

Дослідження прямих міжпідзонних переходів в надгратках сферичних квантових точок

В.І. Бойчук, І.В. Білинський*, Р.І. Пазюк***

*кафедра теоретичної фізики та МВФ,

**кафедра інформатики та ОМ,

Дрогобицький державний педагогічний університет імені Івана Франка,
вул. Стрийська, 3, Дрогобич, 82100, Україна

У роботі досліджується 3D-надгратка сферичних квантових точок кристалу InAs у матриці GaAs. В наближенні сильного зв'язку отримано і проаналізовано закони дисперсії електронів. Детально обчислено залежність $E = E(\vec{k})$ для 1s- та 1p-підзон ($m=0, \pm 1$) КТ різних радіусів.

Отримано залежності густини електронних станів від енергії у 1s- та 1p-підзонах. Обчислено коефіцієнт поглинання для прямих міжпідзонних переходів, який виражається через квадрат матричного елементу електронного переходу та комбінованої густини станів.

Ключові слова: квантова точка, надгратка, електронні стани, густина станів, коефіцієнт поглинання.

ВСТУП

Впровадження і розвиток нових методів вирощування великих упорядкованих масивів квантових точок [1,2] стимулює науковий інтерес, як експериментальний, так і теоретичний, до вивчення надграток. Автори роботи [3] виростили масив квантових точок InAs на напівпровідниковій підкладці GaAs з незначною дисперсією за розмірами квантових точок (КТ) і показали, що утворюється періодична структура КТ уздовж певного напрямку. Надгратки вертикально зв'язаних КТ були вирощені і описані у роботах [4,5].

Для створення багат шарових надграток сферичних квантових точок автори [6,7] запропонували метод впровадження КТ у пори металу чи полімерної плівки, які мають ідеальну необхідну форму. Цей метод забезпечує надзвичайно вузький розподіл за розмірами КТ та їх високу ступінь упорядкованості.

Масив вертикально зв'язаних КТ з анізотропною ефективною масою носіїв заряду, апроксимований моделлю надгратки квантових точок (НГКТ), які розташовані у середовищі вздовж еліптичного квантового дроту, досліджувався у роботі [8]. Розрахунки енер-

гетичного спектру електрона показали, що вздовж квантового дроту у НГКТ присутні парні і непарні дозволені і заборонені мінізони енергій. Причому їх положення та кількість визначається розмірами КТ, а ширина дозволених мінізон – товщиною і висотою потенціальних бар'єрів. Квазічастинка в кожній із зон характеризується своєю величиною ефективною маси, яка також залежить від еліптичності квантового дроту.

Автори [9], на відміну від [8], «дозволили» квазічастинкам тунелювати не тільки в одному напрямі (1D-надгратка). В роботі побудована модель періодично розташованих площин КТ (2D-надгратка) і методом функцій Гріна досліджуються оптичні властивості таких багат шарових систем, зокрема, густина станів та коефіцієнт поглинання в низько енергетичній інфрачервоній області.

У роботах [10, 11]. проведено теоретичне обґрунтування електронної зонної структури 3D-надгратки GaAs/AlAs з рівномірно розподіленими тунельно-зв'язаними КТ. Розрахунки спектру електронів і дірок в НГКТ сферичної форми показали наявність набору мінізон, що утворюються в додатковому

періодичному потенціалі НГ, що моделює дно зони провідності і верх валентної зони матеріалів гетероструктури. Обчислення матричного елементу та густини станів міжпідзонних переходів, проведені зокрема в роботі [10], дозволили отримати залежність коефіцієнта міжпідзонного поглинання гетеросистем $GaAs / Al_x Ga_{1-x} As$ з періодично розташованими квантовими точками від частоти падаючого світла.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧІ

Розглянемо періодичну структуру напівпровідникових сферичних квантових точок (НСКТ) поміщених в матриці, яка моделює награтку, де елементарною коміркою є прямокутна призма. Параметри КТ і матриці є такі, що сталі ґратки їх є дуже близькими за величинами ($a \approx a_m$), а діелектричні проникності КТ (ϵ) і матриці (ϵ_m) незначно відрізняються ($\epsilon \sim \epsilon_m$).

