

# 半导体量子点中强耦合激子的性质\*

李志新<sup>1,2</sup> 肖景林<sup>2,†</sup>

(1 河北科技师范学院数理系, 秦皇岛 066004)

(2 内蒙古民族大学物理系, 通辽 028043)

**摘要:** 研究了抛物型半导体量子点中强耦合激子的性质. 在有效质量近似下, 采用线性组合算符和么正变换的方法, 导出了半导体量子点中重空穴激子的基态能量. 在强耦合情况下讨论了量子点半径和受限强度对半导体量子点中激子基态能量的影响. 以氯化铊(TlCl)半导体为例进行了数值计算. 结果表明: 在强耦合情况下, 重空穴激子的基态能量随量子点半径的增大而减小, 随量子点受限强度的增大而增大.

**关键词:** 半导体量子点; 激子; 线性组合算符; 强耦合

**PACC:** 6320; 7138

**中图分类号:** O469

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2006)10-1755-04

## 1 引言

在激子问题中, 一类重要的问题就是讨论在极化晶体中的瓦尼尔激子与 LO 声子的相互作用. 自从 Haken<sup>[1]</sup> 在 1956 年的关于极性半导体中激子-声子相互作用的开创性研究发表以来, 人们对瓦尼尔激子与声子场相互作用系统的问题在理论与实验方面进行了深入研究. 极化晶体中价带的电子吸收了能量小于禁带宽度的光子跃迁到激发态, 被正电性的空穴借库仑作用而束缚住, 人们将这种电子-空穴束缚对称为激子. 激子现象广泛地存在于各种材料中, 在材料的介电常数较大, 电子和空穴的有效质量较小的情况下, 电子和空穴之间的静电束缚能较弱, 这种条件下形成的激子叫瓦尼尔激子; 在介电常数小或具有大的电子和空穴有效质量的分子材料和绝缘材料中, 电子和空穴被紧束缚在同一个原子或分子上, 这种紧束缚状态下的激子称为夫伦克耳激子. 半导体材料中涉及的激子多为瓦尼尔激子. 在半导体量子点中, 由于载流子在空间三个方向上均受到限制, 从而极大地提高了空穴和电子云之间的重叠, 导致了库仑束缚能量和振子强度的加强, 所以在半导体量子点中, 激子效应显得尤其重要.

由于激子结构组成的复杂性, 一些学者采用多种理论模型对半导体量子点中的激子进行了研究. 求解这一问题的主要方法可以分为三大类: (1) 变分法<sup>[2~6]</sup>, 它包括 Feynman 的路径积分方法<sup>[7]</sup>; (2) 微扰论的方法<sup>[8]</sup>; (3) 格林函数法<sup>[9,10]</sup>. 微扰论的方法

只适用于弱的电子-声子和空穴-声子耦合以及弱结合或大的激子半径的情况. 格林函数法也只适合弱耦合和弱结合的系统, 而且其过程和结果都非常复杂, 还有这两种方法都不能给出系统精确能量的上限, 然而从理论上的观点出发, 获得能量的上限是非常重要的. 一般来说变分的方法能给出能量的上限, 但是由于变分中所采取的变分函数具有近似性, 他们所得的结果已不再是精确能量上限了. 可以预料, 要发展一种适合所有情形的方法是非常困难的. 到目前为止, 对量子点中激子的研究采用线性组合算符方法甚少, 最近本文作者之一<sup>[11,12]</sup> 采用线性组合算符方法研究了量子点中极化子的性质. 对于抛物型能带结构, 有效质量近似方法是一种比较直观且使用较多的方法. 本文在有效质量近似下, 仅考虑电子-声子强耦合的情况采用线性组合算符和么正变换的方法对氯化铊(TlCl)量子点的基态能量进行了计算.

