

01;06

Электронные свойства открытых полупроводниковых квантовых точек

© Н.В. Ткач, Ю.А. Сети, Г.Г. Зегря

Черновицкий государственный университет, Черновцы, Украина
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
E-mail: zegrya@theory.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 14 августа 2006 г.

На основе S -матрицы рассеяния исследуется энергетический спектр и время жизни электронных состояний в открытой полупроводниковой квантовой точке. Показано, что время жизни электронных состояний очень чувствительно к изменению радиуса квантовой точки и толщины внешнего покрытия квантовой точки. При изменении толщины покрывающего слоя от одного до пяти монослоев время жизни электрона увеличивается в $20 \div 60$ раз.

PACS: 87.644.-t, 73.63.Kv

Введение. Современная технология позволяет изготавливать разные виды полупроводниковых квантовых точек (КТ) как изолированных [1], так и в полупроводниковой матрице другого материала [2]. Квантовые точки, выращенные в окружении другого материала, достаточно эффективно используются в опто- и наноэлектронике [3]. На основе таких гетероструктур с КТ созданы лазеры, излучающие в инфракрасной области спектра [4]. Такие приборы обладают улучшенными характеристиками по сравнению с лазерами на квантовых ямах.

В настоящее время установлено, что изолированные полупроводниковые КТ находят новое применение в биологии и медицине [5–7]. В первую очередь, изолированные КТ используются как новые инструментальные средства для получения изображения и диагностики (идентификации) живых клеток в естественных условиях. Как показано в ряде работ [5–6], изолированные КТ обладают лучшими свойствами, чем флуоресцентные хромофоры, которые в настоящее время используются в биологии и в медицине, а именно: а) более высоким квантовым выходом излучения, б) оптической активностью в длинноволновой области спектра и в) значительно большей фотохимической стабильностью.

Оптические свойства КТ существенно зависят от их размеров. При увеличении радиуса КТ от 50 до 200 Å длина волны излучения увеличивается от 400 до 10³ nm [8]. В отличие от других флуоресцентных систем полупроводниковые КТ имеют пороговую энергию возбуждения, поэтому их можно возбуждать и этой, и большей энергией. Таким образом, пороговая энергия не должна совпадать с энергией излучательного перехода внутри КТ. Это позволяет возбуждать на одной длине волны многие КТ, каждая из которых излучает на своей собственной длине волны. Таким образом, уникальные спектральные свойства КТ являются весьма перспективными для исследований в биологии и медицине.

Недавно в работе [9] был предложен новый метод диагностики аминокислот с помощью открытых полупроводниковых КТ. Речь идет о влиянии взаимодействия аминокислот на энергетический спектр КТ, следовательно, и на спектр излучательной рекомбинации электронов и дырок. Аминокислоты каждого типа по-разному взаимодействуют с КТ и тем самым по-разному влияют на энергетический спектр электронов и дырок. Следовательно, по спектру излучательной рекомбинации можно идентифицировать тип аминокислоты. Однако спектр электронов и дырок открытых КТ существенно зависит от таких параметров, как радиус КТ r_0 и толщины покрывающего (пассивирующего) слоя Δ . При этом спектр является квазистационарным, а время жизни состояний существенно зависит от r_0 и от Δ .

В настоящей работе, в рамках метода S -матрицы рассеяния, исследуется энергетический спектр и время жизни электронов в открытой сферической квантовой точке с целью усовершенствования метода диагностики биологических систем.

Энергетический спектр и время жизни электронов в открытой КТ. Рассмотрим сферическую КТ радиусом r_0 , покрытую тонким слоем другого материала толщиной Δ (рис. 1). Глубина квантовых ям для электронов и дырок равна U_e и U_h соответственно; ширина запрещенной зоны материала КТ равна E_g . Энергетический спектр электронов (e) и дырок (h) может быть найден из решения уравнения Шредингера

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}). \quad (1)$$

Здесь \hat{H} — гамильтониан любой из этих квазичастиц в системе. Из-за зависимости массы от радиуса гамильтониан квазичастицы может быть

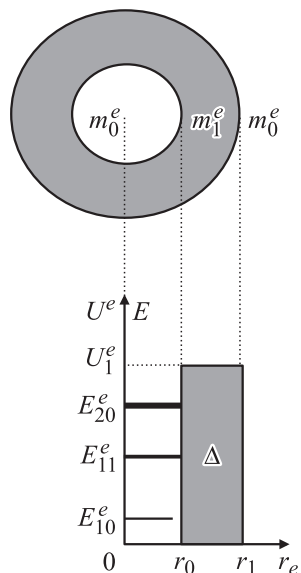


Рис. 1. Геометрическая и энергетическая схемы простой открытой сферической КТ.

