

УДК 538.958, 538.915

Оптичні властивості в гетероструктурах з двошаровими квантовими точками у формі витягнутого сфероїда

Бойчук В. І., Гольський В. Б.

hol.wit@gmail.com

Дрогобицький державний педагогічний університет імені Івана Франка, кафедра теоретичної фізики, вул. Стрийська 3, м. Дрогобич, 82100

У двошаровій КТ, яка має форму витягнутого сфероїда гетероструктури $SiO_2/Si/SiO_2$, знайдено дискретні стани електрона. Показано, що на властивості електронного спектру в досліджуваній наносистемі впливає фокусна відстань сфероїда, параметри ξ_1 та ξ_2 . Знайдено вигляд хвильової функції частинки і дипольні моменти переходу між електронними рівнями. Розглянуто вплив на квантові переходи плоско- та циркуляційно поляризованих електромагнітних хвиль. Встановлено правила відбору для дипольних переходів, які мають вигляд аналогічний сферично-симетричній задачі. Проте плоскополяризована хвиля має поширюватись у напрямі перпендикулярному до більшої осі сфероїда, а циркуляційно поляризована – вздовж цієї осі. Обчислено коефіцієнт поглинання в складній сфероїдальній КТ, для якого найбільші значення спостерігають для переходів з однаковим першим квантовим числом.

Вступ

Квантово-розмірне обмеження, що властиве квантовим точкам (КТ) призводить до зміни оптичних властивостей матеріалів. Вплив форми та розмірів нанокристалів на енергетичний спектр дає можливість створити бажані оптичні переходи, що є важливим для оптоелектроніки. На основі міжпідзонних переходів можна реалізувати оптичні пристрої середнього інфрачервоного діапазону. Такого типу переходи інтенсивно досліджуються теоретично та експериментально [1-7]. У подвійних асиметричних тунельно-зв'язаних квантових ямах експериментально отримано спектри поглинання при інтенсивному міжпідзонному збудженні [1]. Наведено температурні залежності величин, які визначають значення коефіцієнта міжпідзонного поглинання. Для КТ $InAs/GaAs$ аналогічні дослідження було зроблено в роботі [2].

Вибір форми відчутно впливає на енергетичний спектр частинок в КТ [8]. У роботі [4] КТ моделювали за допомогою сферичної потенціальної ями. Розглядалися і нанокристали у формі лінзи [5], де обчислено коефіцієнт поглинання з врахування того, що в КТ знаходиться домішка. Еліпсоїдальна форма розглядалась в моделі нескінченно високих стінок [6] та для скінченного розриву зон за допомогою квазісферичної системи координат [7]. Вибір цієї форми пов'язаний з експериментально виявленою відмінністю нанокристалів від сферичної форми [9]. Двошаровість наносистеми обумовлена тим, що при створенні КТ виникають перехідні шари матеріалів нанокристала та матриці. Про експериментальне створення багатошарових структур повідомлялось в роботах [10-11]. Сферичні багатошарові структури вивчені досить детально [12-14], чого

не можна сказати про сфероїдальні. Враховуючи сказане вище, постає задача дослідити багатошарові КТ у формі витягнутого сфероїда. Розвинути теорію для визначення електронного спектру для двошарової еліпсоїдальної КТ довільного ступеня витягнутості. Знайти вигляд хвильових функцій частинки та проаналізувати вплив міжпідзонних переходів на оптичні властивості.

Хвильові функції та енергетичний спектр дискретних станів електрона

Розглядається двошаровий нанокристал з двома межами поділу у вигляді витягнутих сфероїдів (рис. 1). Для запису рівняння Шредінгера здійснено перехід від декартових до витягнутих сфероїдальних координат:

$$\hat{H}\Psi(\xi, \eta, \varphi) = E\Psi(\xi, \eta, \varphi), \quad (1)$$

де $\Psi(\xi, \eta, \varphi)$, E - хвильова функція та енергія квазічастинки, а гамільтоніан частинки в сфероїдально-симетричному полі має вигляд:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla^2 + U(\xi). \quad (2)$$