## 2 理论与计算

我们考虑一个约束在抛物势量子点中运动的激子. 在有效质量近似下, 具有电子-体纵光学声子相互作用系统的哈密顿量可写为:

$$H = \frac{P_R^2}{2M} + \frac{P_r^2}{2\mu} + \frac{1}{2}M\omega_0^2 R^2 + \frac{1}{2}\mu\omega_0^2 r^2 - \frac{e^2}{\epsilon_\infty r} + \sum_q \hbar\omega_L a_q^+ a_q + \sum_q \{a_q V_q \xi_q(r) e^{iq \cdot R} + hc\} \quad (1)$$

第一项和第二项分别表示电子质心和相对运动的动能; 第三项和第四项分别表示电子质心和相对运动

\* 国家自然科学基金资助项目(批准号:10347004)

† 通信作者. Email: xiaojlin@126.com

2006-01-19 收到, 2006-04-15 定稿

的抛物势约束;第五项表示电子的库仑静电相互作用能;第六项表示 LO 声子能量;最后一项为电子与 LO 声子的相互作用能.其中  $M = m_c^* + m_h^*$ ,  $\mu = \frac{m_c^* m_h^*}{M}$ , 分别是电子和空穴有效质量的总质量和折合质量.  $\omega_0$  是抛物束缚势的频率,  $a_q^+$  ( $a_q$ ) 是具有波矢  $q$  能量为  $\hbar\omega_L$  的体纵光学声子的产生(湮灭)算符,  $V$  是晶体的体积. 符号  $\xi_q(r)$  表示为

$$\xi_q(r) = e^{iq \cdot r_2} - e^{-iq \cdot r_1} \quad (2)$$

电子-声子耦合系数可写为

$$V_q = i \left[ \frac{2\pi e^2 \hbar \omega_L}{V q^2} \right]^{1/2} \left( \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (3)$$

引进激子质心坐标和动量的产生(湮灭)算符

$$p_j = \left( \frac{M \hbar \lambda}{2} \right)^{1/2} (b_j^+ + b_j) \quad j = x, y, z \quad (4)$$

$$R_j = i \left( \frac{\hbar}{2M\lambda} \right)^{1/2} (b_j - b_j^+) \quad (5)$$

这里  $\lambda$  是变分参量.  $b_j$  和  $b_j^+$  满足对易关系

$$[b_i, b_j^+] = \delta_{ij} \quad (5)$$

把(4)和(5)式代入(1)式进行么正变换得

$$H' = U^{-1} H U \quad (6)$$

这里

$$U = \exp \left\{ \sum_q (a_q^+ f_q - a_q f_q^*) \right\} \quad (7)$$

其中  $f_q$  ( $f_q^*$ ) 是变分参量. 则(1)式变为

$$H' = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 - \frac{e^2}{\epsilon_\infty r} + \frac{1}{2} \mu \omega_0^2 r^2 + \frac{\hbar \lambda}{2} \left( \sum_j b_j^+ b_j + \frac{3}{2} \right) + \frac{\hbar \lambda}{4} \sum_j (b_j^+ b_j^+ + b_j b_j) + \sum_q \hbar \omega_L (a_q^+ + f_q^*) (a_q + f_q) + \frac{\hbar \omega_0^2}{4\lambda} (b_j b_j + b_j^+ b_j^+) + \frac{\hbar \omega_0^2}{2\lambda} \left( \sum_j b_j^+ b_j^+ + \frac{3}{2} \right) + \sum_q \{ (a_q + f_q) V_q \xi_q(r) \exp(-\frac{\hbar q^2}{4M\lambda}) \times \exp[-(\frac{\hbar}{2M\lambda})^{1/2} q b_j^+] \times \exp[(\frac{\hbar}{2M\lambda})^{1/2} q b_j] + hc \} - \frac{i\hbar}{2\mu} \sum_q [(a_q^+ \nabla_r f_q^*) \times p_R + p_r \times (a_q^+ \nabla_r f_q - a_q \nabla_r f_q^*)] + \frac{\hbar^2}{2\mu} \sum_q |\nabla_r f_q|^2 - \frac{\hbar^2}{2\mu} \sum_{q,q'} (a_q^+ a_{q'}^+ \nabla_r f_q \cdot \nabla_r f_{q'} + a_q a_{q'} \nabla_r f_{q'} \cdot \nabla_r f_q^*) + \frac{\hbar^2}{\mu} \sum_{q,q'} a_q^+ a_{q'} \nabla_r f_q \cdot \nabla_r f_{q'}^* \quad (8)$$

