

文章编号: 0253-2239(2009)05-1320-04

(nc-Si/SiO₂)/SiO₂ 多层量子点结构的激子能级

陈丽白 郭震宁 杨小儒

(华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 泉州 362021)

摘要 采用球型量子点模型,应用有效质量近似理论,研究了(nc-Si/SiO₂)/SiO₂多层量子点结构的激子能级和波函数。结果表明,有限深势阱模型的引入更符合实际更加准确。无论在无限深或有限深势阱下,激子质心运动部分基态能量随量子点半径的减小而急剧增大。对于相同的量子点半径 a ,无限深势阱下的质心部分能量总比有限深势阱高,且二者的差距随 a 的减小而增大。

关键词 硅量子点; 激子能级; 有效质量近似; 有限深势阱; 无限深势阱

中图分类号 O471 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092905.1320

Exciton Energy Levels of (nc-Si/SiO₂)/SiO₂ Multi-Layer Quantum Dots Structure

Chen Libai Guo Zhenning Yang Xiaoru

(College of Information Science and Technology, Huaqiao University, Quanzhou, Fujian 362021, China)

Abstract The exciton energy levels and wave functions of (nc-Si/SiO₂)/SiO₂ multi-layer structure are analyzed, by using the spherical quantum dots model and effective mass approximation theory. The model of finitely deep potential well makes the result more accurate and near to reality. The conclusion shows that the ground state energy of mass center's motional part increases rapidly as the radius of quantum dot decreases, no matter in infinitely deep potential well or finitely deep potential well. The mass center energy in infinitely deep potential well is always higher than the finitely deep potential wells with same radius of quantum dot, and their differences increase as the radius of quantum dot decreases.

Key words quantum dots of silicon; energy level of exciton; effective mass approximation; finitely deep potential well; infinitely deep potential well

1 引 言

众所周知,硅是间接带隙结构,如何实现硅基高效发光和光吸收饱和增强效应成为重要的研究课题^[1~3]。随着纳米材料制备技术的不断发展,对于纳米硅的研究越来越引起人们的重视^[4~7],其中,使硅纳米晶粒镶嵌于二氧化硅中形成复合多层膜的结构((nc-Si/SiO₂)/SiO₂)尤为突出。由于SiO₂层的限制,极大地改善nc-Si晶粒的尺寸均匀性,同时对电子和空穴都具有很强的量子限制效应,不但使激子在室温下存在成为可能,更使其具有高效的发光性能和光吸收饱和现象。激子将导致导带底附近出

现与之对应的束缚能级,且激子的吸收和复合将直接影响(nc-Si/SiO₂)/SiO₂材料的光吸收和发光,因此很有必要对该结构的激子能级进行研究,为今后设计和制造具有优良特性的(nc-Si/SiO₂)/SiO₂量子器件提供理论支持。

在(nc-Si/SiO₂)/SiO₂结构中,nc-Si近似球形颗粒,因此本文采用球型量子点模型,分别在无限深势阱和有限深势阱条件下,应用有效质量理论,计算了(nc-Si/SiO₂)/SiO₂量子点结构的激子能级和波函数,揭示有限深势阱的引入对激子能级的影响。

