

HgS/CdS/HgS 球状纳米系统电子的能量 与寿命以及概率分布*

郑瑞伦 陈志谦 张翠玲 刘俊

(西南师范大学物理系, 重庆 400715)

(2002 年 8 月 7 日收到, 2003 年 1 月 27 日收到修改稿)

建立了 HgS/CdS/HgS 球状纳米系统物理模型和电子状态满足的方程. 应用 S 矩阵理论, 探讨了 s 态电子的能量和寿命以及概率分布随势垒和势阱宽度的变化规律. 结果表明: 电子能量和寿命随势垒宽度增大而增大, 电子能量随阱宽增大而减小, 而寿命随阱宽增大而增大. 层间相互作用对结果有重要影响.

关键词: 球状纳米系统, 电子能量和寿命, 电子概率分布, 势垒势阱宽度

PACC: 7170E

1. 引言

由于球状纳米系统在理论和应用上的重要性, 对它的研究已成为人们很感兴趣的问题之一. 1994 年陈曦等人^[1]在有效质量近似下采用变分法研究了 CaAs-Ca_{1-x}Al_xAs 球状量子点的杂质能谱, Schoos 和 News 等人^[2,3]先后用离子溅射方法制备了 CdS/HgS 和 CdS/HgS/CdS 球状多层纳米系统并从实验和理论上研究了这种封闭型多层球状纳米系统中电子能谱随系统几何尺寸的关系. 上述研究中, 均以势能较小的 HgS 作中间层, 势能大的 CdS 作内核和外层, 结果在小于外面介质势垒高度的范围内形成分立能级的束缚定态, 而高于势垒时形成连续谱. 1997, Tkach 等人^[4]制备出 HgS/CdS/HgS 开放型球状纳米系统, 在这种系统中, 中间层(CdS)势能很大, 内核和外层(HgS)势能小, 这时电子状态为准定态, 电子具有有限寿命, 对这种系统的能谱, 文献^[5]在未考虑层间相互作用下进行了理论研究, 所得电子能级与势垒宽度无关的结论与文献^[6]的实验事实不符, 而且也未讨论电子的概率分布. 2001 年, 张希清^[7]定性探讨了 CdSe/CdMnSe 多量子阱激子光学性质和电子能态, 2002 年, 徐岭等人^[8]用胶体化学法制备了球状 CdSe/HgSe/CdSe 纳米系统, 在有效质量近似下估算了电子能态, 但未定量研究电子能量、寿命以及概率

分布. 近年来, 文献^[9,10]对球状纳米系统电子能量和在磁场中塞曼分裂作了研究, 但研究的仍是封闭型三层球状纳米系统, 对开放型三层球状结构未作研究. 为此, 本文以 HgS/CdS/HgS 球状纳米系统为例, 建立物理模型, 考虑层间相互作用, 研究系统中电子能量、寿命及概率分布随势垒、势阱宽度变化规律.

2. 物理模型

所研究的系统是以 HgS 作核和外层介质, 中间层为 CdS 的球状纳米系统. 外层 HgS 很厚, 电子在 HgS 中的势能比在 CdS 中要低, 且在同种介质中势能变化很小(见图 1)^[11].

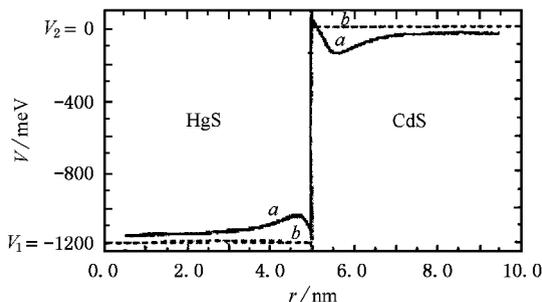


图 1 电子在 HgS 和 CdS 中的势能

* 国家自然科学基金(批准号: 10147207)资助的课题.

