

文章编号 1000-5013(2001)02-143-04

# 硅量子点的介电受限特性

郭震宇 郭亨群 王加贤 张文珍

(华侨大学信息科学与工程学院, 泉州 362011)

**摘要** 在有效质量近似的条件下, 研究弱束缚类量子点的介电常数与其半径的关系. 通过室温下测得的硅量子点的光荧光光谱, 计算硅量子点的介电常数, 证实硅量子点介电常数的尺度效应.

**关键词** 硅量子点, 介电常数, 激子

**中图分类号** O 472; O 487

**文献标识码** A

近年来, 人们对半导体量子点中受限激子的量子受限效应进行广泛的研究<sup>[1-5]</sup>. 在低维结构中, 除量子受限外, 还存在介电受限效应. 量子点介电受限包含量子点的介电常量与基体的介电常量不同引起的表面极化效应, 以及由于量子点的介电常量随其尺寸变化引起的量子点介电常量的尺度效应. 表面极化效应, 可使受限激子的基态能蓝移( $\epsilon_i/\epsilon > 1$ ,  $\epsilon_i$  和  $\epsilon$  分别为量子点和基体的介电常数)和红移( $\epsilon_i/\epsilon < 1$ ). 量子点介电常量的尺度效应, 则使之红移<sup>[6]</sup>. 其中, 量子点的表面极化效应的研究较多<sup>[1, 5]</sup>. 但是, 当量子点的尺度是晶格常量的几倍时, 对于量子点的介电性质与其相应体材料介电性质的差别带来的影响, 却相对研究较少. 对量子点中的介电常量的研究表明, 介电特性明显地随半导体量子点的尺寸变化. Wang 和 Zunger<sup>[6]</sup>利用赝势方法计算了 Si 量子点的介电常数. 结果表明, Si 量子点的介电常量随其尺寸减小而减小. 本文采用有效质量近似方法理论, 分析量子点介电常数与其半径的关系. 从实验用纳米硅薄膜样品的荧光光谱实验结果, 分析计算一定尺寸的硅量子点的介电常数.

## 1 理论分析<sup>[7]</sup>

根据量子点内电子、空穴被限制效应作用的强弱, 量子点可划分为强束缚类、弱束缚类, 以及介于两者之间的三类. 强束缚类的量子点, 电子、空穴的束缚动能远大于它们之间的 Coulumb 相互作用, 电子、空穴的特征为相互独立的单粒子特征. 弱束缚类的量子点, 电子、空穴的束缚动能小于它们间的 Coulumb 相互作用, 电子、空穴作为一整体激子在量子点内运动. 介于强、弱束缚之间的量子点, 电子、空穴的束缚动能与它们间的 Coulumb 作用能基本相同. 描述弱束缚类量子点中激子的薛定谔方程为

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_e^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_h^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = E\Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h), \quad (1)$$

式中  $m_e$  为电子有效质量,  $m_h$  为空穴有效质量,  $r_e$  为电子坐标,  $r_h$  为空穴坐标,  $r = r_e - r_h$  为电子和空穴的相对坐标,  $\Psi(r_e, r_h)$  为激子波函数. 如令

$$R = (m_e r_e + m_h r_h) / (m_e + m_h), \quad (2)$$

则式(1)成为

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_r^2 - \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_R^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \Psi(r, R) = E(r, R) \Psi(r, R), \quad (3)$$

式中  $m_r = m_e m_h / (m_e + m_h)$  为折合质量,  $M = m_e + m_h$ . 式(3)的哈密顿量, 可以用绕质心的转动和质心的平动之和的形式来表示. 因此, 描述弱束缚类量子点中电子空穴的本征波函数, 经分离变量后可写为

$$\Psi(r, R) = \mathcal{Q}(r) \Phi(R), \quad (4)$$

式中  $\mathcal{Q}(r)$  表示电子、空穴的相对运动,  $\Phi(R)$  表示电子、空穴质心的运动. 考虑量子点为具有无限高势垒的球形量子点, 电子、空穴质心的运动即是质量为  $M$  的粒子在无限深球形势阱中运动. 如以价带顶取为能量的零点, 它们的能量为

$$E_{l,m,n} = E_g + \hbar^2 K_{l,m}^2 / 2Ma^2 + E_{ex}, \quad (5)$$

其中  $K_{l,m}$  为质心运动的量子数,  $a$  为量子点的半径,  $E_g$  是半径为  $a$  的量子点的禁带宽度,  $E_{ex}$  为描述电子空穴相对运动的束缚能, 即

$$E_{ex} = -m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2. \quad (6)$$

这里,  $n$  为电子、空穴相对运动的量子数. 这样, 在弱束缚量子点中, 电子空穴作为一整体激子的能量为

$$E_{l,m,n} = E_g - m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 K_{l,m}^2 / 2Ma^2. \quad (7)$$