де

$$U(\xi) = \begin{cases} \infty, & \xi = \xi_1, \xi = \xi_2 \\ 0, & \xi_1 \leq \xi \leq \xi_2 \end{cases} \quad (3)$$

m_e - ефективна маса електрона в нанокристалі, $\xi = \xi_1, \xi = \xi_2$ - рівняння поверхонь внутрішнього і зовнішнього сфероїдів відповідно. Після розділення змінних та розв'язку отриманих диференціальних рівнянь, можна отримати хвильову функцію електрона двошарової КТ у вигляді витягнутого сфероїда:

$$\Psi(\xi, \eta, \varphi) = S_{mn}^{(1)}(c, \eta) \cdot (B_1 R_{mn}^{(1)}(c, \xi) + B_2 R_{mn}^{(2)}(c, \xi)) e^{im\varphi} \quad (4)$$

де

$$S_{mn}^{(1)}(c, \eta) = \sum_{r=0,1}^{\infty} {}'d_r^{mn}(c) P_{m+r}^m(\eta), \quad (5)$$

$$R_{mn}^{(1)}(c, \xi) = \frac{1}{\sum_{r=0,1}^{\infty} {}'d_r^{mn}(c) \frac{(2m+r)!}{r!}} \left(\frac{\xi^2 - 1}{\xi^2} \right)^{m/2} \sum_{r=0,1}^{\infty} {}'d_r^{mn}(c) \frac{(2m+r)!}{r!} j_{m+r}(c\xi), \quad (6)$$

$$R_{mn}^{(2)}(c, \xi) = \frac{1}{\sum_{r=0,1}^{\infty} {}'d_r^{mn}(c) \frac{(2m+r)!}{r!}} \left(\frac{\xi^2 - 1}{\xi^2} \right)^{m/2} \sum_{r=0,1}^{\infty} {}'d_r^{mn}(c) \frac{(2m+r)!}{r!} n_{m+r}(c\xi), \quad (7)$$

$P_{m+r}^m(\eta)$ - поліноми Лежандра, $j_{m+r}(c\xi)$, $n_{m+r}(c\xi)$ - сферичні функції Бесселя та Неймана, а коефіцієнти $d_r^{mn}(c)$ знаходяться з відповідних рекурентних формул [15].

Умова нормування для хвильової функції гетероструктури має наступний вигляд:

$$\frac{d^3}{8} \int_{\xi_1}^{\xi_2} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} (\xi^2 - \eta^2) \left(S_{mn}^{(1)}(c, \eta) \cdot (B_1 R_{mn}^{(1)}(c, \xi) + B_2 R_{mn}^{(2)}(c, \xi)) e^{im\varphi} \right)^2 d\varphi d\eta d\xi = 1, \quad (8)$$

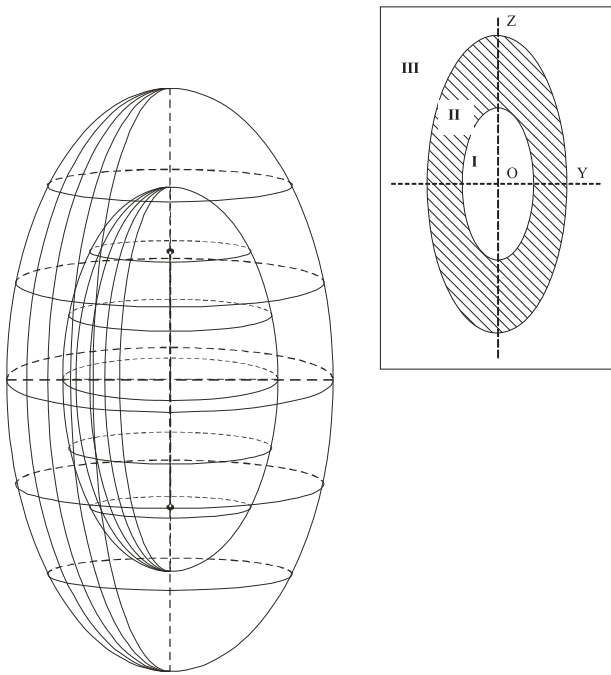


Рис.1. Модель досліджуваного нанокристалу. На вставці - переріз нанокристалу в площині YOZ. Заштриховано область потенціальної ями.