作为零级近似,将 HgS 中电子势能取为零,而 CdS 中的电子势能看作一方势垒,则电子势能 $V(r)$ 可写为

$$V(r) = \begin{cases} 0 & 0 \leq r \leq R_0, r \geq R_1, \\ U & R_0 \leq r \leq R_1. \end{cases} \quad (1)$$

注意到,在 HgS 和 CdS 层中电子的有效质量不相同,设在 HgS 中电子的有效质量 $m = m_0$,而在 CdS 中为 $m = m_1$,电子满足的薛定谔方程为

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2} \nabla \frac{1}{m} \nabla + V(r) \right] \psi(r) = E\psi(r). \quad (2)$$

3. 电子波函数的零级近似

因势场球对称,可令 $\psi(r, \theta, \varphi) = R(r)Y_{lm}(\theta, \varphi)$, 这里 $R(r)$ 是径向波函数, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ 是球谐函数, l 和 m 是角动量量子数和磁量子数. 为简便起见,同时考虑定态情况,电子处于 s 态的概率最大,而处于 p, d 等激发态的可能性很小. 因此,我们仅对

s 态电子的性质作以讨论.

对于 $l = 0$ 的情况,令 $x = \sqrt{2m_0(U - E)\hbar^2}$, $k = \sqrt{2m_0E/\hbar^2}$, 得到径向函数 $X(r) = R(r)r$ 满足

$$\begin{cases} \frac{d^2 X(r)}{dr^2} + k^2 X(r) = 0 & 0 \leq r \leq R_0, r \geq R_1, \\ \frac{d^2 X(r)}{dr^2} - x^2 X(r) = 0 & R_0 < r < R_1. \end{cases} \quad (3)$$

其解之一为

$$X(r)^{+) = \begin{cases} ae^{ikr} + be^{-ikr} & 0 < r \leq R_0, \\ \alpha e^{xr} + \beta e^{-xr} & R_0 < r < R_1, \\ ce^{ikr} + de^{-ikr} & r \geq R_1. \end{cases} \quad (4)$$

因为在 $r > R_1$ 的区域内,电子不能向左传播,所以取 $d = 0$; 为研究方便,取 $c = 1$. 而 a, b, α, β 的值由波函数和概率密度在边界上连续的条件求出,结果为

$$\begin{aligned} a &= e^{ik(R_0+R_1)} \chi_{R_1-R_0} \frac{e^{-x(R_1-R_0)} (\Delta m + q_1^+) \chi - (\Delta m + q_0^+) \chi - (\Delta m + q_0^-) \chi - (\Delta m + q_1^-) \chi}{4im_0 m_1 R_0 R_1 kx}, \\ b &= -e^{ik(R_0+R_1)} \chi_{R_1-R_0} \frac{e^{-x(R_1-R_0)} (\Delta m + q_1^+) \chi - (\Delta m + q_0^-) \chi - (\Delta m + q_1^-) \chi - (\Delta m + q_0^-) \chi}{4im_0 m_1 R_0 R_1 kx}, \\ \alpha &= e^{-R_1(x-ik)} \frac{\Delta m + q_1^+}{2m_0 R_1 x}, \quad \beta = -e^{-R_1(x+ik)} \frac{\Delta m + q_1^-}{2m_0 R_1 x}, \end{aligned}$$

这里 $\Delta m = m_0 - m_1, q_0^+ = (m_0 x + ikm_1)R_0,$

$$q_0^- = (m_0 x - ikm_1)R_0,$$

$$q_1^+ = (m_0 x + ikm_1)R_1, q_1^- = (m_0 x - ikm_1)R_1.$$

另一个解为 $X^{(-)}(r)$ 是前一个解的共厄复数,即 $[X^{(+)}(r)]^* = X^{(-)}(r)$ (3) 式的普遍解为

$$X(r) = \frac{1}{i\sqrt{2\pi S(k)}} [-X^{(-)}(r) + S(k)X^{(+)}(r)], \quad (5)$$

式中的 $S(k)$ 为散射矩阵,其表达式由文献 [5] 给出:

$$S(k) =$$

$$e^{-2ikR_1} \frac{(q_1^+ - \Delta m) \left(e^{-2x(R_1-R_0)} + \frac{q_1^+ - \Delta m}{q_1^- + \Delta m} \xi(k) \right)}{(q_1^- - \Delta m) \left(e^{-2x(R_1-R_0)} + \frac{q_1^- - \Delta m}{q_1^+ + \Delta m} \xi(k) \right)} \begin{pmatrix} R_1 \\ R_0 \end{pmatrix}, \quad (6)$$

$$\xi(k) = \frac{m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(kR_0) + m_0 R_0 x + \Delta m}{m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(kR_0) - m_0 R_0 x + \Delta m}.$$