其中

$$f_q = - \frac{V_q^* \xi_q^*(r) \exp(-\frac{\hbar}{4M\lambda} q^2)}{\hbar \omega_L} \quad (9)$$

这里忽略了电子在反冲过程中发射不同虚声子之间的相互作用. 为了求出激子的基态能量, 我们选取波函数为

$$|\psi\rangle = |\phi(r)\rangle |0\rangle \quad (10)$$

这里  $|\phi(r)\rangle$  描写激子内部运动波函数,  $|0\rangle$  描写激子质心运动和体纵光学声子的真空态.  $b_j$  和  $a_q$  满足

$$b_j |0\rangle = 0, \quad a_q |0\rangle = 0 \quad (11)$$

把(10)和(11)式代入到(8)式得

$$H_1(\lambda) = \frac{3}{4} \hbar \lambda + \sum_q \hbar \omega_L |f_q|^2 + \frac{3\hbar \omega_0^2}{4\lambda} + \frac{p_r^2}{2\mu} - \frac{e^2}{\epsilon_\infty r} + \frac{1}{2} \mu \omega_0^2 r^2 + \sum_q \{ f_q V_q \xi_q(r) \times \exp(-\frac{\hbar q^2}{4M\lambda}) + hc \} + \frac{\hbar^2}{2\mu} \sum_q |\nabla_r f_q|^2 \quad (12)$$

把  $f_q$  的值代入(12)式, 求和变积分利用文献[13]的计算结果我们得到

$$H_1(\lambda) = \frac{3}{4} \hbar \lambda + \frac{3\hbar \omega_0^2}{4\lambda} + \frac{p_r^2}{2\mu} + \frac{1}{2} \mu \omega_0^2 r^2 - \frac{e^2}{\epsilon_\infty r} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} \alpha \hbar \omega_L - \frac{ce^2}{r} \operatorname{erfc} \left[ \frac{1}{2} \times \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} u r \right] + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{3/2} \alpha \hbar \omega_L \left[ \frac{\beta}{2} + \exp(-\frac{\lambda u^2 r^2}{4\omega_L}) \right] \quad (13)$$

这里

$$\alpha = \left( \frac{Me^2}{\hbar^2 u} \right) \left( \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right), \quad \frac{\hbar^2 u^2}{2M} = \hbar \omega_L \quad (14)$$

$H_1(\lambda)$  对  $\lambda$  变分

$$\frac{\partial H_1(\lambda)}{\partial \lambda} = \frac{3}{4} \hbar - \frac{3\hbar}{4\lambda^2} \omega_0^2 - \frac{\alpha \hbar}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{-1/2} + \frac{3\alpha \hbar \beta}{4\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} - \frac{\sqrt{2} c e^2 u^2 r \sqrt{\pi}}{4\omega_L} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{-1/2} e^{-1/4 \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right) u^2 r^2} + \frac{3\alpha \hbar}{2\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} \exp(-\frac{1}{4} \times \frac{\lambda}{\omega_L} u^2 r^2) + \frac{\alpha \hbar \omega_L}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{3/2} \exp(-\frac{\lambda u^2 r^2}{4\omega_L}) \left( -\frac{u^2 r^2}{4\omega_L} \right) = 0 \quad (15)$$

其中  $\beta = \frac{\beta_1^2 + \beta_2^2}{2\beta_1 \beta_2}$ . 利用(15)式解出  $\lambda$  是十分困难的, 为此必须进行简化处理. 对于强耦合的 Wannier 激子,  $\exp(-\frac{1}{4} \times \frac{\lambda}{\omega} u^2 r^2) \ll 1$ , (13)和(15)式可以简化为:

$$H_1(\lambda) = \frac{3}{4} \hbar \lambda + \frac{3\hbar \omega_0^2}{4\lambda} + \frac{p_r^2}{2\mu} + \frac{1}{2} \mu \omega_0^2 r^2 - \frac{e^2}{\epsilon_\infty r} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} \alpha \hbar \omega_L + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{3/2} \alpha \hbar \omega_L \times \frac{\beta}{2} \quad (16)$$