Для знаходження енергетичного спектра квазічастинки у двошаровій квантовій точці сфероїдальної форми в наближенні нескінченно глибокої потенціальної ями потрібно використати наступні умови:

$$\Psi(\xi_1, \eta, \varphi) = 0, \Psi(\xi_2, \eta, \varphi) = 0 \quad (9)$$

З умов (6) одержано систему однорідних рівнянь, яка має нетривіальний розв'язок, тоді коли детермінант рівний нулю:

$$\begin{vmatrix} R_{mn}^{(1)}(c, \xi_1) & R_{mn}^{(2)}(c, \xi_1) \\ R_{mn}^{(1)}(c, \xi_2) & R_{mn}^{(2)}(c, \xi_2) \end{vmatrix} = 0. \quad (10)$$

Рівність (10) - дисперсійне рівняння для частинки в двошаровій КТ у формі витягнутого сфероїда. Розв'язавши його, можна визначити енергію дискретних станів квазічастинки в досліджуваному нанокристалі. Обчислення проводились для структури $SiO_2/Si/SiO_2$. Об'єм КТ обмеженої сфероїдальними поверхнями залежить від фокусної відстані d та параметрів ξ_1 і ξ_2 , що визначають поверхні внутрішнього і зовнішнього сфероїдів. При обчисленні енергії $E_{n_r, n, m}$ розглядалися різні стани з квантовими числами $n_r = 1, 2, \dots$ номер кореня рівняння (10), $n = 0, 1, 2, \dots, m = -n, -n+1, \dots, n$.

На рис.2. наведено залежність енергії електрона в двошаровому нанокристалі при фокусній відстані $d = 54 \text{ \AA}$ та параметру $\xi_1 = 1,1$. Зміна параметру ξ_2 веде до збільшення об'єму та зменшення коефіцієнта витягнутості сфероїда (відношення більшої півосі до меншої). Як видно з рисунка, збільшення ξ_2 веде до монотонного зменшення енергії всіх станів. Крім того різниця між енергіями станів збільшується із зменшенням ξ_2 .

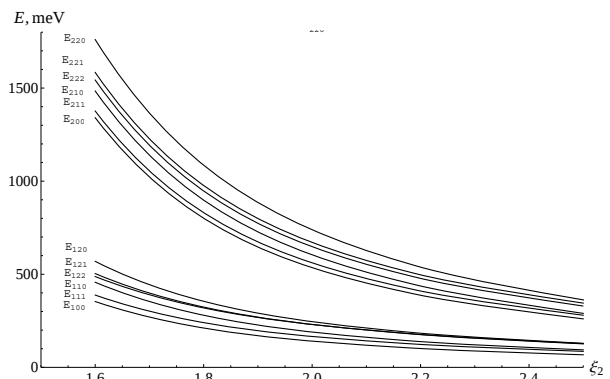


Рис.2. Залежність енергетичних рівнів електрона в двошаровій КТ у формі витягнутого еліпсоїда обертання від величини зовнішнього шару.

Інший генезис енергетичного спектру заряду маємо при зміні параметра ξ_1 , коли фіксовані d та ξ_2 . Збільшення ξ_1 веде до зменшення шару II та анізотропії форми внутрішньої області I нанокристала. Енергія частинки будь-якого із досліджуваних станів зростає, що пояснюється зменшенням об'єму області II. Різниця між енергетичними рівнями із однаковими m збільшується, проте зменшується для станів із різними n . Збільшення фокусної відстані d при фіксованих ξ_1 та ξ_2 спричиняє збільшення об'єму ша-

ру II нанокристалу і призводить до монотонного спадання енергії зв'язаних станів електрона.