4. 电子的能量和寿命的零级近似

按照量子力学的理论,准定态的能级 E_n 和电子寿命 τ_n 由 S 矩阵在能量复平面上的极点 $\tilde{E} = E_1 + iE_2$ 或复波矢平面上的极点 $\tilde{K} = k_1 - ik_2$ 确定. 在 (6) 式中,令 $\xi(k) = 0$ 得到的 $S(k)$ 矩阵没有极点,故 S 矩阵的极点只能在满足 $\xi(k) = 0$ 的点 k_n 的邻域内, k_n 的值由 $\xi(k) = 0$ 确定,即满足

$$m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(kR_0) + m_0 R_0 x + \Delta m = 0. \quad (7)$$

这是关于 k 的超越方程,为了求 k_n 的值,可采取作图法来解. 令 $f(k) = m_1 k R_0 \operatorname{ctg}(kR_0), g(k) = -m_0 R_0 x - \Delta m, f(k)$ 和 $g(k)$ 曲线的交点 k_n 即为方程 (7) 的解. $S(k)$ 的极点是使 $S(k)$ 趋于无穷的点,意味着对极点 (8) 式的分母为零,极点应满足

$$e^{-2\alpha(R_1 - R_0)} + \frac{q_1^- - \Delta m}{q_1^+ + \Delta m} \xi(k) = 0. \quad (8)$$

为了求得 S 矩阵极点的表达式, 将 $\xi(k)$ 在 k_n 附近展开, 取线性项并令 $x_n = \sqrt{x_0^2 - m_1 k_n^2 / m_0}$, $x_0^2 = 2m_1 U / \hbar^2$, 由(8)式得到

$$e^{-2x_n \Delta R} + \left(\frac{q_1^- - \Delta m}{q_1^+ - \Delta m} \right) \frac{1}{2k_n} \left(\frac{m_1 k_n^2}{m_0 x_n^2} + \frac{\Delta m}{m_1 R_0 x_n} + \frac{m_0}{m_1} \right) \times (1 + R_0 x_n) \xi(k - k_n) = 0,$$

式中 $\Delta R = R_1 - R_0$ 是势垒的宽度. S 矩阵在复波矢空间中的迹点 $\tilde{K} = k_1 + ik_2$ 的 k_1 和 k_2 由该方程决定, 作为初级近似, 令 $e^{-2x_n \Delta R} \approx e^{-2x_n \Delta R}$, 求得方程的近似解为

$$\begin{cases} k_1 = k_n, \\ k_2 = 16k_n / D(R_0, R_1) e^{2x_n \Delta R}, \end{cases} \quad (9)$$

$$D(R_0, R_1) = \left[m_1^2 k_n^2 + \left(m_0 x_n + \frac{\Delta m}{R_1} \right)^2 \right] \times \left(m_0^2 x_n^2 + m_1^2 k_n^2 + \frac{m_0 \Delta m x_n}{R_1} \right) \times (1 + x_n R_0) m_0^2 m_1^2 x_n^3 k_n.$$

电子能量 E_n 和寿命 τ_n 可利用 S 矩阵理论和时间能量不确定关系, 由 S 矩阵的极点 $\tilde{E} = E_1 + iE_2$ 决定: $E_n = \hbar^2 (k_1^2 - k_2^2) / 2m_0$, $\tau_n = m_0 / 2\hbar k_1 k_2$. 将(9)式代入 E_n 和 τ_n 得到