Для розрахунку спектру електрона використовуємо наближення ефективних мас, яке справедливе при не дуже малих радіусах КТ [12], і де ефективні маси електрона в КТ і в матриці (m_1, m_2) можна вважати такими, як у відповідних масивних кристалах. Тоді за умови використання наближення ступінчатого потенціалу потенціальна енергія та маса електрона матимуть вигляд:

$$V(r) = \begin{cases} -U_0, & r \leq R, \\ 0, & r > R \end{cases}, \quad m(r) = \begin{cases} m_1, & r \leq R, \\ m_2, & r > R \end{cases}, \quad (1)$$

де r – відстань електрона від центру КТ радіусом R .

Для знаходження енергетичного спектру і хвильових функцій електрона НСКТ запишемо рівняння Шредінґера з гамільтоніаном:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2} \nabla^2 \frac{1}{m_i} + U(\vec{r}),$$

де $U(\vec{r})$ – періодичний потенціал надгратки. Скористаємось наближенням сильного зв'язку, тому

$$U(\vec{r}) = \sum_{\vec{n}} V(\vec{r} - \vec{n}),$$

де $\vec{n} = n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2 + n_3 \vec{a}_3$, $n_i = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$.

Хвильова функція електрона $\psi(\vec{r})$ повинна задовольняти умові періодичності Блоха з

потенціалом $U(\vec{r})$. Тому шукаємо її у вигляді:

$$\psi(\vec{r}) = \sum_{\vec{n}, \nu} C_{\nu} e^{i\vec{k}\vec{n}} \phi_{\nu}(\vec{r} - \vec{n}), \quad (2)$$

де $\phi_{\nu}(\vec{r})$ – власна функція окремо взятої КТ, яка визначається набором квантових чисел $\nu(n, l, m)$, C_{ν} – коефіцієнти розкладу.

Рівняння Шредінґера сферичної точки для моделі (1) розв'язується точно. Хвильові функції станів записуються у вигляді:

$$\phi_{\nu}(\vec{r}) = Y_{lm}(\theta, \phi) \cdot \begin{cases} A j_l(kr), & r \leq R \\ B h_l^{(1)}(\chi r), & r > R \end{cases},$$

де $Y_{lm}(\theta, \phi)$ – сферична функція, $j_l(x)$, $h_l^{(1)}(x)$ – функції Бесселя і Ханкеля відповідно. З умов зшивання хвильової функції, які вразовують неперервність її та потоку ймовірності, можна визначити енергію електронних квантових станів в КТ.

Стационарне рівняння Шредінґера для електрона в НСКТ:

$$\hat{H} \sum_{\vec{n}, \nu} e^{i\vec{k}\cdot\vec{n}} C_{\nu} \phi_{\nu}(\vec{r} - \vec{n}) = E \sum_{\vec{n}, \nu} e^{i\vec{k}\cdot\vec{n}} C_{\nu} \phi_{\nu}(\vec{r} - \vec{n}). \quad (3)$$

Домножимо рівняння (3) на $e^{-i\vec{k}'\cdot\vec{r}} \phi_{\nu'}^*(\vec{r} - \vec{n}')$ та проінтегруємо його за координатами. У наближенні найближчих сусідів отримаємо систему лінійних алгебраїчних рівнянь, де визначник, складений з величин, що знаходяться біля невідомих коефіцієнтів C_{ν} , прирівняний до нуля дає дисперсійне рівняння для визначення енергетичного спектру НСКТ $E = E(\vec{k})$.

Визначивши енергетичний спектр електрона такої системи, дослідимо його оптичні характеристики, зокрема коефіцієнт поглинання.

Нехай на надграткову систему КТ падає монохроматична електромагнітна хвиля, поляризація якої задається вектором $\vec{\xi}$. Тоді взаємодія електромагнітної хвилі з електроном задається оператором

$$\hat{H}' = \frac{e\hbar}{m_0\omega} e^{i(\vec{\chi}\vec{r} - \omega t)} A_0(\vec{\xi}, \vec{\nabla}),$$

де $\vec{A} = -\frac{ic}{\omega} \vec{\xi} A_0 e^{i(\vec{\chi}\vec{r} - \omega t)}$ – векторний потенціал, $\vec{\chi}, \omega$ – хвильовий вектор та частота хвилі.

