

반도체 나노구조에서의 엑시톤쌍의 결합에너지

Binding Energies of Biexcitons in Semiconductor Nanocrystals

제구출, 박승한
연세대학교 물리학과
je@phya.yonsei.ac.kr

나노구조 반도체의 크기가 엑시톤 보어 반경과 비슷하거나 작은 경우에는 전하들이 3차원 전 공간상에서 강한 구속현상이 일어나므로 다양하고 새로운 광학적인 특성들을 나타낸다. 이러한 구속현상은 전자와 양자들 사이의 쿨롱 상호작용에 영향을 주어 나노구조 전자들의 상태를 현저하게 변화시키며, 띠구조의 에너지 준위를 갖게 한다. 특히, 나노구조에서는 엑시톤들 간의 매우 강한 쿨롱 상호작용 때문에 엑시톤쌍이 형성될 수 있다는 것이 이론적으로 예측되어 왔고, 여기 된 엑시톤쌍이 안정된 상태로 나노구조 반도체에서 존재하는 것도 관측된 바 있다. 따라서 엑시톤쌍은 반도체 나노구조의 광학적 비선형성에 크게 영향을 줄 수 있으므로 엑시톤쌍에 관한 연구는 매우 중요한 연구 분야이다. 본 연구진은 최근 펨토초 이광자 pump-probe 분광법으로 다양한 엑시톤들을 생성시켜 엑시톤쌍 효과를 크게 할 수 있다는 것을 관측한 바 있으므로[1], 본 연구에서는 엑시톤쌍의 결합에너지를 이론적으로 계산하여 실험결과와 비교함으로써, 나노구조 반도체의 광학적인 특성을 이해하는데 적합한 이론을 제시하고자 한다.

그림[1]은 $2.18eV(|1Se1Sh\rangle)$, $3.10eV(|1Pe1Ph\rangle)$, $1.11eV(|1Se1Ph\rangle)$ 에서 여기 된 $CdSe_{0.6}Se_{0.4}$ 나노구조에 대하여 100 fs 시간 간격으로 측정된 과도흡수 스펙트럼과 선형 흡광도이다. 본 계산에서는 실험적인 조건에 따라 생성되어진 $|1Se1Sh\rangle$, $|1Pe1Ph\rangle$, $|1Se1Ph\rangle$, $|1Se2Ph\rangle$ 엑시톤을 기본으로 각운동량 상태를 $l=3$ 까지 포함시켜 엑시톤쌍의 결합에너지를 계산하여 실험결과와 비교하였다. 양자점 구조에서 쿨롱 상호작용을 포함한 전자-양공 쌍들의 계는 해석적으로 계산할 수 없기 때문에, 엑시톤쌍의 결합에너지 계산은 수치적인 행렬 대각화 [2] 방법과 변분 방법을 이용해서 계산되고 있으므로, 먼저 엑시톤과 엑시톤쌍들의 상태를 적당한 기준함수들의 집합으로 구성하였고, 그 파동 함수들을 섭동이론으로 계산한 다음, 수치적인 행렬 대각화를 취해서 계산하였다. 엑시톤 상태는 다음과 같이 구성하였다.

$$|\Phi_1\rangle = \int \int dr_e dr_h \phi_{n_1 n_2 l_1 l_2; LM}^1(r_e, r_h) \sum_{s_e, s_h} \chi(s_e, s_h) \phi_e^\dagger(r_e, s_e) \phi_h^\dagger(r_h, s_h) |0\rangle,$$

여기서 $\chi(s_e, s_h)$ 는 스핀부분이고, $\phi_e^\dagger(\phi_h^\dagger)$ 는 전자(양공)의 생성 작용자이며, $\phi_{n_1 n_2 l_1 l_2; LM}^1(r_e, r_h) = \sum_{m_1, m_2} \langle l_1 m_1 l_2 m_2 | LM \rangle \phi_{N_1}(r_e) \phi_{N_2}(r_h)$ 는 엑시톤의 파동함수이고, $\phi_N(r_e)$ 는 단일 입자의 파동함수이며, $\sum_{m_1, m_2} \langle l_1 m_1 l_2 m_2 | LM \rangle$ 는 Clebsch-Gordan 계수를 나타내고, $N = \{n, l, m\}$ 은 양자수들의 집합이며, L과 M은 전 각운동량과 z 성분의 양자수들이다.