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left[1 - \left(\frac{16}{D(R_0, R_1)} e^{2x_n(R_1 - R_0)} \right)^2 \right] k_n^2, \quad (10)$$

$$\tau_n = \frac{m_0}{32\hbar k_n^2} D(R_0, R_1) e^{2x_n(R_1 - R_0)}. \quad (11)$$

5. 电子能量和寿命的一级近似

按照文献 [11], 考虑层间相互作用后, 会产生一个较小的附加势能 $V(r)$, 对 HgS/CdS/HgS 球状纳米系统, 可写为

$$V(r) = \begin{cases} \frac{e^2 \delta}{2\epsilon_1 R_0} \left(\frac{R_0^2}{R_0^2 - r^2} + \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \right) & (r < R_0), \\ \frac{e^2 \delta}{2\epsilon_2 R_0} \left(\frac{R_0^2}{R_0^2 - r^2} + \frac{R_0^2}{r^2} \right) & (R_0 < r < R_1), \\ \frac{e^2 \delta}{2\epsilon_1 R_0} \left(\frac{R_1^2}{R_1^2 - r^2} + \frac{R_1^2}{r^2} \right) & (r > R_1), \end{cases} \quad (12)$$

式中为 ϵ_1, ϵ_2 分别为 HgS, CdS 的介电常数, $\delta =$

$(\epsilon_1 - \epsilon_2) / (\epsilon_1 + \epsilon_2)$, 由于 $V(r)$ 很小, 可将它作为微扰, 将(5)式代入 $\psi_0 = R(r) Y_{00} = X(r) \sqrt{4\pi} r$ 求得零级近似波函数, 进而求出能量一级修正值, 结果为

$$E^1 = \frac{e^2 \delta}{4\epsilon_1 R_0 \pi S(k)} \left\{ [S(k)a - b] R_0 + [S(k)b - a] R_0 - \frac{2[S(k)a - b] S(k) - a}{k} \right. \\ \left. \times \sin 2kR_0 \right\} + \frac{e^2 \delta}{4\epsilon_1 R_0 \pi S(k)} \{ S(k) - 1 \} \\ \times \left[\frac{\alpha}{2x} (e^{2xR_1} - e^{2xR_0}) + 2\alpha \beta (R_1 - R_0) \right. \\ \left. \times \frac{\beta}{2x} (e^{-2xR_1} - e^{-2xR_0}) \right] \\ + \frac{e^2 \delta}{4\epsilon_1 R_1 \pi S(k)} \{ 1 + S^2(k) \}. \quad (13)$$

由此得到考虑层间相互作用后能量的一级近似为

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left\{ 1 - \left(\frac{16}{D(R_0, R_1)} e^{2x_n(R_1 - R_0)} \right)^2 \right\} k_n^2 + E^1, \quad (14)$$

而相应的电子寿命一级近似

$$\tau_n \approx \frac{m_0}{32\hbar^2 (k_n^2 + 2mE^1/\hbar^2)} D(R_0, R_1) e^{2x_n(R_1 - R_0)}. \quad (15)$$

6. HgS/CdS/HgS 球状纳米系统电子的能量、寿命和概率分布

对 HgS/CdS/HgS 球状纳米系统, 文献 [5] 给出: $m_0 = 0.036m_e$, $m_1 = 0.2m_e$, 这里 m_e 为电子静止质量, HgS 和 CdS 的点阵常数 $a_{\text{HgS}} = 0.50851\text{nm}$, $a_{\text{CdS}} = 0.50818\text{nm}$. 文献 [11] 给出 HgS 和 CdS 的介电常数分别为 $\epsilon_1 = 11.36$, $\epsilon_2 = 5.5$.

6.1. 电子的能量和寿命随势垒宽度的变化

取 $R_0 = 15a_{\text{HgS}}$, 作出 $f(k)$ 或 $g(k)$ 变化曲线 (见图 2), 由图得到交点 k_n 的值为 $k_{n1} = 5.87978 \times 10^8 \text{m}^{-1}$, $k_{n2} = 2.79809 \times 10^8 \text{m}^{-1}$, $k_{n3} = 9.1208 \times 10^8 \text{m}^{-1}$. 将所得的值代入(9)式, 求得不同 R_1 的 $D(R_0, R_1)$, 然后将 $D(R_0, R_1)$ 再代入(10)和(11)式, 得到不考虑层间相互作用时电子能量和寿命随势垒宽度 $\Delta R = R_1 - R_0$ (即图中的 ρ) 的变化曲线, 如图 3 和图 4 中的实线所示.