Ймовірність переходу електрона з підзони ν зони l з квантовими числами початкового стану $\lambda = \{l, \nu, \vec{p}\}$ в кінцевий стан

$\lambda' = \{l', \nu', \vec{p}'\}$ визначає фактично спостережуваний на досліді коефіцієнт поглинання, який визначається різницею енергії поглинутого та випроміненого світла [13]

$$\alpha = \frac{2(2\pi e\hbar)^2}{Vm_0^2\omega c\sqrt{\varepsilon_1}} \sum_{\lambda, \lambda'} \left| \langle \vec{\varepsilon}, \vec{J}_{\lambda\lambda'} \rangle \right|^2 (f(\lambda) - f(\lambda')) \delta(E_\lambda - E_{\lambda'} - \hbar\omega), \quad (4)$$

$\vec{J}_{\lambda\lambda'} = \int \varphi_\lambda^* e^{i\vec{\lambda}\vec{r}} \vec{\nabla} \varphi_{\lambda'} d\vec{r}$ – матричний елемент, $\varphi_\lambda = u_l(\vec{r}) \varphi_{l\nu\vec{k}}(\vec{r})$, $\varphi_{l\nu\vec{k}}(\vec{r})$ – обвідна хвильова функція частинки, $u_l(\vec{r})$ – блохівська осцилююча функція частинки 1-зони в Γ -точці зони Брілюена. Якщо рівновага в електронному газі порушується лише за рахунок

$$\vec{J}_{1s, 1p, m'}(\vec{k}) = a_{1p, m'}^* a_{1s} \left\{ \int \psi_{1p, m'}^{0*}(\vec{r}) \vec{\nabla} \psi_{1s}^0(\vec{r}) + \sum_{\vec{m}_0} e^{i\vec{k}\vec{m}_0} \int \psi_{1p, m'}^{0*}(\vec{r} + \vec{m}_0) \vec{\nabla} \psi_{1s}^0(\vec{r}) \right\}, \quad (5)$$

де $m' = 0, \pm 1$;

$$a_{\left\{ \begin{smallmatrix} 1s \\ 1p \end{smallmatrix} \right\}} = \left(1 + \sum_{\vec{m}_0} e^{i\vec{k}\vec{m}_0} \int \psi_{\left\{ \begin{smallmatrix} 1s \\ 1p \end{smallmatrix} \right\}}^{0*}(\vec{r} + \vec{m}_0) \psi_{\left\{ \begin{smallmatrix} 1s \\ 1p \end{smallmatrix} \right\}}^0(\vec{r}) \right)^{-1/2},$$

$\vec{m}_0$ – вектори трансляції.

Проведено дослідження квадрату матричного елемента $|\vec{J}_{1s, 1p, m'}(\vec{k})|^2$, який задає ймовірність переходу. Для досліджуваних структур отримано його екстремальні значення: $InAs / GaAs$ ($1.6 \cdot 10^{-4}$, $1.3 \cdot 10^{-4}$, $3 \cdot 10^{-5}$), $\beta - HgS / \beta - CdS$ ($1.2 \cdot 10^{-4}$, $1.0 \cdot 10^{-4}$, $2 \cdot 10^{-5}$). За їх різницею 10^{-5} видно, що квадрат матричного

поглинання світла, то функції $f(\lambda), f(\lambda')$ можна замінити рівноважними функціями Фермі:

$$f(\lambda) = \left(e^{\frac{E_\lambda - \mu}{kT}} + 1 \right)^{-1},$$

де μ – хімічний потенціал системи електронів НСКТ.

