

УДК 539.2

ФОРМИРОВАНИЕ ЭКСИТОНОВ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НАНОСТРУКТУРАХ ПРИ НАЛИЧИИ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ПЛАЗМЫ

В.А. ТЕККОЗЯН*, К. ЛИ, А.Ж. БАБАДЖАНЫАН, Х.В. НЕРКАРАЯН

Ереванский государственный университет, Армения

*e-mail: vahant@mail.ru

(Поступила в редакцию 20 декабря 2013 г.)

Предложен механизм увеличения энергии связи экситона в широкозонных полупроводниках при наличии оптически накачанной электронно-дырочной плазмы. Эти экситоны с относительно большой энергией связи (>150 мэВ) могут существовать при комнатной температуре, когда диэлектрическая проницаемость полупроводника в инфракрасной области спектра приближается к нулю. Расчеты для CdS показывают, что плотность электронно-дырочной плазмы должна быть больше 10^{19} см $^{-3}$ для формирования таких экситонов. Показано, что существует значительное количество близко расположенных энергетических уровней экситонов с большой энергией связи в запрещенной зоне полупроводников. На наш взгляд, эти экситоны участвуют в процессе лазерной генерации в оптически накачанных полупроводниковых нанокристаллах.

1. Введение

Последние достижения в области технологий изготовления широкозонных полупроводниковых наноструктур позволили провести ряд экспериментов, которые уникальны из-за возможности локализации фотонов и электронов в одном или двух измерениях. Лазерное воздействие в полупроводниковых нанокристаллах может генерировать локализованный интенсивный монохроматический свет, геометрия которого идеально подходит для взаимодействия с такими нанопотонными устройствами, как квантовые точки, металлические наночастицы, плазмонные волноводы и биологические образцы. Эти нанолазеры могут стать одним из важнейших компонентов в изучении и разработке новых наноразмерных фотонных элементов.

Наряду с хорошо изученными нанолазерами на основе ZnO [1-5], GaN [6-8] и CdS [9-11], число нанокристаллов, обладающих лазерной генерацией при комнатной температуре, увеличивается [12-15]. Часто главную роль в такой лазерной генерации приписывают экситонам [16,17]. Однако этот вывод не очевиден. Энергия связи экситонов в CdS и GaN меньше, чем 30 мэВ, и поэтому они не могут существовать достаточно длительное время при комнатной температуре. Энергия связи экситонов в ZnO относительно велика (60 мэВ), однако концентрация носителей заряда, необходимая для лазерной генерации, пре-

восходит концентрацию Мотта, при которой формируется электронно-дырочная плазма. В связи с этим было предложено альтернативное толкование эмиссии в ZnO наноструктурах на основе лазерной генерации электронно-дырочной плазмы при комнатной температуре [16,17]. Тем не менее, аргументы, которые были представлены в этих работах, не достаточны, чтобы отказаться от экситонного механизма излучения. Мы считаем, что процесс излучения в полупроводниковых нанокристаллах вызван сочетанием этих двух процессов.

В данной работе рассмотрена возможность формирования экситонов с большой энергией связи в условиях, когда диэлектрическая проницаемость полупроводника из-за наличия оптически накачанной электронно-дырочной плазмы приближается к нулю в инфракрасной области спектра.

2. Теория

Возможность формирования экситонов в широкозонных полупроводниках нами описывается на основе водородоподобной модели. Пусть E_s – энергия связи основного состояния, а ϵ_s – диэлектрическая проницаемость полупроводника при отсутствии электронно-дырочной плазмы. В рамках водородоподобной модели имеем $E_s \propto \epsilon_s^{-2}$, где нужно взять значение для ϵ_s при частоте $\omega = E_s / \hbar$ (где $\hbar$ – постоянная Планка) [18]. При отсутствии электронно-дырочной плазмы зависимость ϵ_s от частоты слаба и ею можно пренебречь. Однако при наличии оптически накачанной электронно-дырочной плазмы ситуация существенно меняется. В этом случае диэлектрическую проницаемость полупроводника в инфракрасной области можно описывать с помощью формулы Друде

$$\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) = \epsilon_s - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\gamma_e)} - \frac{\omega_{ph}^2}{\omega(\omega + i\gamma_h)}; \quad \omega_{pe(h)}^2 = \frac{4\pi N_{e(h)} e^2}{m_{e(h)}^*}, \quad (1)$$

где e – заряд электрона, $\gamma_{e(h)}$ – коэффициент рассеяния электрона или дырки в полупроводнике, $\omega_{pe(h)}$ – плазменная частота, $m_{e(h)}^*$ и $N_{e(h)}$ – эффективные массы и плотности носителей заряда. Тогда энергия связи экситонов определяется из следующего самосогласованного уравнения:

$$E_n = \hbar\omega_n = E_s \frac{\epsilon_s^2}{\epsilon^2(\omega_n) n^2}; \quad n = 1, 2, 3, \dots, \quad (2)$$

где n – квантовое число экситонного состояния.