由图 3 和图 4 看出: 当不考虑层间相互作用时,

若势垒宽度较小(小于 1.0 nm),电子的能量和寿命均随厚度的增加而增大,其中能量增大较快.若势垒宽度较大(大于 1.0 nm),能量几乎不变,而寿命却随势垒宽度增加而急剧增大.这一结果与实验值^[6](图中黑点)偏离较大.

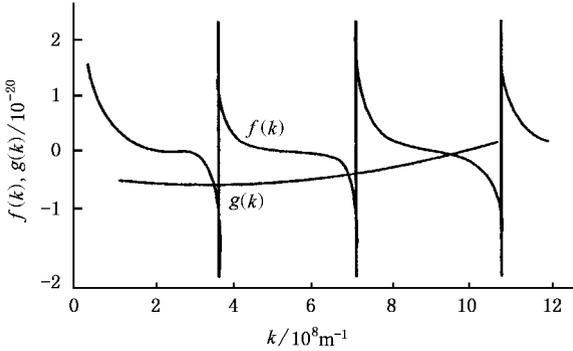


图 2 $g(k)$ 和 $f(k)$ 的函数曲线

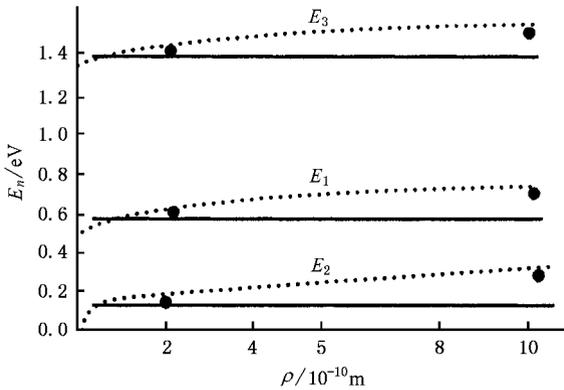


图 3 电子的能量随势垒宽度的变化

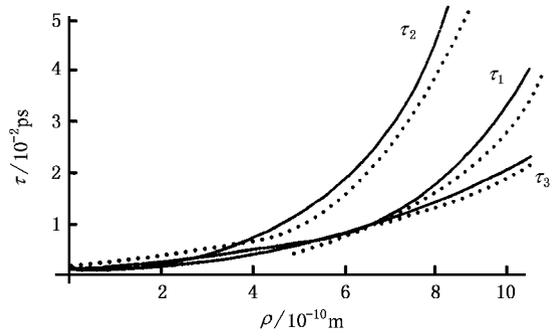


图 4 电子的寿命随势垒宽度的变化

考虑到层间相互作用时,由(14)(15)式所得的结果如图中的虚线所示.它表明:电子能量随势垒宽度增大而增大,当势垒宽度由 2×10^{-10} m 增大到 10×10^{-10} m 时,能级 E_1, E_2, E_3 分别增大 65%, 17%, 9.6%, 与文献[6]给出的增加 75%, 35%, 10% 实验值接近.

6.2. 电子的能量和寿命随势阱宽度的变化

取势垒宽度 $\Delta R = (R_1 - R_0) = 5a_{\text{CdS}}$ 的情况作讨论. R_0 分别取不同的值,按照前述步骤,作出不同 R_0 的 $f(k)$ 和 $g(k)$ 曲线,找出相应的交点 k_n (即(7)式的解),由(10)和(11)式求出不考虑层间作用时的能量 E_n 和寿命 τ_n . 结果见表 1,相应的变化曲线见图 5 中的实线.将求得的 k_n 代入(14)(15)式,求出考虑层间相互作用时的 E_n, τ_n 随阱宽 R_0 的变化曲线见图 5 中的虚线.