Дослідимо поглинання світла в області міжпідзонних переходів електронів. Тоді зона провідності складатиметься з ряду мінізон. Матричний елемент електронного переходу з 1s-підзони в 1p-підзону в дипольному наближенні ($\chi a \ll 1$)

елементу, зі зміною $\vec{k}$ змінюється незначно. А це дозволяє нам обмежитись лише першим доданком у рівності:

$$|\vec{J}(\vec{k})|^2 \approx |\vec{J}_0|^2 + \nabla_{\vec{k}} |\vec{J}_0|^2 \cdot \vec{k}.$$

Враховуючи проведений аналіз залежності квадрату матричного елемента $|\vec{J}(\vec{k})|^2$ від хвильового вектора для коефіцієнта міжпідзонного поглинання лінійно поляризованого світла отримаємо:

$$\alpha(\omega) = \frac{2(2\pi e\hbar)^2}{Vm_0^2\omega c\sqrt{\varepsilon_1}} \sum_{m=0, \pm 1} |J_m^z(0)|^2 \sum_{\vec{k}} (f_{1s} - f_{1p, m}) \delta(E_{1p, m}(\vec{k}) - E_{1s}(\vec{k}) - \hbar\omega).$$

Якщо вважати, що 1s-підзона заповнена, а 1p-підзона вільна, то формулу для коефіцієнта поглинання можна спростити до вигляду:

$$\alpha(\omega) = \frac{2(2\pi e\hbar)^2}{m_0^2\omega c\sqrt{\varepsilon_1}} \sum_{m=0, \pm 1} |J_m^z(0)|^2 \rho_m(\omega), \quad (6)$$

де $\rho(\omega)$ – густина станів.

$$\rho_m(\vec{E}) = \frac{1}{8\pi^3} \oint \frac{dS}{|\text{grad}_{\vec{k}} \tilde{E}_m(\vec{k})|}, \quad (7)$$

$$\tilde{E}(\vec{k}) = E_{1p, m}(\vec{k}) - E_{1s}(\vec{k}),$$

dS – елемент ізоенергетичної поверхні $\tilde{E}(\vec{k}) = \text{const}$. Якщо поверхня S задана рівнянням $k_3 = \varepsilon_1(k_1, k_2)$, де $\varepsilon_1(k_1, k_2)$ – функція, яка диференційована в області $D(k_1, k_2)$, то поверхневий інтеграл знаходиться за формулою [14]:

$$\rho(E) = \frac{gV}{8\pi^3} \iint_{D(k_1, k_2)} \frac{dk_1 dk_2 \sqrt{1 + \left(\frac{\partial \varepsilon_1(k_1, k_2)}{\partial k_1} \right)^2 + \left(\frac{\partial \varepsilon_1(k_1, k_2)}{\partial k_2} \right)^2}}{|\text{grad}_{k_{12}} E(k_1, k_2, \varepsilon_1(k_1, k_2))|}. \quad (8)$$

Аналіз інтегралу (8) показує, що густина станів $\rho(E)$ є гладкою функцією енергії. Однак, коли знаменник перетворюється в нуль, то інтеграл має ряд особливостей (сингулярності Ван-Хова). Таким чином можемо отримати детальну інформацію про зонну структуру.

Запропонований підхід до розрахунку електронної зонної структури надгратки можна застосувати для широкого класу НСКТ з напівпровідників, сталі ґраток та діелектричні проникності яких незначно відрізняються. Ця теорія, зокрема, може бути використана як для напівпровідників групи $A_3 B_5$, так і $A_2 B_6$.