显然, 激子要存在, 必须满足  $E_{l,m,n} < E_g$ . 即在式(7)中, 仅当  $-m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 K_{l,m}^2 / 2Ma^2 < 0$  时, 激子存在. 令

$$e_{l,m,n} = -m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 K_{l,m}^2 / 2Ma^2, \quad (8)$$

并称  $e_{l,m,n}$  为量子点激子的束缚能. 已知  $E_{ex} \propto 1/\epsilon^2$ ,  $\epsilon$  的变化会引起  $E_{ex}$  较大的变化. 这样, 由于在量子点中, 相对介电常数的减小(与体材料的静态介电常数相比), 使得束缚能  $E_{ex}$  增大. 在室温下, 由于热激发, 在体材料中可能不存在的激子态, 在某一尺度的量子点中却可能存在. 即下式成立, 有

$$e_{l,m,n} = -m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 K_{l,m}^2 / 2Ma^2 > K_B T, \quad (9)$$

式中  $K_B$  为 Boltzmann 常数,  $T$  为室温. 又  $K_{1,0} = 3.142$ ,  $K_{1,1} = 4.493$ , 于是

$$E_{1,0,1} = E_g - m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 (3.142)^2 / 2Ma^2, \quad (10)$$

$$E_{1,1,1} = E_g - m_r e^4 / 8n^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 (4.493)^2 / 2Ma^2. \quad (11)$$

## 2 实验结果与讨论

实验采用的纳米硅多层薄膜(nc-Si/SiO<sub>2</sub>多层膜)样品, 是利用等离子体增强化学气相沉积(PECVD)技术和退火后处理方法在单晶硅衬底上制备的<sup>[8]</sup>. 我们采用 Raman 谱仪在室温下测试了 850 °C 退火样品的 Raman 散射谱, 如图 1 所示. 位移表征为  $\omega$ . 同时, 在室温下

测试了该样品的光荧光 PL 谱, 如图 2 所示.

纳米晶粒平均尺寸公式为<sup>[9]</sup>

$$D = 2\pi(C/W)^{\frac{1}{2}}, \quad (12)$$

式中  $C$  为与材料性质有关的常数. 对于硅,  $C = 2.24 \text{ nm}^2 \cdot \text{cm}^{-1}$ ,  $W$  为测得的晶粒的 Raman 谱峰位与对应的体单晶 Raman 谱峰位之差, 单晶硅的 Raman 谱峰值位置在  $521 \text{ cm}^{-1}$ . 由图 1 可知, 样品的 Raman 的谱峰位于  $520.75 \text{ cm}^{-1}$ . 由式 (12) 可计算得纳米硅晶粒的尺寸  $D = 18.8 \text{ nm}$ , 半径  $R = 9.4 \text{ nm}$ . 由文献 [10] 给出的透射电子显微镜平面形貌象可以看出, 该样品的纳米硅颗粒的平均半径约为  $10 \text{ nm}$ . 这与上述的计算结果相当接近. 同时也表明, 该样品中的硅量子点处于弱束缚状态.

由图 2 可知, PL 谱只有一个峰带. 我们认为这个峰带, 是由尺度相近的一些弱束缚类量子点中受光激发形成的激子复合发光形成的, 并把这个峰带归于激子的基态 ( $E_{1,0,1}$ ). 因只有

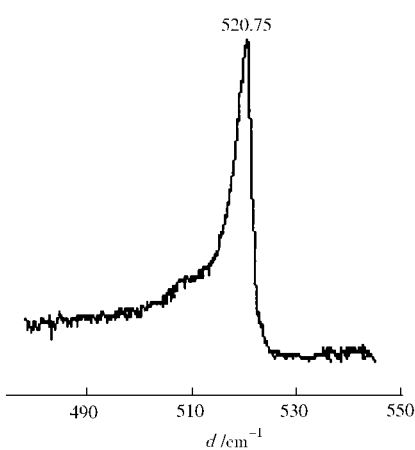


图 1 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 多层膜的 Raman 谱

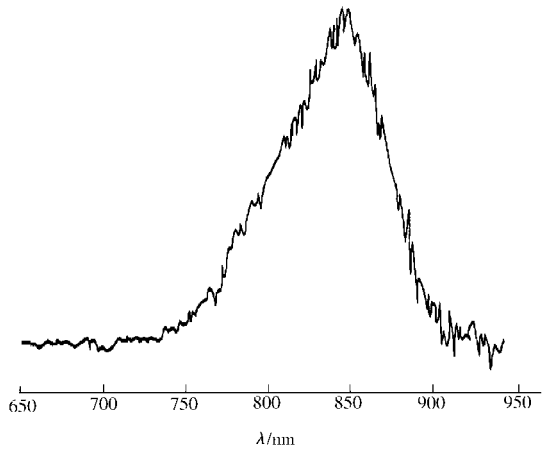


图 2 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 多层膜的 PL 谱

一个峰带存在, 表明其它激子能态的束缚能 (绝对值) 小于热激发能, 在室温被热电离而不能存在. 由式 (10), (11) 可得

$$e_{1,0,1} = -m_r e^4 / 8n^2 h^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 (3.142)^2 / 2Ma^2 > K_B T, \quad (13)$$

$$e_{1,1,1} = -m_r e^4 / 8n^2 h^2 \epsilon_0^2 + \hbar^2 (4.493)^2 / 2Ma^2 < K_B T. \quad (14)$$