위의 엑시톤들의 구성처럼 엑시톤쌍 상태들도 엑시톤들을 기준으로 해서 두 개의 엑시톤들의 집합체

로 구성되어 있다. 또, 반경의 공간적분과 선택 규칙을 제공하는 각적분들을 포함하는 엑시톤과 엑시톤 쌍들의 쿨롱 상호작용의 행렬도 계산한다. 일반적으로 엑시톤쌍의 바닥상태의 결합에너지는 두 개의 여기된 엑시톤들의 바닥상태의 에너지로 표현할 수 있다. 즉, $\delta E_2^{ij} = (E_1^i + E_1^j) - E_2^{ij}$. 여기서 E_1^i 는 상태 i 인 엑시톤의 바닥상태 에너지이고, E_2^{ij} 는 상태 ij 인 엑시톤쌍의 에너지이다. 그림 [2]는 $CdS_{0.6}Se_{0.4}$ 나노구조에서 나노입자 크기에 대한 엑시톤쌍의 결합에너지를 계산한 결과인데, 엑시톤쌍들의 결합에너지는 양자점 크기(R)이 작을수록 결합에너지가 빠르게 커지는 것을 볼 수 있다. 크기는 보여 반경에 의하여 표시하였고, 에너지는 Bulk 결합에너지를 기준으로 표시하였다. 결론적으로 엑시톤쌍의 결합에너지는 구성에 참여한 엑시톤들의 상태들에 크게 의존함을 알 수 있었으며, $|1Se1Sh\rangle$ 와 $|1Se1Ph\rangle$ 엑시톤들로 구성된 $|1Se1Sh;1SePh\rangle$ 엑시톤쌍의 결합에너지가, $|1Se1Sh\rangle$ 와 $|1Se1Sh\rangle$ 그리고 $|1Se1Sh\rangle$ 와 $|1Pe1Ph\rangle$ 로 구성된 $|1Se1Sh;1Se1Sh\rangle$ 과 $|1Se1Sh;1Pe1Ph\rangle$ 의 엑시톤쌍들의 결합에너지보다 더 크다는 것을 알 수 있었다.

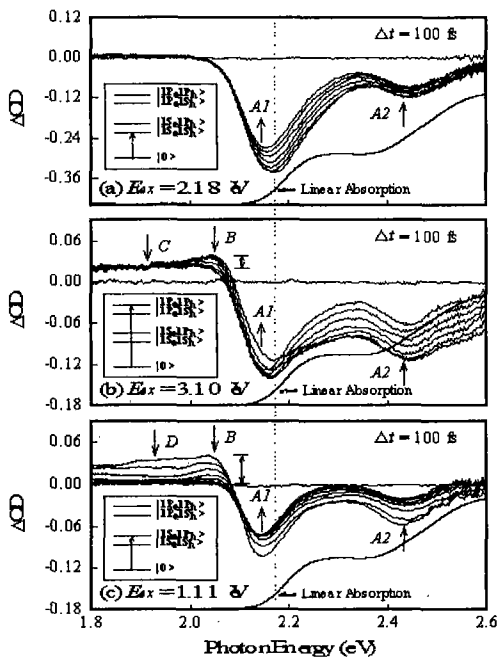


그림 1. 펄스초 이광자 pump-probe 분광법에 의한 엑시톤쌍 효과

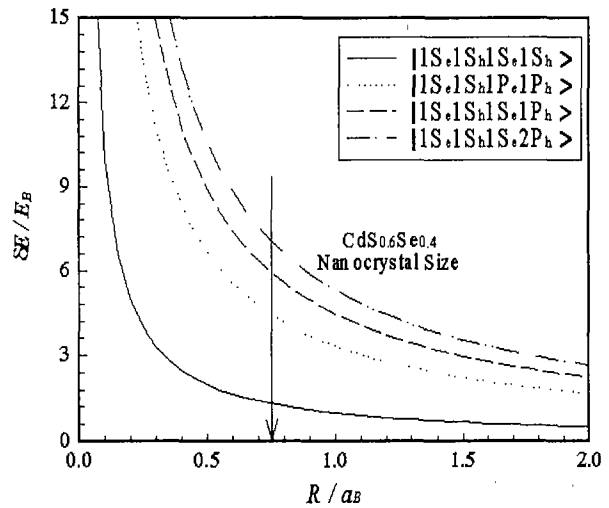


그림 2. 엑시톤쌍의 이론적 결합 에너지

참 고 문 헌

[1] Young-Nam Hwang, Koo-Chul Je, Dongho Kim, and Seung-Han Park, Phys. Rev. B **64**, to be published (2001).
 [2] Y. Z. Hu, M. Lindberg, and S. W. Koch, Phys. Rev. B **42**, 1713 (1990).