Для знаходження точного вигляду хвильової функції частинки в досліджуваній гетероструктурі, виразимо B_1 через B_2

$$B_1 = -\frac{R_{mn}^{(2)}(c, \xi_1)}{R_{mn}^{(1)}(c, \xi_1)} B_2 \quad (11)$$

і підставимо отриманий вираз в умову нормування (8). Отримаємо вираз для невідомого коефіцієнта хвильової функції квазічастинки:

$$B_2 = \sqrt{\frac{8}{d^3 \int_{\xi_1-1}^{\xi_2} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} (\xi^2 - \eta^2) \left(S_{mn}^{(1)}(c, \eta) \cdot \left(-\frac{R_{mn}^{(2)}(c, \xi_1)}{R_{mn}^{(1)}(c, \xi_1)} R_{mn}^{(1)}(c, \xi) + R_{mn}^{(2)}(c, \xi) \right) e^{im\varphi} \right)^2 d\varphi d\eta d\xi}} \quad (12)$$

Використавши вирази (11) та (12), будемо мати явний вигляд хвильової функції.

Квантові переходи та коефіцієнт поглинання

В попередньому параграфі було обчислено електронні енергетичні рівні в двошаровій наногетероструктурі сфероїдальної форми системи $SiO_2/Si/SiO_2$, знайдено вигляд хвильової функції електрона. Це дасть можливість обчислити ймовірність квантових переходів між енергетичними рівнями в досліджуваному нанокристалі. Враховуючи вибрану модуль, переходи можуть відбуватись в об'ємі зовнішнього шару КТ.

Відомо, що у випадку квантових переходів системи $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ елемент $\rho_{12} = \langle 1 | e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}}(\mathbf{e}_{\mathbf{k},\alpha}, \hat{\mathbf{p}}) | 2 \rangle$ визначає ймовірності цих переходів. Він залежить від напрямку поширення хвилі $\mathbf{k}$ та поляризації $\mathbf{e}_{\mathbf{k},\alpha}$. Розглянемо дипольне випромінювання (поглинання) в двошаровій квантовій точці у формі витягнутого сфероїда. Для цього, перейдемо до дипольного наближення в розкладі $e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} = 1 - i\mathbf{k}\mathbf{r} + \dots$, залишимо перший доданок. Далі замінімо матричний елемент від імпульсу на матричний елемент від координати:

$$\rho_{12} = im\omega_{if} \langle 1 | (\mathbf{e}_{\mathbf{k},\alpha} \mathbf{r}) | 2 \rangle, \quad \hbar\omega_{if} = E_f - E_i \quad (13)$$

Нехай поляризація електромагнітної хвилі направлена вздовж осі обертання сфероїда (осі z). Тоді матричний елемент (13) з врахуванням переходу до витягнутих сфероїдальних координат буде мати вигляд:

$$\rho_{12}^z = im\omega_{if} \left\langle 1 \left| \frac{d}{2} \eta \xi \right| 2 \right\rangle \quad (14)$$

Врахувавши в (14) вигляд хвильової функції електрона (4), отримуємо, що у дипольному наближенні квантові переходи можуть відбуватись для станів з однаковим квантовим числом m .

Тобто, для плоскополяризованого світла, що поширюється у напрямку перпендикулярному до

осі z можливі переходи між рівнями 100, 110, 120, 200, 210, 220... чи 111, 121, 211, 221... або 122, 222.