$$\frac{\partial H_1(\lambda)}{\partial \lambda} = \frac{3}{4} \hbar - \frac{3\hbar}{4\lambda^2} \omega_0^2 - \frac{\alpha \hbar}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{-1/2} + \frac{3\alpha \hbar \beta}{4\sqrt{\pi}} \left( \frac{\lambda}{\omega_L} \right)^{1/2} = 0 \quad (17)$$

这里的  $\lambda$  由(17)式确定. 为了计算方便, 我们将(16)式作无量纲处理, 能量以  $R_y^* = \frac{\mu e^4}{2\hbar^2 \epsilon_0}$  为单位, 长度

以  $a_0^* = \frac{\epsilon_0 \hbar^2}{\mu e^2}$  为单位, 其中  $\mu$  为激子的约化质量, 并定义  $R_0 = \sqrt{\frac{\hbar}{\mu \omega_0}}$  为量子点半径. 则(16)和(17)式重新写为:

$$H_1(\lambda) = -\nabla_r^2 - \frac{2}{r} + \frac{r^2}{R_0^4} + \frac{3}{2} \times \frac{\lambda \mu}{\hbar} + \frac{3}{2} \times \frac{\hbar}{\mu R_0^4} \times \frac{1}{\lambda} - \frac{4\mu\alpha}{\sqrt{\pi}\hbar} \lambda^{1/2} \omega_L^{1/2} + \frac{\mu}{\sqrt{\pi}} \times \frac{\beta}{\hbar} \times \frac{\alpha}{\omega_L^{1/2}} \lambda^{3/2} \quad (18)$$

$$\frac{1}{R_0^4} = \frac{\alpha\beta}{\sqrt{\pi}} \times \frac{\mu^2}{\omega_L^{1/2} \hbar^2} \lambda^{5/2} + \frac{\mu^2}{\hbar^2} \lambda^{4/2} - \frac{4}{3} \times \frac{\alpha\mu^2}{\sqrt{\pi}\hbar^2} \omega_L^{1/2} \lambda^{3/2} + \frac{\alpha\beta}{\sqrt{\pi}} \quad (19)$$

对于 Wannier 激子我们选取相对运动部分波函数<sup>[14]</sup>为

$$|\phi(\mathbf{r})\rangle = \left(\frac{\lambda_0^3}{8\pi}\right) \exp\left(-\frac{\lambda_0 r}{2}\right) \quad (20)$$

则激子的基态能量可由此式算出

$$E_0 = \langle \phi(\mathbf{r}) | H_1(\lambda) | \phi(\mathbf{r}) \rangle \quad (21)$$

### 3 数值计算和讨论

为了更清楚地说明量子点半径和受限强度对激子基态能量的影响, 我们以氯化铊(TlCl) 半导体<sup>[14]</sup>为例进行了数值计算, 所选的参数为:  $\hbar\omega_L = 21.5\text{meV}$ ,  $\epsilon_\infty = 5.10$ ,  $\epsilon_0 = 37.60$ ,  $m_c^* = 0.37m_0$ ,  $m_h^* = 0.36m_0$  (其中  $m_0$  是自由电子的质量). 半导体量子点中强耦合激子的性质表现在基态能量  $E_0$  与量子点半径  $R_0$  和量子点受限强度  $\omega_0$  之间的变化关系, 数值计算结果如图 1~3 所示.