弱束缚类量子点的能带结构, 与对应体材料的能带结构区别较小. 因此, 硅量子点中的电子空穴折合质量, 可取为体硅材料中的相应值  $m_r = 0.17m_0$ <sup>[10]</sup>.  $m_0$  为电子的静质量, 且  $m_e = 0.2m_0$ . 由  $m_r$  的表示式, 可计算得  $m_h = m_0$ , 从而有  $M = m_e + m_h = 1.2m_0$ .

在式 (13), (14) 中, 取  $T = 300 \text{ K}$ ,  $K_B T = 0.026 \text{ eV}$ ,  $m_r = 0.17m_0$ ,  $M = 1.2m_0$ ,  $a = 9.4 \text{ nm}$ . 可求得该尺寸的硅量子点的相对介电常数  $\epsilon$ , 即  $8.3 \leq \epsilon \leq 8.8$ , 而体硅材料的静态相对介电常数为  $11.6$ <sup>[10]</sup>. 上述结果说明, 硅量子点的介电常数小于硅体材料的介电常数.

### 3 结束语

采用激子的有效质量近似方法, 理论分析了弱束缚类量子点的介电常数与其尺寸的关系. 通过对实验用纳米硅薄膜样品荧光光谱的分析计算, 说明硅量子点的介电常数小于硅体材料

的介电常数.

天津大学精密仪器与光电子工程学院的李世忱同志参加本课题实验,特此致谢.

## 参 考 文 献

- 1 Brus L E. Electron-electron and electron-hole interactions in small semiconductor crystallites —— The size dependence of the lowest excited electronic state [J]. J. Chem. Phys., 1984, 80(9): 4 403 ~ 4 409
- 2 Chamarro M, Gourdon C, Lavallard P. Enhancement of electron-hole exchange interaction in CdSe nanocrystals —— A quantum confinement effect [J]. Phys. Rev., 1996, B53(3): 1 336 ~ 1 342
- 3 罗莹, 王若桢, 马本 . 半导体量子点的形状对受限激子的影响[J]. 物理学报, 1999, 48(7): 1 320 ~ 1 326
- 4 罗莹, 王若桢, 马本 . 介电受限对 CdSe 量子点中受限激子的影响[J]. 物理学报, 1999, 48(4): 729 ~ 734
- 5 Takagahara T. Effects of dielectric confinement and electron-hole exchange interaction on excitonic states in semiconductor quantum dots [J]. Phys. Rev., 1993, B47(8): 4 569 ~ 4 584
- 6 Lin W W, Zunger A. Dielectric constants of silicon quantum dots [J]. Phys. Rev. Lett., 1994, 73(7): 1 039 ~ 1 042
- 7 林兆军, 王占国, 许燕等 . 量子点的介电常数 [J]. 科学通报, 1998, 43(7): 709 ~ 713
- 8 郭震宁, 黄永箴, 郭亨群等 .  $\alpha$ -SiO<sub>x</sub> /  $\alpha$ -SiO<sub>y</sub> /  $\alpha$ -SiO<sub>z</sub> 多层薄膜微结构的退火行为 [J]. 半导体学报, 2000, 21(6): 576 ~ 579
- 9 成步文, 余金中, 于卓等 .  $\alpha$ -Si/SiO<sub>2</sub> 多量子阱材料制备及其晶化和发光 [J]. 发光学报, 1997, 18(3): 217 ~ 222
- 10 沈学础 . 半导体光学性质 [M]. 北京: 科学出版社, 1992. 201 ~ 203

## Dielectric Confinement Property of Silicon Quantum Dots

Guo Zhenning Guo Hengqun

Wang Jiaxian Zhang Wenzhen

(College of Info. Sci. & Eng., Huaqiao Univ., 362011, Quanzhou)

**Abstract** Under the condition of effective mass approximation, the authors studied the relation between dielectric constant of loosely bounded quantum dots and their radii; and calculated the dielectric constant of silicon quantum dots by way of photoluminescent spectra of silicon quantum dots determined at room temperature; and confirmed the dimensional effect of the dielectric constant of silicon quantum dots.

**Keywords** silicon quantum dots, dielectric constant, exciton