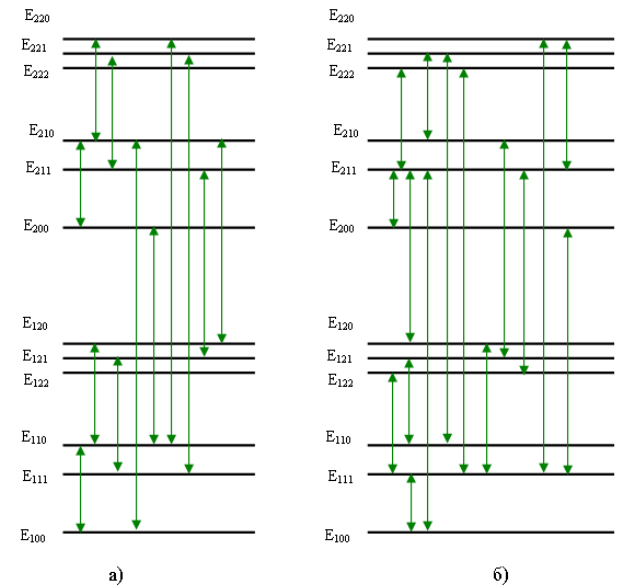


Рис. 3. Схема дозволених дипольних переходів у двошаровій квантовій точці сфероїдальної форми: а) - для плоскополяризованого світла, що поширюється в напрямі перпендикулярному до осі сфероїда; б) - для циркуляційно поляризованого світла, що поширюється вздовж осі сфероїда.

Такий результат є наслідком врахування закону збереження z -ої проекції моменту імпульсу частинки. Проте після інтегрування по змінній η відмінними від нуля матричних елементів стає ще менше. Серед розглядуваних дійсно реальними є такі переходи: $100 \leftrightarrow 110$, $100 \leftrightarrow 210$, $110 \leftrightarrow 120$, $110 \leftrightarrow 200$, $110 \leftrightarrow 220$, $120 \leftrightarrow 220$, $200 \leftrightarrow 210$, $210 \leftrightarrow 220$ та $111 \leftrightarrow 121$, $111 \leftrightarrow 221$, $121 \leftrightarrow 211$, $211 \leftrightarrow 221$ (Рис 3). При $m = 2$, серед розглядуваних енергетичних рівнів, дипольні переходи не бу-

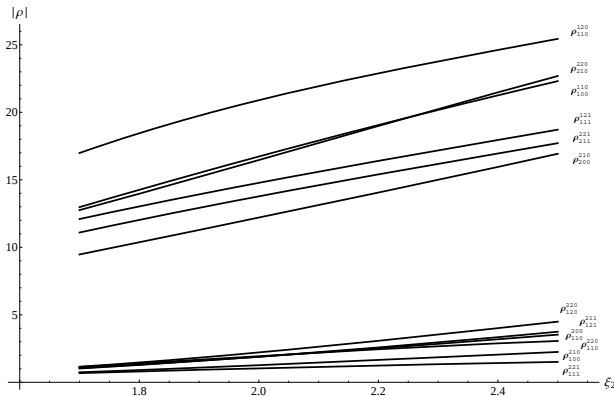


Рис. 4. Залежність дипольного моменту переходу для плоскополяризованого світла від величини зовнішнього шару.

дуть відбуватись. Це пояснюється тим, що врахувавши симетрію структури, для даного напрямку поляризації, правила відбору будуть аналогічні сферично-симетричній структурі. Проте при сфероїдальній симетрії плоскополяризоване світло для цих переходів буде поширюватись тільки перпен-

дикулярно осі z . Тоді правила відбору будуть мати вигляд:

$$n_i = n_f \pm 1, \quad m_i = m_f. \quad (15)$$

На рис. 4 зображено залежність дипольного моменту переходу електрона в досліджуваній наногетеросистемі. Зі збільшенням величини зовнішнього шару квантової точки отримуємо монотонне зростання матричного елемента ρ . Цей результат можна пояснити тим, що збільшення ξ веде до зменшення відстані між розглядуваними рівнями. Найбільші значення матричний елемент (14) приймає для переходу між рівнями $110 \leftrightarrow 120$ (ρ_{110}^{120}), а найменші - $111 \leftrightarrow 221$ (ρ_{111}^{221}).