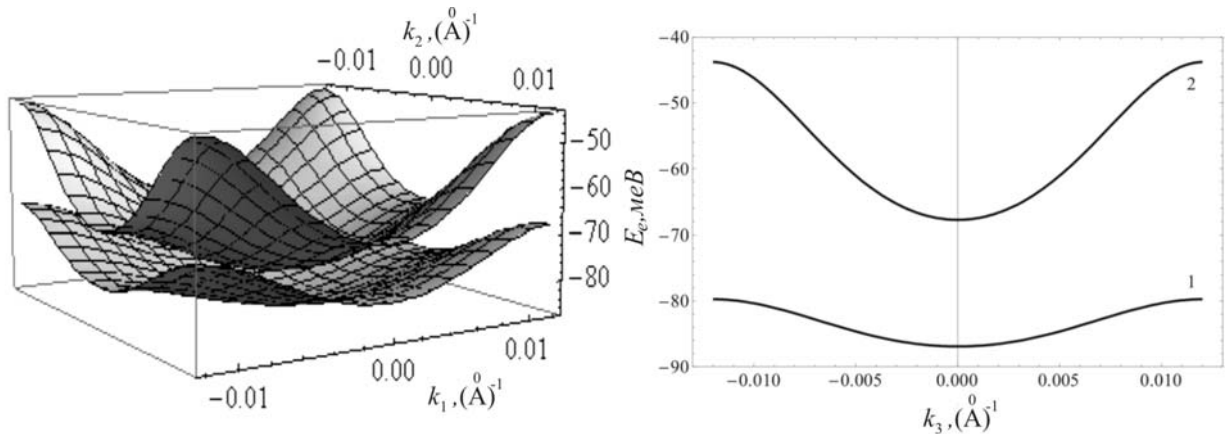


Рисунок 1. Залежність енергії основного s -типу та першого збудженого стану p -типу електрона системи від хвильового вектора $\vec{k}$ (рис. $a - k_3 = 0$, рис. $b - k_1 = k_2 = 0$)

АНАЛІЗ РЕЗУЛЬТАТІВ

На рисунку показано отримані залежності енергій основного та першого збудженого станів електрона НСКТ від хвильового вектора $\vec{k}$ при радіусі квантової точки $R = 60 \text{ \AA}$ та відстані між ними $d = 6 \text{ \AA}$ в надгратці $InAs / GaAs$. Функції $E = E(k_1, k_2, k_3 = \text{const})$ є монотонно зростаючими функціями (1) за умови збільшення $|k_1|, |k_2|$, від центру, де при $k_1, k_2 = 0$ отримуємо мінімум енергії, до краю зони Брілюена. Подібно поводить себе і перший збуджений стан p -типу (2) з квантовими числами $m = \pm 1$, з тією різницею, що отримані поверхні є «перевернутими». Орієнтовані взаємоперпендикулярно, вони, однак, мають рівні ширини. В цьому і полягає особливість p -мінізони: незалежно від значення m , зі зміною k_3 міграція поверхонь $E = E(k_1, k_2, k_3 = 0)$, $E = E(k_1, k_2, k_3 = \pi/a_3)$ відбувається в однакових межах. Проведений аналіз показав, що ширина цієї зони, яка визначається як різниця $|E(\pi/a_1, \pi/a_2, \pi/a_3) - E(0, 0, 0)|$, однакова для різних $m = -1, 0, 1$ при деякому радіусі квантової точки R . З ростом розмірів КТ ширина всіх енергетичних зон монотонно зменшується.

Дослідження також показали, що зі зменшенням періоду ґратки збільшуються ширини всіх енергетичних зон і відбувається їх зсув у низькоенергетичну область. Це пояснюється зменшенням перекриття хвильових функцій електронів, що знаходяться у

Числові розрахунки проводились для напівпровідникової гетеросистеми $InAs / GaAs$ сусідніх КТ. Тому для дослідження вибрано найменшу можливу відстань між КТ, що дорівнює періоду ґратки масивного напівпровідника.

Зафіксувавши таким чином $d = a_g = 6 \text{ \AA}$ відстань між КТ, змінюватимемо розміри самих квантових точок.

Так, густина електронних станів енергетичних підзон в НСКТ $InAs / GaAs$ для різних радіусів КТ представлена на рис. 2, 3.