С помощью численных расчетов нетрудно найти решения уравнений (1) и (2), которые принимают комплексные значения: $\omega = \omega' + i\omega''$, где реальная и мнимая части определяют энергию связи и время жизни экситонов, соответственно.

3. Результаты

Энергия связи экситонов E_n существенно увеличивается в условиях, когда $\epsilon_s \gg \epsilon'(\omega) \gg \epsilon''(\omega)$. В результате взаимодействия электрона и дырки в экс-

тонах формируется высокочастотное поле, которое поляризует электронно-дырочную плазму в противофазе: $\varepsilon(\omega) - \varepsilon_s < 0$ (рис.1). Формально это означает, что электрон окружен отрицательными зарядами, а дырка окружена положительными зарядами. В результате, эффективные заряды взаимодействующих носителей возрастают, и следовательно, увеличивается энергия связи экситонов. Полученные значения для энергии связи экситонов значительно превышают характерную тепловую энергию (25 мэВ) при комнатной температуре уже при плотностях носителей 10^{19} см^{-3} (рис.2).

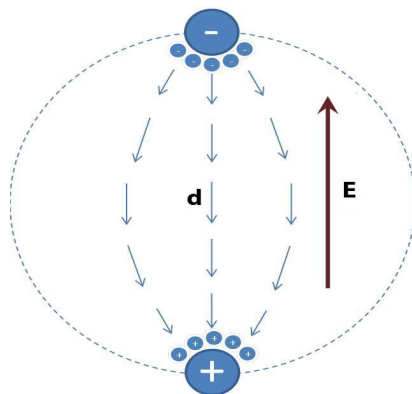


Рис.1. Схематический вид формирования экситонов за счет наличия электронно-дырочной плазмы. Высокочастотное поле экситонов E индуцирует дипольный момент носителей заряда d . В результате эффективный заряд увеличивается.

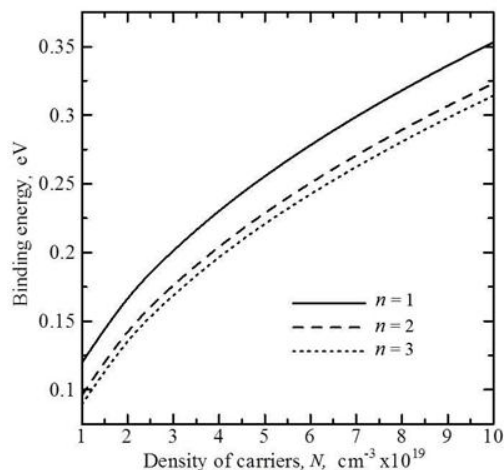


Рис.2. Зависимость энергии связи экситонов от плотности носителей заряда в кристалле CdS при различных квантовых числах n . Величины имеют следующие значения: $m_e^* = 0.21m_0$, $\gamma_e = 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $\varepsilon_s = 8.9$, $\varepsilon = 2$ (m_0 — масса свободного электрона).

Энергия связи возрастает с увеличением плотности носителей и уменьшается с увеличением квантового числа n . Тем не менее, полученное решение

может иметь физическое значение, когда период колебаний заряда значительно меньше, чем время жизни τ экситонов:

$$\frac{\omega' \tau}{2\pi} \gg 1; \quad \tau = \frac{1}{\omega''}. \quad (3)$$

Это условие хорошо выполняется при концентрациях $N \geq 10^{19} \text{ см}^{-3}$. В рассматриваемом случае для CdS время жизни в связанном состоянии не зависит от концентрации носителей заряда. Нужно обратить внимание на то, что плотность экситонов значительно меньше, чем плотность электронно-дырочной плазмы в связи с небольшим временем жизни экситонных состояний. В отличие от известного случая водородоподобного атома, в данном случае энергия связи при больших квантовых числах приближается к $E_0 = \hbar\omega_0$, где ω_0 – решение уравнения $\varepsilon(\omega_0) = 0$ (рис.3) (Здесь мы пренебрегаем мнимой частью комплексной диэлектрической проницаемости).