Замість роздільного дослідження двох інших напрямків вектора поляризації, як і для сферично симетричного випадку, зручно розглянути дві їхні лінійні комбінації $\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y$, що відповідає циркулярно поляризованій електромагнітній хвилі. Для сфероїдально-симетричної задачі, ця хвиля повинна поширюватись вздовж осі z . Тоді матричні елементи дипольного випромінювання для цих напрямків будуть мати вигляд:

$$\rho_{12}^{x+iy} = im\omega_{if} \left\langle 1 \left| \frac{d}{2} \sqrt{(1-\eta^2)(\xi^2-1)} (\cos(\varphi) + i \sin(\varphi)) \right| 2 \right\rangle \quad (16)$$

$$\rho_{12}^{x-iy} = im\omega_{if} \left\langle 1 \left| \frac{d}{2} \sqrt{(1-\eta^2)(\xi^2-1)} (\cos(\varphi) - i \sin(\varphi)) \right| 2 \right\rangle \quad (17)$$

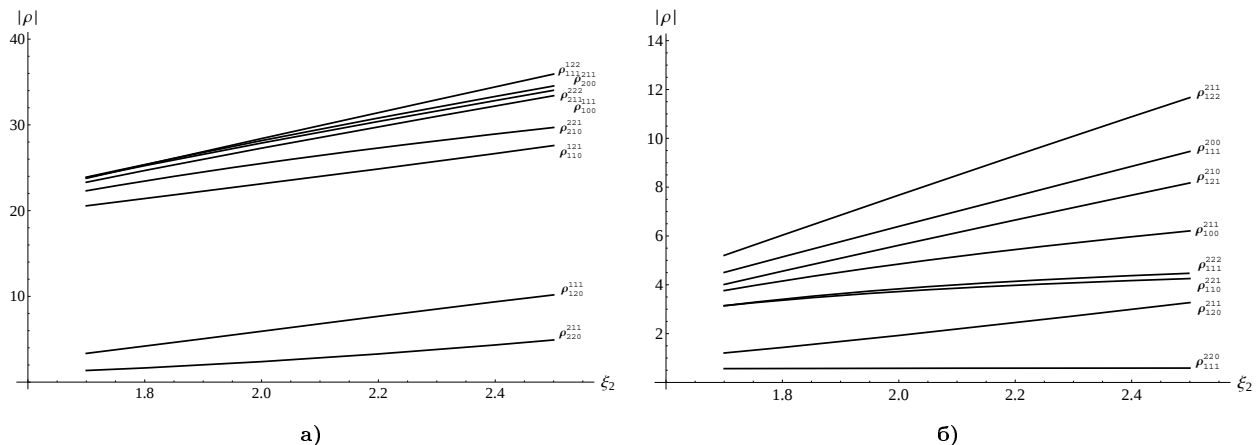


Рис. 5. Залежність дипольного моменту переходу для циркулярно поляризованої електромагнітної хвилі від величини зовнішнього шару для енергетичних рівнів: а) з однаковим першим квантовим числом; б) різним першим квантовим числом.

$$n_i = n_f \pm 1, \quad m_i = m_f \pm 1. \quad (18)$$

Для такої фізичної ситуації енергетичні переходи, в досліджуваній гетероструктурі, у дипольному наближенні можуть відбуватись між станами: $100 \leftrightarrow 111$, $100 \leftrightarrow 211$, $110 \leftrightarrow 121$, $110 \leftrightarrow 221$, $111 \leftrightarrow 122$, $111 \leftrightarrow 222$, $111 \leftrightarrow 120$, $111 \leftrightarrow 200$, $111 \leftrightarrow 220$, $120 \leftrightarrow 211$, $121 \leftrightarrow 210$, $122 \leftrightarrow 211$, $200 \leftrightarrow 211$, $210 \leftrightarrow 221$, $211 \leftrightarrow 220$ та $211 \leftrightarrow 222$ (Рис. 3). Тобто правила відбору можна записати

так: Залежності дипольного моменту переходу, коли хвиля поширюється вздовж осі обертання сфероїда, від величини зовнішнього шару КТ наведено на рис. 5. Як і для плоскополяризованого світла, дипольний момент переходу має більші значення для енергетичних рівнів з однаковим першим квантовим числом, ніж з різним. А його монотонне зростання можна пояснити зменшенням енергії переходу для відповідних рівнів, із збільшенням величини зовнішнього шару КТ. Коефіцієнт поглинання світла, що зумовлений міжрівневими