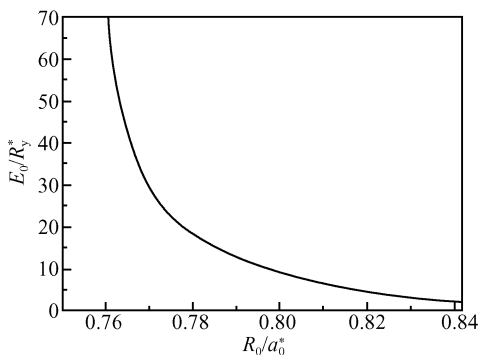


图 1 重空穴激子的基态能量  $E_0$  与半径  $R_0$  的关系

Fig.1 Variation of the ground state energy  $E_0$  of heavy hole exciton on the radius  $R_0$

图 1 是电子-声子强耦合情况下, 重空穴激子的基态能量随量子点半径  $R_0$  的变化关系曲线. 从图 1 可以看出激子的基态能量随量子点半径的减小而迅

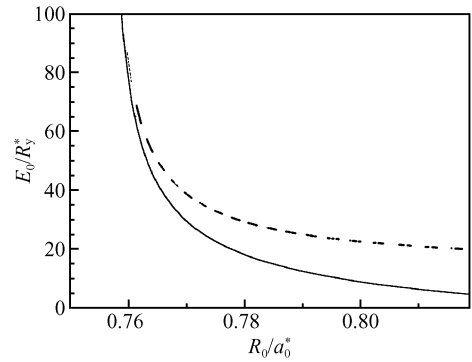


图 2 声子对重空穴激子基态能量的影响

Fig.2 Phonon effect on the ground state energy of heavy hole exciton

速增大, 当量子点半径较大时, 激子的基态能量变化缓慢. 但是当  $R_0 < 0.768a_0^*$  时激子的基态能量随量子点半径的减小而迅速增大.

图 2 表示体纵光学声子对重空穴激子基态能量的影响. 实线表示考虑声子对基态能量的影响, 虚线表示不考虑声子对基态能量的影响. 由图 2 可以看出无论考虑电子-声子相互作用还是不考虑电子和声子相互作用, 激子的基态能量都随量子点半径的减小而增大. 这是因为当量子点半径减小时, 库仑势和电子-体纵光学声子相互作用增强而引起的. 从图中还可以看出, 考虑声子影响时激子的基态能量要低于不考虑声子影响时的能量, 并随着量子点半径  $R_0$  的增大两者之间的能量差值逐渐变大. 这是因为在考虑电子-声子相互作用时电子-声子之间相互作用能是负的, 当量子点半径  $R_0$  增大时, 体纵光学声子和电子之间的相互作用起主要作用, 激子的受限强度减小, 激子的基态能量降低. 所以对激子问题的研究我们不能忽略电子-声子之间的相互作用.

图 3 表示强耦合情况下, 激子的基态能量  $E_0$  随量子点受限强度  $\omega_0$  的变化关系曲线. 由图 3 我们可以看出激子的基态能量随量子点受限强度的增大

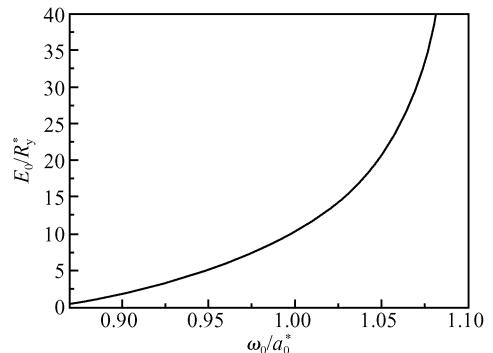


图 3 重空穴激子的基态能量  $E_0$  与受限强度  $\omega_0$  的曲线关系

Fig.3 Variation of the ground state energy  $E_0$  of heavy hole exciton on the confinement strength  $\omega_0$

而增大,当受限强度  $\omega_0$  较大时激子的基态能量增加显著,这是由于量子点受限强度  $\omega_0$  的存在,限制了电子和空穴的运动.随着受限强度  $\omega_0$  的增加,由量子点半径表达式  $R_0 = \sqrt{\frac{\hbar}{\mu\omega_0}}$  可以看出,量子点半径  $R_0$  与量子点束缚强度  $\omega_0$  开方成反比.则量子点半径  $R_0$  减小,以声子为媒介的电子(空穴)热运动能量和电子(空穴)-声子之间相互作用由于粒子运动范围缩小而增强,导致了激子的基态能量的变大.