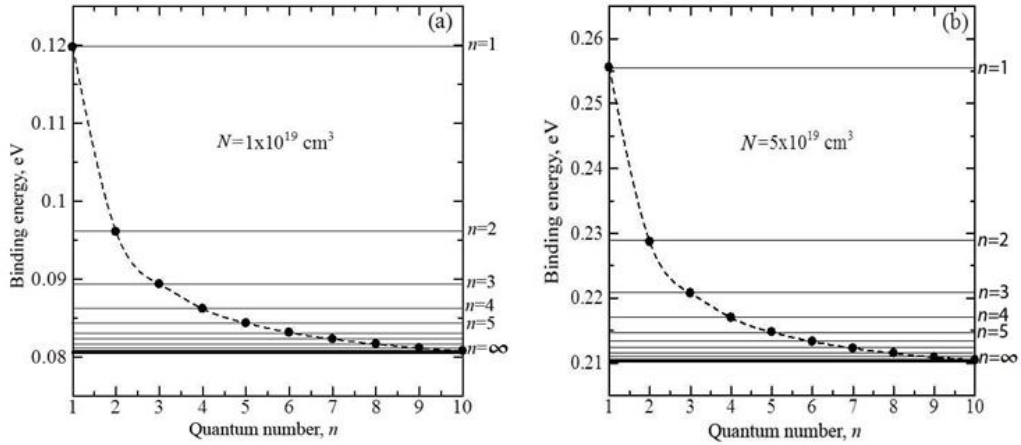


Рис.3. Зависимость энергии связи экситонов от квантовых чисел для CdS, при плотности носителей заряда (а) $1 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ и (б) $5 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$: $m_e^* = 0.21m_0$, $\gamma_e = 10^{13} \text{ с}^{-1}$, $\varepsilon_s = 8.9$, $\varepsilon = 2$.

Плотность экситонных состояний резко возрастает при больших n , и появляется большое количество близко расположенных энергетических уровней в запрещенной зоне полупроводника. Образованное в результате связывания электрона и дырки высокочастотное поле имеет две характерные особенности, которые способствуют значительному увеличению энергии связи экситонов. Во-первых, диэлектрическая проницаемость может быть близка к нулю в диапазоне высоких частот. При этом, использованная здесь модель Друде – простейший, но не единственный способ для выявления этого обстоятельства. Во-вторых, из уравнений (1) и (2) нетрудно убедиться, что значительное увеличение энергии связи экситонов происходит при относительно больших значениях ω_n и при небольших значениях $\varepsilon(\omega_n)$.

Полупроводниковые нанокристаллы являются наиболее удобными структурами для наблюдения исследуемого явления, так как в них легко до-

биться однородного распределения плотности электронно-дырочной плазмы. Так как при этом боровский радиус экситона значительно меньше размеров наноструктуры, то можно пренебречь эффектами размерного квантования.

4. Заключение

Нами исследован процесс формирования строго связанных экситонных состояний в широкозонных полупроводниках при наличии оптически накачанной электронно-дырочной плазмы. Эти экситоны могут существовать при комнатной температуре, когда диэлектрическая проницаемость полупроводника в инфракрасной области спектра достаточно мала. Расчеты показывают, что для формирования таких состояний плотность электронно-дырочной плазмы должна быть больше 10^{19} см^{-3} . Теоретические результаты предсказывают наличие большого количества близко расположенных энергетических уровней экситонных состояний в запрещенной зоне полупроводника, с энергией связи, значительно превосходящей характерную тепловую энергию комнатной температуры.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.H. Huang, S. Mao, H. Feick, H. Yan, Y. Wu, H. Kind, E. Weber, R. Russo, P. Yang. *Science*, **292**, 1897 (2001).
2. J.C. Johnson, H. Yan, P. Yang, R.J. Saykally. *J. Phys. Chem. B*, **107**, 8816 (2003).
3. B. Zou, R. Liu, F. Wang, A. Pan, L. Cao, Zh. L. Wang. *J. Phys. Chem. B*, **110** 12865 (2006).
4. M.A. Zimmler, F. Capasso, S. Muller, C. Ronning. *Semicond. Sci. Technol.*, **25**, 024001 (2010).
5. K. Okazaki, D. Nakamura, M. Higashihata, P. Iyamperumal, T. Okada. *Opt. Express*, **19**, 20389 (2011).
6. J.C. Johnson, H.J. Choi, K.P. Knutsen, R.D. Schaller, P.D. Yang, R.J. Saykally. *Nat. Mater.*, **1**, 106 (2002).
7. S. Gradecak, F. Qian, Y. Li, H.G. Park, C.M. Lieber. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 173111 (2005).
8. Q. Li, J.B. Wright, W.W. Chow, T.S. Luk, I. Brener, L.F. Lester, G.T. Wang. *Opt. Express*, **20**, 17873 (2012).
9. R.F. Oulton, V.J. Sorger, T. Zentgraf, R.-M. Ma, C. Gladden, L. Dai, G. Bartal, X. Zhang. *Nature*, **461**, 629 (2009).
10. R.-M. Ma, R.F. Oulton, V.J. Sorger, G. Bartal, X. Zhang. *Nat. Mater.*, **10**, 110 (2011).
11. S. Geburt, A. Thielmann, R. Roder, C. Borschel, A. McDonnell, M. Kozlik, J. Kuhnel, K.A. Sunter, F. Capasso, C. Ronning. *Nanotechnology*, **23**, 365204 (2012).
12. F. Qian, Y. Li, S. Gradecak, H.-G. Park, Y. Dong, Y. Ding, Z.L. Wang, C.M. Lieber. *Nat. Mater.*, **7**, 701 (2008).
13. R. Yan, D. Gargas, P. Yang. *Nat. Photon.*, **3**, 569 (2009).
14. R. Chen, T.T.D. Tran, K.W. Ng, et al. *Nat. Photon.*, **5**, 170 (2011).
15. C. Dang, J. Lee, C. Breen, J.S. Steckel, et al. *Nat. Nanotechnol.*, **7**, 335 (2012).
16. C. Klingshirn, R. Hauschild, J. Fallert, H. Kalt. *Phys. Rev. B*, **75**, 115203 (2007).
17. M.A.M. Versteegh, D. Vanmaekelbergh, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 157402 (2012).
18. E.I. Rashba, M.D. Sturge. *Excitons*. Amsterdam, North-Holland, 1982.