收稿日期: 2008-05-13; **收到修改稿日期**: 2008-10-17

基金项目: 福建省自然科学基金(E0410018)、国务院侨办科研基金(06QZR02)和福建省泉州市科技计划重点项目(2008GT)资助课题。

作者简介: 陈丽白(1984—),女,硕士研究生,主要从事光电材料方面的研究。E-mail: chenlibai@163.com

导师简介: 郭震宁(1958—),男,教授,博士,主要从事光电材料方面的研究。E-mail: zgno2003@yahoo.com.cn

2 激子效应及激子系统的薛定谔方程

2.1 激子效应

在许多半导体材料中,只有低温下才能观测到清晰的激子发光。这是因为当样品温度较高, $K T$ (K 为玻尔兹曼常数) 值接近或大于激子电离能时,激子会因热激发而发生分解。而当硅形成纳米颗粒镶嵌在 SiO₂ 介质中形成复合膜(其能带结构近似如图 1 所示),且纳米硅颗粒尺寸小于体硅的激子玻尔半径(4.3 nm)时,由于纳米硅晶粒受到 SiO₂ 介质高势垒的强限制作用,纳米范围内的电子/空穴犹如处于无限深势阱中,纳米硅材料的导带和价带中将产生众多子带^[8]。也就是说,纳米硅复合膜的能带结构将呈现准直接带隙的特征,光吸收系数增大,激子的跃迁振子强度增强,激子为准二维激子,束缚能增大,因此可在室温下存在,这就为今后研制可实用的激子型器件提供了基本条件。此外,电场、载流子浓度等影响激子稳定性的物理因素也可以作为对激子效应和相关的光学性质进行可控调制的有效手段。

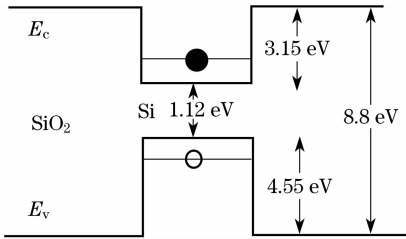


图 1 (nc-Si/SiO₂)/SiO₂ 能带结构图

Fig. 1 Energy-band structure of (nc-Si/SiO₂)/SiO₂

2.2 激子系统的薛定谔方程^[9-10]

假设在非简并态、各向同性及零电场情况下,对于电子、空穴所形成的激子,由于弱受限作用,激子作为一个准粒子的特征被保留下来,激子体系的薛定谔方程为

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_c^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_h^2 + V \right] \psi = E\psi, \quad (1)$$

其中 m_e 为电子的有效质量, m_h 为空穴的有效质量,库仑势能 $V = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon r}$ 。以 (x, y, z) 表示电子相对于空穴的坐标,以 (X, Y, Z) 表示体系的质心坐标,(1)式可变换为以相对坐标和质心坐标表示的薛定谔方程

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2} + \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \psi = E\psi, \quad (2)$$

式中 $M = m_e + m_h$ 是激子的总质量, $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ 为

约化质量(折合质量)。

令 $\psi(X, Y, Z, x, y, z) = \Phi(X, Y, Z) \Psi(x, y, z)$, (2)式左边第一项仅与 X, Y, Z 有关,第二项和第三项仅与 x, y, z 有关,所以它们应分别等于常数,且两常数之和是 E ,令 $E = E^1 + E^2$ 则有

质心运动部分

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2} + \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right) \Phi(X, Y, Z) = E^1 \Phi(X, Y, Z), \quad (3)$$

相对运动部分

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \Psi(x, y, z) = E^2 \Psi(x, y, z). \quad (4)$$

3 (nc-Si/SiO₂)/SiO₂ 多层膜结构的激子能级

3.1 无限深球形势阱下的激子能级

3.1.1 质心运动部分

假设激子在无限深球形势阱中运动。令 $k^2 = \frac{2M}{\hbar^2} E^1$, $\Phi = R(r) Y(\theta, \varphi)$, 且将(3)式改写成球坐标,得

$$\frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + k^2 r^2 = -\frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial Y}{\partial \theta} \right) - \frac{1}{Y \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 Y}{\partial \varphi^2}. \quad (5)$$

解上述方程,并由边界条件 $R(r) |_{r=a} = 0$ 可得质心运动部分能量为

$$E^1 = \frac{K_{ml}^2}{a^2} \frac{\hbar^2}{2M}, \quad (6)$$

质心运动部分波函数为

$$\Phi = C_{kl} j_l(kr) N_{lm} P_l^{|m|}(\cos \theta) e^{im\varphi}, \quad (7)$$

其中 K_{ml} 为 $R(r) |_{r=a} = 0$ 的根,

$$C_{kl} = \left[-\frac{2}{a^3} \frac{1}{j_{l-1}(ka) j_{l+1}(ka)} \right]^{1/2},$$

$$N_{lm} = \left[\frac{(l - |m|)! (2l + 1)}{(l + |m|)! 4\pi} \right]^{1/2}$$

为归一化常数, $m = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3 \dots \pm l$ ($l = 0, 1, 2, 3, \dots$)。