表 1 在势垒宽度 $\Delta R = 5a_{\text{CdS}}$ 的情况下 k_n, E_n 和 τ_n 随 R_0 的变化

R_0/a_{HgS}	2.5	5.0	7.5	10.0	12.5	15.0	17.5	20.0	22.5	25.0	
K_n $/10^8 \text{ m}^{-1}$	$n = 1$	3.61502	2.65781	2.19706	1.84777	1.57238	1.32891	1.13801	0.94592	0.84047	0.76724
	$n = 2$	—	—	4.87669	3.79612	3.14777	2.65781	2.40186	2.1701	2.0073	1.84777
	$n = 3$	—	—	—	—	4.90077	4.18834	3.63127	3.23701	2.87077	2.67987
E_n $/\text{eV}$	$n = 1$	0.2222	0.119999	0.0820002	0.0579998	0.0419997	0.0300001	0.022	0.0151999	0.0119998	0.00999985
	$n = 2$	—	—	0.404	0.2448	0.16832	0.119999	0.0980001	0.0800001	0.0684472	0.0579998
	$n = 3$	—	—	—	—	0.408	0.297999	0.224	0.178	0.14	0.122
τ_n $/10^{-2} \text{ ps}$	$n = 1$	0.830064	3.83932	10.6012	24.8043	52.3328	107.442	205.674	419.196	689.778	1031.04
	$n = 2$	—	—	1.06042	3.21908	7.20629	14.5167	23.5425	37.1589	53.857	77.821
	$n = 3$	—	—	—	—	1.96289	4.11111	7.60127	12.434	20.1084	27.7338

由图 5 可以看出,电子的能量随阱宽增加而迅速减小,而寿命随阱宽增大而增大,其中 E_1 和 τ_1 变化最明显.考虑层间相互作用后(图 5 中的虚线),能量相应增大,而寿命有所减小.

6.3. 电子的概率分布

取极点附近的邻域来讨论不考虑层间作用时电子的概率分布.将(5)式代入 $R(r) = X(r)r$ 中,求得电子概率的径向分布函数 $W(r) = R^2(r)r^2 = |X_k(r)|^2$.对应于 E_1 的电子概率分布见图 6(图中虚线为势垒).

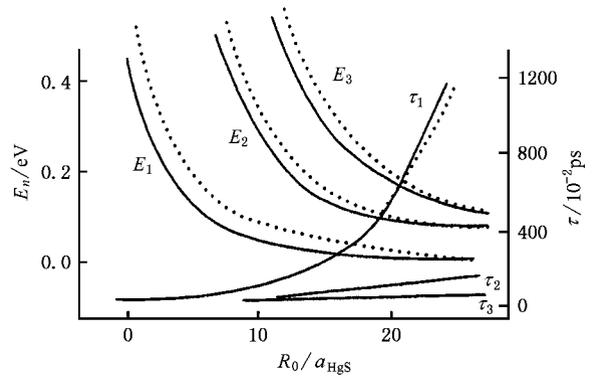


图 5 电子的能量和寿命随势阱宽度的变化

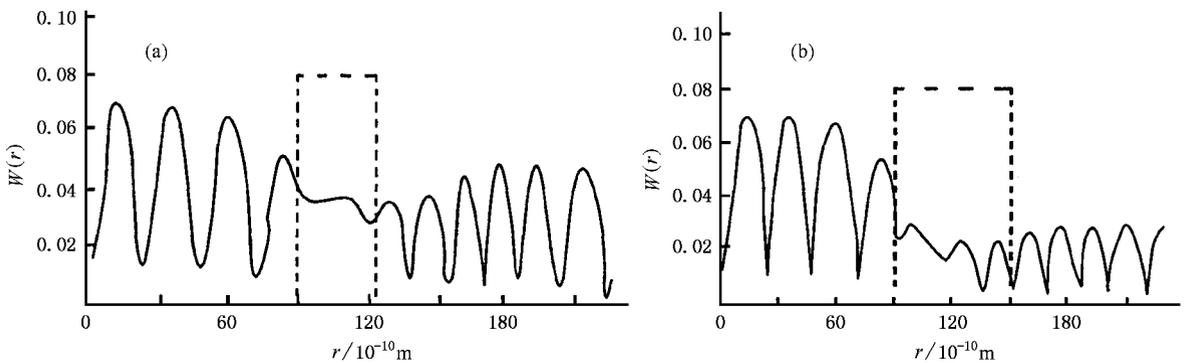


图 6 在 $R_0 = 15 a_{\text{HgS}}$ 情况下电子的概率分布((a) $\Delta R = 5 a_{\text{CdS}}$ (b) $\Delta R = 10 a_{\text{CdS}}$)