ԷՔՍԻՏՈՆՆԵՐԻ ՁԵՎԱՎՈՐՈՒՄԸ ԿԻՍԱՀԱՂՈՐԴՉԱՅԻՆ
ՆԱՆՈԿԱՌՈՒՑՎԱԾՔՆԵՐՈՒՄ՝ ԷԼԵԿՏՐՈՆ-ԽՈՌՈՉԱՅԻՆ ՊԼԱԶՄԱՅԻ
ԱՌԿԱՅՈՒԹՅԱՆ ԴԵՊՔՈՒՄ

Վ.Ա. ԹԵԿՔՈԶՅԱՆ, Ք.ԼԻ, Ա.Ժ. ԲԱԲԱՋԱՆՅԱՆ, Խ.Վ. ՆԵՐԿԱՐԱՐՅԱՆ

Առաջարկված է լայն արգելված գոտիով կիսահաղորդիչներում էքսիտոնների կապի էներգիայի մեծացման մեխանիզմ, օպտիկապես մղված էլեկտրոն-խոռոչային պլազմայի առկայության պայմաններում: Համեմատաբար մեծ կապի էներգիայով (>150 մԷՎ) այդ էքսիտոնները կարող են գոյատևել սենյակային ջերմաստիճանում, երբ կիսահաղորդչի դիէլեկտրական թափանցելիության արժեքը սպեկտրի ինֆրակարմիր տիրույթում մոտ է 0-ին: CdS-ի նանոբյուրեղի համար կատարված հաշվարկները ցույց են տալիս, որ նման էքսիտոնների ձևավորման համար էլեկտրոն-խոռոչային պլազմայի խտությունը պետք է կազմի մոտ 10^{19} սմ $^{-3}$: Ցույց է տրված, որ կիսահաղորդչի արգելված գոտում գոյություն ունեն մեծ կապի էներգիայով, զգալի թվով, կից դասավորված էքսիտոնային էներգիական մակարդակներ: Այդ էքսիտոնները կարող են մասնակցել օպտիկապես զրգոված կիսահաղորդչային նանոկառուցվածքներում լազերային զեներացման պրոցեսին:

EXCITON FORMATION STIMULATED BY OPTICALLY PUMPED
ELECTRON-HOLE PLASMA IN SEMICONDUCTOR NANOSTRUCTURES

V.A. TEKKOZYAN, K. LEE, A.Zh. BABAJANYAN, Kh.V. NERKARYAN

A mechanism to increase the exciton binding energy in wide band-gap semiconductors due to the presence of optically pumped electron-hole plasma is proposed. These exciton states with high binding energy (>150 meV) can exist at room temperature when the dielectric permittivity of a semiconductor approaches zero in the infrared region. Calculations for CdS show that the density of electron-hole plasma should be above 10^{19} cm $^{-3}$ to form such excitons. There are large numbers of closely spaced energy levels of exciton states with a high binding energy in the forbidden band gap of semiconductors. We believe these excitons are involved in lasing process observed in optically pumped semiconductor nanocrystals.