3.1.2 相对运动部分

设 $\Psi(r, \theta, \varphi) = R(r) Y(\theta, \varphi)$, 且将式(4)改写成球坐标,得

$$\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial R}{\partial r} \right) + \frac{2\mu r^2}{\hbar^2} \left(E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right) = -\frac{1}{Y} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial Y}{\partial \theta} \right) - \frac{1}{Y \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 Y}{\partial \varphi^2}. \quad (8)$$

讨论 $E < 0$ 的情形, E 为分立谱,电子状态为束

束缚态。解上述方程可得相对运动部分能量为

$$E_n = -\frac{\mu e_s^4}{2\hbar^2 n^2} = -\frac{\mu e^4}{8\hbar^2 n^2 \epsilon^2}, \quad (9)$$

相对运动部分波函数为

$$\psi(r, \theta, \varphi) = N_{nl} e^{-\frac{2}{na_0}r} \left(\frac{2}{na_0}r\right)^l \cdot L_{n+l}^{2l+1} \left(\frac{2}{na_0}r\right) N_{lm} P_l^{|m|}(\cos \theta) e^{im\varphi}, \quad (10)$$

其中 $N_{nl} = -\left\{\left(\frac{2}{na_0}\right)^3 \frac{(n-l-1)!}{2n[(n+l)!]^3}\right\}^{1/2}$ 为归一化

常数, $a_0 = \frac{\hbar^2}{\mu e_s^2}$, n 为主量子数。

3.1.3 激子总能级

因此,在弱束缚量子点中,电子、空穴作为一整体激子的能量为

$$E_{lmn} = E_g + \frac{K_{ml}^2}{a^2} \frac{\hbar^2}{2M} - \frac{\mu e^4}{8\hbar^2 n^2 \epsilon^2}, \quad (11)$$

3.2 有限深球形势阱下的激子能级

3.2.1 质心运动部分

假设激子在半径为 a 的球形有限深势阱中运动,其势场为

$$V(R) = \begin{cases} 0, & r < a \\ U_0, & r > a \end{cases} \quad (12)$$

则在有限深势阱条件下,薛定谔方程(1)式可写为

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_e^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_h^2 + V + U_0\right] \psi = E\psi. \quad (13)$$

考虑 $E < U_0$ (束缚态) 情况,令 $k = \sqrt{\frac{2M}{\hbar^2} E^1}$, $k' =$

$$\sqrt{\frac{2M}{\hbar^2} (U_0 - E^1)}.$$

则质心部分径向方程为

$$R'' + \frac{2}{r}R' + \left[k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2}\right]R = 0, \quad r < a \quad (14)$$

$$R'' + \frac{2}{r}R' + \left[(ik')^2 - \frac{l(l+1)}{r^2}\right]R = 0. \quad r > a \quad (15)$$

根据边界点 $r=a$ 处波函数及其微商连续的条件以及在全空间归一化的条件,解上述方程可得

$$\sin ka = \frac{\pm ka}{k_0 a} \left(k_0 = \sqrt{\frac{2mU_0}{\hbar^2}}\right). \quad (16)$$

对于某一固定硅量子点半径 a 时,采用图解法将两曲线的交点可读出的横坐标 ka ,从而知道 k 的值,再代入 $k = \sqrt{\frac{2M}{\hbar^2} E^1}$ 中,即可得到相应的有限深势阱下质心部分的能量 E^1 。

质心部分波函数为

$$\Phi = A_{l,n} j_l(kr) N_{lm} P_l^{|m|}(\cos \theta) e^{im\varphi}, \quad r < a \quad (17)$$

$$\Phi = B_{l,n} h_l^{(1)}(ik'r) N_{lm} P_l^{|m|}(\cos \theta) e^{im\varphi}, \quad r > a \quad (18)$$