由图 6 看出,阱内和阱外的概率分布均呈振荡特征,且势垒宽度增加时,阱内概率分布不受什么影响,而阱外和势垒内的概率振荡幅值均减小.

7. 结 论

1. Hg/CdS/HgS 球状纳米系统中电子能量和寿命均与势阱和势垒宽度有关.势垒宽度一定时,电子能量随阱宽增大而减小,而寿命则随阱宽增大而增大;而阱宽一定时,电子能量和寿命均随势垒宽度增大而增大,但变化情况不一样,且与电子所处能级状态

有关,在 $2 \times 10^{-10} \text{ m}$ 到 $10 \times 10^{-10} \text{ m}$ 的势垒宽度范围内,最低能级的能量可增大 65%,而寿命可增大近 10 倍,与实验值基本一致.

2. 电子径向概率分布在阱内和势垒外均呈振荡特征,势垒宽度增加对阱内概率分布影响不大,而势垒外概率振荡幅值减小.

3. 层间相互作用对电子能量和寿命均有重要影响,若不考虑层间相互作用,电子的能量将与势垒宽度无关而与实验不符,考虑到这一影响后其理论结果接近实验值.

- [1] Chen X and Zhu J L 1994 *Acta Phys. Sin.* **43** 1008 (in Chinese)
[陈 曦、朱嘉麟 1994 物理学报 **43** 1008]
- [2] Schoos D , Mews A , Fychmuller A and Weller H 1994 *Phys. Rev. B* **49** 17072
- [3] Mews A , Kadavanich A V and Banin U 1996 *Phys. Rev. B* **53** 13242
- [4] Tkach M , Holowatsky V , Voitsckivska O and Minkova M 1997 *Phys. Stat. Sol. B* **203** 578
- [5] Ткач Н В , Голованкий В А 1999 *ФТТ* **41** 2081
- [6] Yakimov A *et al* 2000 *Phys. Rev. B* **62** 16283
- [7] Zhang X Q 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1167 (in Chinese) [张希清 2001 物理学报 **50** 1167]
- [8] Xu L , Ma Y , Li M H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 877 (in Chinese)
[徐 岭、马 懿、李明海 2002 物理学报 **51** 877]
- [9] Liang X G , Jiang D S and Bian L F 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 1203
- [10] Chen Z Q , Chen H , Cheng N P and Zheng R L 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 649 (in Chinese) [陈志谦、陈 洪、程南璞、郑瑞伦 2002 物理学报 **51** 649]
- [11] Бойчук В И , Кубай Р Ю 2001 *ФТТ* **43** 2226

Electronic energy and life span probability distribution of the HgS/CdS/HgS spherical nanometer system *

Zheng Rui-Lun Chen Zhi-Qian Zhang Cui-Ling Liu Jun

(Department of Physics , Southwest Normal University , Chongqing 400715 , China)

(Received 7 August 2002 ; revised manuscript received 27 January 2003)

Abstract

The physical Model for the spherical HgS/CdS/HgS nanometer system and equations satisfied by the electron motion are built. The energy and life span of s-electron and the variation of the probability distribution with the width of the potential barrier and well are probed. Some important results indicate that the energy and life span of the electron increase with the increase of the potential barrier width ; electronic energy decreases with the increase of the potential well width , however the electronic life span is increased. The interaction between layers has an important influence on the results.

Keywords : spherical nanometer system , electronic energy , life span and probability distribution , potential barrier width , potential well width

PACC : 7170E

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10147207).