представлен в виде

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

где $U(r)$ — потенциальная энергия квазичастицы в гетероструктуре. В сферической системе координат с началом в центре КТ электрон характеризуется известной эффективной массой

$$m(r) = \begin{cases} m_0, & r < r_0, \quad r_1 < r < \infty, \\ m_1, & r_0 \leq r \leq r_1 = r_0 + d. \end{cases} \quad (3)$$

Потенциальная энергия может быть представлена в виде

$$U(r) = \begin{cases} U_{0,2} = 0, & r < r_0, \quad r_1 < r < \infty, \\ U_1, & r_0 \leq r \leq r_1. \end{cases} \quad (4)$$

Здесь мы считаем, что размеры r_0 и Δ таковы, что для решения задачи можно воспользоваться методом эффективной массы.

Учитывая сферическую симметрию системы, ищем решение уравнения (1) в виде

$$\Psi(\mathbf{r}) = R_l(r)Y_{lm}(\theta, \varphi). \quad (5)$$

Здесь $R_l(r)$ — радиальная часть волновой функции, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ — сферическая функция, $l = 0, 1, 2, \dots$; $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$. Уравнения для радиальной части волновой функции имеют вид

$$\frac{d^2 R_l^i}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{dR_l^i}{dr} + \left[K_i^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] R_l^i = 0 \quad (i = 0, 1, 2), \quad (6)$$

где

$$K_i^2 = \frac{2m_i}{\hbar^2} (E - U_i) = \begin{cases} k_i^2, & i = 0, 2, \\ -\chi_i^2, & i = 1. \end{cases} \quad (7)$$

В рамках постановки задачи уровни энергии электрона являются нестационарными. Поэтому уравнение (6) будем решать, используя метод S -матрицы рассеяния [10]. Согласно этому методу решение уравнения (6) можно искать в виде

$$R_{kl}(r) = \begin{cases} R_l^{(0)}(kr) = kA_l^{(0)}[h_l^-(kr) + h_l^+(kr)], & r < r_0, \\ R_l^{(1)}(i\chi r) = i\chi A_l^{(1)}[h_l^-(i\chi r) - S_l^{(1)}h_l^+(i\chi r)], & r_0 \leq r \leq r_1, \\ R_l^{(2)}(kr) = kA_l^{(2)}[h_l^-(kr) - S_l(k)h_l^+(kr)], & r_1 < r < \infty. \end{cases} \quad (8)$$

Здесь h_l^- и h_l^+ — функции Неймана и Бесселя мнимого аргумента, S_l — матрица рассеяния. Коэффициент $A_l^{(2)} = 1/\sqrt{2\pi}$ найден из условия нормировки радиальной функции

$$\int_0^\infty R_{kl}^*(r)R_{k'l}(r)r^2 dr = \delta(k - k'). \quad (9)$$

Условие (9) учитывает отличную от нуля вероятность ухода квазичастицы из внутренней области КТ на бесконечное расстояние от центра системы.

Коэффициенты $A_l^{(0)}$, $A_l^{(1)}$, $S_l^{(1)}$ и вид S_l -матрицы находятся из условия непрерывности волновых функций и плотности потока вероятности на обеих границах ($r = r_0$ и $r = r_1$) между средами

$$\left. \begin{aligned} R_l^{(0)}(kr_0) &= R_l^{(1)}(i\chi r_0); & R_l^{(1)}(i\chi r_1) &= R_l^{(2)}(kr_1) \\ \frac{1}{m_0} \frac{dR_l^{(0)}(kr)}{dr} \Big|_{r=r_0} &= \frac{1}{m_1} \frac{dR_l^{(1)}(i\chi r)}{dr} \Big|_{r=r_0}; & \frac{1}{m_1} \frac{dR_l^{(1)}(i\chi r)}{dr} \Big|_{r=r_1} &= \frac{1}{m_0} \frac{dR_l^{(2)}(kr)}{dr} \Big|_{r=r_1} \end{aligned} \right\}. \quad (10)$$

Подставляя (8) в (9), получаем

$$A_l^{(0)} = -\frac{ikm_0m_1}{\sqrt{2\pi}} \chi v_l(i\chi r_0) v(kr_1) \left(\left(\alpha_l \frac{d}{dr_1} - \beta_l + \gamma_l \frac{d}{dr_1} - \lambda_l \right) h_l^+(kr_1) \right)^{-1}, \quad (11)$$

$$A_l^{(1)} = -\frac{km_1}{\sqrt{2\pi}} v_l(kr_1) \frac{(\xi_l - i\chi m_0(h_l^-(kr_0) + h_l^+(kr_0)) \frac{d}{dr_0}) h_l^+(i\chi r_0)}{\left((\alpha_l \frac{d}{dr_1} - \beta_l + \gamma_l \frac{d}{dr_1} - \lambda_l) h_l^+(kr_1) \right)}, \quad (12)$$

$$S_l^{(1)} = -\frac{(i\chi m_0(h_l^-(kr_0) + h_l^+(kr_0)) \frac{d}{dr_0} - \xi_l) h_l^-(i\chi r_0)}{(i\chi m_0(h_l^-(kr_0) + h_l^+(kr_0)) \frac{d}{dr_0} - \xi_l) h_l^+(i\chi r_0)}, \quad (13)$$