其中归一化系数分别为

$$A_{l,n} = \left[-\frac{(k^2 + k'^2)a^2}{2k'^2} j_{l-1}(ka) j_{l+1}(ka)\right]^{-\frac{1}{2}},$$

$$B_{l,n} = \frac{j_l(ka)}{h_l(ik'a)} \left[-\frac{(k^2 + k'^2)a^2}{2k'^2} j_{l-1}(ka) j_{l+1}(ka)\right]^{-\frac{1}{2}}.$$

3.2.2 相对运动部分

由于考虑的是方型式势阱模型,有限深势垒已经在质心运动部分得到体现。因此,相对运动部分不受势阱影响,而只考虑库仑势能作用,相对运动部分能量和波函数与无限深势阱的结果相同。因此,在下文中只比较无限深及有限深势阱下的质心运动部分的能量。

3.3 结果与讨论

计算过程中 (nc-Si/SiO₂)/SiO₂ 材料的具体参数选为:禁带宽度 $E_g = 1.18$ eV,半径 $a = 9$ nm,取 $l=0, m=1, n=1$,则 $K_{ml} = 3.14$,而对于 Si 量子点材料^[11],激子有效质量 $M = 1.2m_0$,约化质量 $\mu = 0.17m_0$, m_0 为电子的质量,取硅量子点能带偏移量的平均值 $U_0 = 3.81$ eV。

由(6)及(16)式可得:当 $a = 9$ nm 时,无限深与有限深势阱模型下质心运动部分的能级如表 1 所示。可以看出,二者的能级间隔都随着主量子数 n 的增大而增大,且无限深势阱下的质心运动部分能级总是高于有限深势阱, n 越大,二者之间的差也越大。

表 1 无限深与有限深势阱下质心运动部分能量 E^1

Table 1 Energy (E^1) of mass center's motional part in infinitely deep and finitely deep potential wells

Energy level	$n=1$	$n=2$	$n=3$	$n=4$
E^1 in infinitely deep potential well /meV	3.9	15.5	34.8	62.0
E^1 in finitely deep potential well /meV	3.8	15.0	34.0	61.0

当 $n=1$ 时,在无限深与有限深势阱下质心部分能量随 Si 量子点半径 a 的变化关系如表 2 所示。从表中可知,无论是在无限深或有限深势阱模型下,质心部分能量总随硅量子点尺寸的减小而急剧增大(可由图 2 进一步表明),表现出很强的量子受限效应。当量子点尺寸较大(大于激子的玻尔半径)时,两种模型下的 E^1 很接近,可近似看作相等。而当量子点尺寸小于激子玻尔半径时,随量子点尺寸的减小,二者的差别越来越大。在实际情况下,势阱总是有限深的,因此有限深势阱模型的引入更符合实际更加准确。

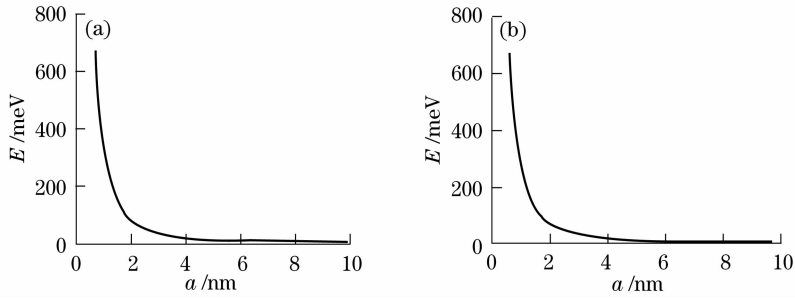


图2 质心运动部分能量与量子点半径的关系。(a)无限深势阱下;(b)有限深势阱下

Fig. 2 Energy E^1 of mass center's motional part versus radius of quantum dots with infinite deep (a) and finite deep potential well (b)