переходами визначено на основі формули:

$$\alpha(\omega) = \omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0 \varepsilon}} \frac{\sigma |\rho_{1,2}|^2 \hbar \Gamma_{1,2}}{(E_2 - E_1 - \hbar\omega)^2 + (\hbar \Gamma_{1,2})^2} \quad (19)$$

де ω - частота падаючої хвилі, ε_0 - електрична стала, μ_0 - магнітна стала, ε - діелектрична проникність КЯ, $\hbar \Gamma_{1,2}$ - енергія релаксації, що зумовлена електрон-фононою взаємодією та іншими факторами розсіяння. Густина зарядів у КТ вибрано на основі припущення, що у КТ може знаходитись лише 1 електрон, тому $\sigma = 1/V_{KT}$.

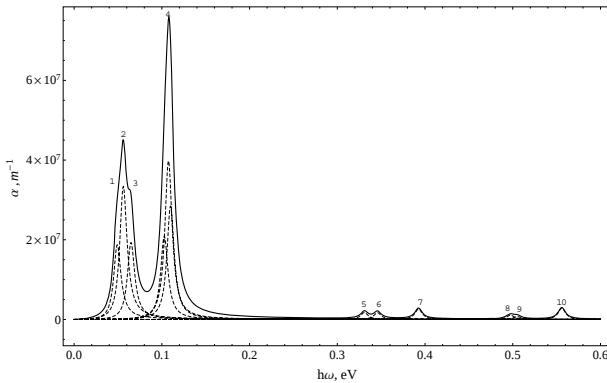


Рис.6.

Для плоскополяризованої електромагнітної хвилі, яка поширюється перпендикулярно до осі сферіада, в залежності коефіцієнта поглинання від енергії буде спостерігатись 10 піків при 12 можливих дипольних переходах (рис. 6). Найбільше значення $\alpha(\omega)$ приймає при енергії 0,108 еВ. Цей максимум {пік 4} утворений із трьох переходів $200 \leftrightarrow 210$, $210 \leftrightarrow 220$ та $211 \leftrightarrow 221$. Наступний за величиною максимум {2} має два плеча {1 та 3},

що відповідає наступним переходам: $110 \leftrightarrow 120$ {2}, $100 \leftrightarrow 110$ {1} та $111 \leftrightarrow 121$ {3}. Інші піки відповідають за переходи між енергетичними рівнями з різним першим квантовим числом і знаходяться в області більших енергій. При збільшенні об'єму КЯ, максимальні значення коефіцієнта поглинання зміщуються в область менших енергій і при $\xi = 5$ зливаються в один пік.

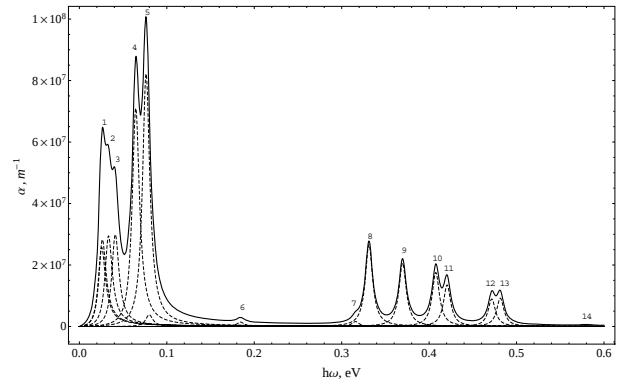


Рис.7.

На рис. 7. зображено графік коефіцієнта поглинання для циркуляційно поляризованої електромагнітної хвилі, де спостерігається 14 піків при 16 можливих енергетичних переходах. Найбільше значення спостерігається при енергії 0,077 еВ {5} для переходу $211 \leftrightarrow 222$. Наступний за величиною пік {4} припадає на перехід $111 \leftrightarrow 122$. Вершина {1} утворюється з двох переходів - $100 \leftrightarrow 111$ та $200 \leftrightarrow 211$, {2} відповідає за - $210 \leftrightarrow 221$ і {3} за $110 \leftrightarrow 121$. Як і для плоско поляризованої електромагнітної хвилі, збільшення ξ призводить до злиття піків та їхній зсув в область менших енергій.

