002).
- [3] R.J. Elliott. Intensity of Optical Absorption by Excitons // *Phys. Rev.*, **108** (6), pp. 1384-1389 (1957).
- [4] Y. Toyozawa. Theory of line-shapes of the exciton absorption bands // *Progr. Theor. Phys.*, **20**, pp. 53-81 (1958).
- [5] А.С. Давыдов. *Теория твердого тела*. Наука, М. 676 с. (1976).
- [6] М.В. Ткач. *Квазічастинки у наногетеросистемах. Квантові точки і дроти*. Вид-во ЧНУ, ім. Ю. Федьковича: Чернівцію 311 с. (2003).
- [7] Вакарчук І.О. *Квантова механіка*. Вид-во ЛДУ ім. І. Франка, Львів. 616 с. (1998).
- [8] Е.Ф. Гросс. Экситон и его движение в кристаллической решетке // *УФН*, **76**(5), сс. 433-442 (1962).

A.V. Derevyanchuk, N.K. Kramar, V.M. Kramar

Manifestations of the Interband Exciton-Phonon Interaction in the Exciton Spectrum of Polar Semiconductor

*Chernivtsi National University, 2 Kotsybynsky Str., Chernivtsi, 58012, Ukraine,
E-mail: kramar@itf.cv.ua*

The influence of the longitudinal optical phonons on the absorption spectrum caused by direct transitions to nS -states ($n = 1, 2, 3$) of Mott-Vannier exciton there is studied. The calculations were carried out by Green's function method in the approximation of dielectric continuum for phonons, and of the effective mass for electrons for semiconductor β -CdS as example. Interaction of optical phonon with excitonic states from the several bands at 0 K was taken into account. It was shown that such interaction is a cause of increasing the value of the exciton absorption bands shift to long-wave region in comparison with results of one-band model calculations. Shifts caused by this interaction can be a reason of the breach serial regularities of the exciton absorption spectra in polar semiconductors.

Key words: exciton, absorption spectrum, semiconductor, exciton-phonon interaction.