表2 无限深与有限深势阱质心能量随半径的变化关系

Table 2 Mass-center energy E^1 versus radius for different potential wells

Radius a / nm	1	1.6	2	2.6	3	5	7	8	9
E^1 in infinitely deep potential well / meV	309	121	77	46	35	12.5	6.514	4.818	3.90
E^1 in finitely deep potential well / meV	268	113	73	44	33	12	6.452	4.785	3.78

4 结 论

由以上分析可知,对于相同的量子点半径 a ,无限深势阱与有限深势阱下质心运动部分能量的差随主量子数 n 的增大而增大。此外,无论是在无限深或有限深势阱模型下,质心部分基态能总随硅量子点尺寸的减小而急剧增大,表现出很强的量子受限效应。在实际情况下,势阱总是有限深的,因此有限深势阱模型的引入更符合实际更加准确。

参 考 文 献

- 1 Nae Man Park, Tae-Soo Kim, Seong-Ju Park. Band gap engineering of amorphous silicon quantum dots for light-emitting diodes[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **78**(17): 2575~2577
- 2 Xu Li, Huang Weiqi, Wu Keyue *et al.*. Hole-net structure and photoluminescence emission monocrySTALLINE on silicon irradiated by laser[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2008, **20**(1): 58~61
- 3 许 丽,黄伟其,吴克跃 等. 脉冲激光辐照单晶硅形成的低维结构及其光致荧光特性[J]. *强激光与粒子束*, 2008, **20**(1): 58~61
- 3 Zhixun Ma, Xiaobo Liao, Gonglin Kong. Absorption spectra of nanocrystalline silicon embedded in SiO₂ matrix[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **75**(13): 1857~1859
- 4 Zhang Xinqiang, Zhang Weijia, Wu Meiling *et al.*. Preparation of nc-Si:H film and HIT solar cell[J]. *J. Functional Materials*, 2007, **38**(10): 1741~1744

张心强,张维佳,武美伶 等. 纳米硅薄膜制备及 HIT 太阳能电池 [J]. *功能材料*, 2007, **38**(10): 1741~1744

- 5 Wang Jiexian, Guo Hengqun, Li Liwei *et al.*. Passive moed-locking in Nd:YAG laser using nanocrystalline silicon embedded in SiNx film[J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(11): 1498~1501
- 王加贤,郭亨群,李立卫 等. 纳米 Si 镶嵌 SiNx 薄膜实现 Nd:YAG 激光器被动锁模[J]. *中国激光*, 2007, **34**(11): 1498~1501
- 6 Zhongyuan Ma, Kunji Chen, Xinfan Huang *et al.*. The evolution investigation of photoluminescence from a-Si:H/SiO₂ to nc-Si/SiO₂ multilayers[J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **95**(5): 2448~2451
- 7 M. Schmidt, J. Heitmann, R. Scholz *et al.*. Bright luminescence from erbium doped nc-Si/SiO₂ superlattices[J]. *J. Non-Crystalline Solids*, 2002, **229~302**: 678~680
- 8 Guo Zhenning, Guo Hengqun, Wang Jiexian *et al.*. Third-order optical nonlinearity of nc-Si:H thin films[J]. *Chin. J. Lasers*, 2001, **28**(5): 435~438
- 郭震宇,郭亨群,王加贤 等. nc-Si:H 薄膜的三阶非线性光学性质 [J]. *中国激光*, 2001, **28**(5): 435~438
- 9 Zeng Jinyan. *Quantum Mechanics* [M]. Beijing: Science Press, 1981: 209~214
- 曾谨言. *量子力学* [M]. 北京: 科学出版社, 1981: 209~214
- 10 Zhou Shixun. *Quantum Mechanics Course* [M]. Beijing: higher education Press, 2003: 64~70
- 周世勋. *量子力学教程* [M]. 北京: 高等教育出版社, 2003: 64~70
- 11 Shen Xuechu. *Optics Properties of Semiconductors* [M]. Beijing: Science Press, 1992: 201~203
- 沈学础. *半导体光学性质* [M]. 北京: 科学出版社, 1992: 201~203