Бібліографія

- [1] Зерова В.Л., Капаев В.В., Воробьев Л.Е., и др. Межподзонаное поглощение света в селективно легированных асимметричных двойных туннельно-связанных квантовых ямах // ФТП. — 2004. — **38**, № 12. — С. 1455–1462.
- [2] Воробьев Л.Е., Паневин В.Ю., Федосов Н.К., и др. Оптические явления в гетероструктурах InAs / GaAs с легированными квантовыми точками и искусственными молекулами // ФТП. — 2005. — **39**, № 1. — С. 59–62.
- [3] Зерова В.Л., Зегря Г.Г., Воробьев Л.Е. Электрон-электронное рассеяние в ступенчатых квантовых ямах // ФТП. — 2004. — **38**, № 9. — С. 1090–1096.
- [4] Yakar Y., Cakir B., and Ozmen A. Calculation of linear and nonlinear optical absorption coefficients of a spherical quantum dot with parabolic potential // Optics Communications. — 2010. — **283**, № 9. — P. 1795–1800.
- [5] Vahdani M.R.K., and Rezaei G. Linear and nonlinear optical properties of a hydrogenic donor in lens-shaped quantum dots // Physics Letters A. — 2009. — **373**, № 34. — P. 3079–3084.
- [6] Cantele G., Ninno D., and Iadonisi G. Shape effects on the one- and two-electron ground state in ellipsoidal quantum dots // Phys. Rev. B. — 2002. — **64**, № 12. — P. 125325–125334.
- [7] Rezaei G., Vahdani M.R.K., and Vaseghi B. Nonlinear optical properties of a hydrogenic impurity in an ellipsoidal finite potential quantum dot // Current Applied Physics. — 2011. — **11**, № 2. — P. 176–181.
- [8] Бойчук В.І., Гольський В.Б. Вплив форми нанокристалла на енергетичний спектр частинки в тунельно-з'язаних квантових точках // Фізика і хімія твердого тіла. — 2007. — **8**, № 1. — С. 82–87.
- [9] Blokland J.H., Bozkurt M., Ulloa J.M., and other. Ellipsoidal InAs quantum dots observed by cross-sectional scanning tunneling microscopy // Applied Physics Letters. — 2009. — **94**, № 2. — P. 023107–023115.

- [10] Schooss D., Mews A., Eychmuller A., Weller H. Quantum-dot quantum well CdS/HgS/CdS: Theory and experiment // Phys. Rev. B. — 1994. — **49**, № 24. — P. 17072–17078.
- [11] Mews A., Kadavanich A.V., Banin U., Alivisatos A.P. Structural and spectroscopic investigations of CdS/HgS/CdS quantum-dot quantum wells // Phys. Rev. B. — 1996. — **53**, № 20. — P. 13242–13245.
- [12] Ткач Н.В. Головацкий В.А. Квазистационарные состояния электрона в сферической наногетеросистеме $\beta - \text{HgS}/\beta - \text{CdS}/\beta - \text{HgS}$ // ФТТ. — 1999. — **41**, № 11. — С. 2081–2083.
- [13] Бойчук В.І., Кубай Р.Ю., Білінський І.В. Вплив сил зображень на енергетичний спектр електрона в складному сферичному мікрокристалі $\text{CdS}/\beta - \text{HgS}/\text{H}_2\text{O}$ // Журн. фіз. дослідж. — 1999. — **3**, № 2. — С. 187–191.
- [14] Boichuk V.I., Bilynskii I.V., Kubai R.Yu. Energy Spectrum of a Charged Particle Near the Surface of a Complex Spherical Heterostructure in View of Noninertial Polarization // Ukr. J. Phys. — 2000. — **45**, № 2. — P. 236–241.
- [15] Le-Wei Li, Xiao-Kang Kang, Mook-Seng Leong. *Spheroidal Wave Functions in Electromagnetic Theory*. — New York. — 2002. — 296 p.