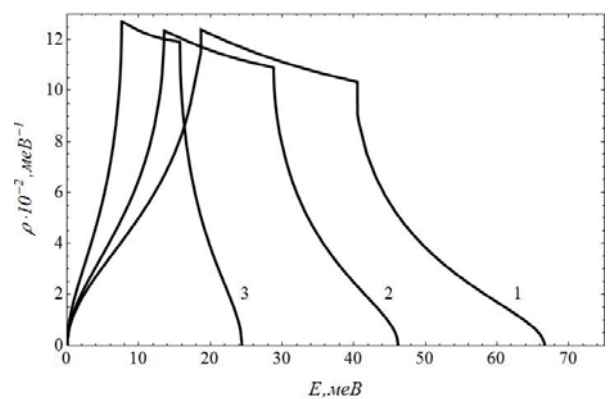


Рисунок 2. Залежність електронної густини станів $1s$ -підзони $\rho(E)$ в НСКТ $InAs / GaAs$ від енергії для різних радіусів КТ: 1 – $R = 48 \text{ \AA}$, 2 – $R = 54 \text{ \AA}$, 3 – $R = 66 \text{ \AA}$.

Криві 1, 2, 3 відповідають функціям $\rho = \rho(E)$ для НСКТ з радіусами квантових точок $R = 48 \text{ \AA}$, $54 \text{ \AA}$, $66 \text{ \AA}$ відповідно. З рисунків видно, що із зменшенням розмірів КТ ширина підзон суттєво зростає з одночасним

- Mo, D.E. Savage, B.S. Swartzentruber [et al.] // *Phys. Rev. Lett.* – 1990. – V. 65, № 8. – P. 1020 – 1023.
- [3] Formation of InAs quantum dot arrays on GaAs (100) by self-organized anisotropic strain engineering of a (In,Ga) As superlattice template / T. Mano, R. Notzel, G.J. Hamhuis [et al.] // *Appl. Phys. Lett.* – 2002. – V. 81, № 9. – P. 1705 – 1707.
- [4] Fabrication of (In,Ga)As quantum-dot chains on GaAs (100) /Z.M. Wang, K. Holmes, Yu.I. Mazur [et al.] // *Appl. Phys. Lett.* – 2004. – V. 84, № 11. – P. 1931 – 1933.
- [5] Direct imaging of self-organized anisotropic strain engineering for improved one-dimensional ordering of (In,Ga) As quantum dot arrays / T. Mano, R. Notzel, G.J. Hamhuis [et al.] // *Journal of applied physics.* – 2004. – V. 95, № 1. – P. 109 – 114.
- [6] Martin R. A Membrane-Based Synthetic Approach Science / R.Martin // *Nanomaterials* – 1994. – V. 266. – P. 1961 – 1966.
- [7] Dense arrays of ordered GaAs nanostructures by selective area growth on substrates patterned by block copolymer lithography / R.R. Li, P.D. Dapkus, M.E. Thompson [et al.] // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – V. 76, № 13. – P. 1689 – 1691.
- [8] Holovatsky V.A. Energy spectrum of electron in superlattice along the elliptic nanowire / V.A. Holovatsky, V.I. Gutsul, O.M. Makhanets // *Rom. Journ. Phys.* – 2007. – V. 52, № 3 – 4. – P. 327 – 335.
- [9] F. T. Vasko, V. V. Mitin Superlattice formed by quantum-dot sheets: Density of states and infrared absorption // *Phys. Rev. B.* – 2012, – V. 85. – P. 235321
- [10] Electron states in spherical quantum dot superlattices - V.I. Boichuk, I.V. Bilynskyi, R.I. Pazyuk // *Actual problems of semiconductor physics. VIII International School-Conference. June 25-28, 2013. Drohobych: Abstract Book. Publishing House "UKRPOL" Ltd., 2013. – p.7*
- [11] В.І. Бойчук, І.В. Білінський, Р.І. Пазюк, І.О. Шаклеїна “Енергетичний спектр зарядів у періодичних системах сферичних квантових точок”, *Фізика і хімія твердого тіла*, т.10, №4 (2009), с.752-756
- [12] Ефремов Н.А. Макроскопические локальные зарядовые состояния в ультрадисперсных средах / Н.А. Ефремов, С.И. Покутний // *ФТТ.* – 1985. – Т. 27, № 1. – С. 48 – 56
- [13] А.С.Давыдов Теория твердого тела – М.: Наука, 1972.
- [14] Фихтенгольц Г.М. Курс дифференциального и интегрального исчисления. (ФИЗМАТЛИТ, Москва, 2001).