### 参考文献

- [1] Haken H. Application of Feynman's new variational procedure to the calculation of the ground state energy of excitons. *Il Nuovo Cimento*, 1956, 4: 1608
- [2] Mahler M, Schroder U. Optical properties of excitons in polar semiconductors: energies, oscillator strengths, and phonon side bands. *Phys Rev B*, 1980, 21: 679
- [3] Kayanuma Y. Quantum-size effects of interacting electrons and holes in semiconductor microcrystals with spherical shape. *Phys Rev B*, 1988, 38(14): 9797
- [4] Mahler G, Schroder U. Influence of the electron - phonon coupling on energy states of wannier excitons. *Phys Status Solidi B*, 1974, 61: 629
- [5] Pollman J, Buttner H. Upper bounds for the ground-state energy of the exciton-phonon system. *Solid State Commun*, 1975, 17: 1171
- [6] Adamowwski J, Gerlach B. Treatment of the exciton-phonon interaction via functional integration. I. Harmonic trial actions. *Phys Rev B*, 1981, 23: 2943
- [7] Wang S, Mahutte C K, Matsuura M. Electronic polarization effect on electron states in insulators. *Phys Status Solidi B*, 1972, 51: 11
- [8] Shindo K. Effective electron-hole interaction in shallow excitons. *J Phys Soc Japan*, 1970, 29: 287
- [9] Mahanti S D, Varma C W. Effective electron-hole interactions in polar semiconductors. *Phys Rev B*, 1972, 6: 2209
- [10] Sak J. Effective electron-hole interaction in polar semiconductors. *Phys Rev B*, 1972, 6: 2226
- [11] Xiao Jinglin, Xiao Wei. Effective mass of polaron in semiconductor quantum dots. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2004, 25(11): 1428 (in Chinese) [肖景林, 肖玮. 半导体量子点中极化子的有效质量. *半导体学报*, 2004, 25(11): 1428]
- [12] Chen Shihua, Xiao Jinglin. Properties of strong-coupling polaron in quantum dot. *Chin J Lumin*, 2005, 26(1): 27
- [13] Xiao Jinglin. Excitons in strong coupling polyatomic crystals. *Physica B: Condens Matter*, 1991, 83: 367
- [14] Zhao Guojun, Liang Xixia, Ban Shiliang. Binding energies of Wannier excitons in polar ternary mixed crystals. *Journal of Optoelectronics · Laser*, 2004, 15(4): 487
- [15] Zheng Hang, Fang Junxin. An integral operator method to study the problem of exciton-phonon interaction. *Acta Physica Sinica*, 1986, 35(8): 1029 (in Chinese) [郑杭, 方俊鑫. 研究激子-声子相互作用问题的积分算符方法. *物理学报*, 1986, 35(8): 1029]

## Properties of Strong-Coupling Excitons in Semiconductor Quantum Dots \*

Li Zhixin<sup>1,2</sup> and Xiao Jinglin<sup>2,†</sup>

(1 Department of Mathematics and Physics, Hebei Normal University of Science and Technology, Qinhuangdao 066004, China)

(2 Department of Physics, Inner Mongolia National University, Tongliao 028043, China)

**Abstract:** The properties of strong-coupling excitons in semiconductor quantum dots are investigated using the linear combination operator and unitary transformation methods. The ground state energy of the heavy-hole exciton is obtained under the effective-mass approximation. The influences of the radius of the quantum dots and the confinement strength on the ground state energy of the strong-coupling exciton in the semiconductor quantum dots are discussed in the case of strong-coupling. Numerical calculations are performed for a TlCl semiconductor. Our results illustrate that the energy of the ground state heavy-hole exciton decreases with the increase of the radius of the quantum dots and increases with the increase of the confinement strength  $\omega_0$  of quantum dots.

**Key words:** semiconductor quantum dot; exciton; linear combination; strong-coupling

**PACC:** 6320K; 7138

**Article ID:** 0253-4177(2006)10-1755-04

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 10347004)

† Corresponding author. Email: xiaojlin@126.com

Received 19 January 2006, revised manuscript received 15 April 2006