где

$$B_l(kr_1) = \left(\sqrt{2\pi} \left(\alpha_l \frac{d}{dr_1} - \beta_l + \gamma_l \frac{d}{dr_1} - \lambda_l \right) h_l^+(kr_1) \right)^{-1},$$

$$\alpha_l = km_1 \xi_l (h_l^-(i\chi r_1) h_l^+(i\chi r_0) - h_l^-(i\chi r_0) h_l^+(i\chi r_1)),$$

$$\beta_l = i\chi^2 m_0^2 (h_l^-(kr_0) + h_l^+(kr_0))$$

$$\times \left(\frac{dh_l^-(i\chi r_0)}{dr_0} \frac{dh_l^+(i\chi r_1)}{dr_1} - \frac{dh_l^-(i\chi r_1)}{dr_1} \frac{dh_l^+(i\chi r_0)}{dr_0} \right),$$

$$\gamma_l = i\chi m_0^2 m_1 (h_l^-(kr_0) + h_l^+(kr_0))$$

$$\times \left(h_l^+(i\chi r_1) \frac{dh_l^-(i\chi r_0)}{dr_0} - h_l^-(i\chi r_1) \frac{dh_l^+(i\chi r_0)}{dr_0} \right),$$

$$\lambda_l = \frac{\xi_l}{km_1} \left(h_l^-(i\chi r_0) \frac{dh_l^+(i\chi r_1)}{dr_1} - h_l^+(i\chi r_0) \frac{dh_l^-(i\chi r_1)}{dr_1} \right),$$

$$\xi_l = km_1 \left(\frac{dh_l^-(kr_0)}{dr_0} + \frac{dh_l^+(kr_0)}{dr_0} \right),$$

$$v_l(Kr) = h_l^+(Kr) \frac{dh_l^-(Kr)}{dr} - h_l^-(Kr) \frac{dh_l^+(Kr)}{dr}.$$

Аналогично выражение для S_l -матрицы имеет вид

$$S_l = \frac{(\alpha_l \frac{d}{dr_1} + \beta_l - \gamma_l \frac{d}{dr_1} - \lambda_l) h_l^-(kr_1)}{(\alpha_l \frac{d}{dr_1} - \beta_l + \gamma_l \frac{d}{dr_1} + \lambda_l) h_l^+(kr_1)}. \quad (14)$$

Таким образом, полученные выражения (8), а также (11)–(14) однозначно определяют радиальные волновые функции $R_{kl}(r)$. Далее, действительные и мнимые части полюсов S_l -матрицы рассеяния (14) определяют резонансные значения энергии (E_{nl}) и полуширин (Γ_{nl}) квазистационарного состояния квазичастиц в открытой КТ. Соответственно время жизни квазистационарных состояний определяется соотношением

$$\tau_{nl} = \frac{\hbar}{\Gamma_{nl}}. \quad (15)$$

Наконец заметим, что при условиях $m_0 = m_1 = m$, $\chi\Delta \gg 1$, при $l = 0$ из S_l -матрицы получается следующее выражение для резонансных значений энергии (\tilde{E}_{n0}) и полуширин ($\tilde{\Gamma}_{n0}$) полос сферически-симметричных квазистационарных состояний

$$\tilde{E}_{n0} = \frac{\hbar^2 k_n^2}{2m}; \quad \tilde{\Gamma}_{n0} = 16\tilde{E}_{n0} e^{-2\chi_n \Delta} \frac{\chi_n^3 k_n}{(\chi_n^2 + k_n^2)^2 (1 + \chi_n r_0)}, \quad (16)$$

где значения k_n и χ_n определяются уравнением

$$k_n \operatorname{ctg} k_n r_0 + \chi_n = 0. \quad (17)$$

Формулы (16)–(17), с точностью до обозначений, совпадают с известными результатами [10], полученными для энергетического спектра сферически-симметричных состояний квазичастицы массой m в открытой сферической КТ.

Эволюция параметров энергетического спектра электронов в открытой КТ InAs/GaAs/InAs в зависимости от радиуса ямы и ширины барьера. Полученные в предыдущем параграфе аналитические формулы позволяют рассчитать и детально изучить эволюцию

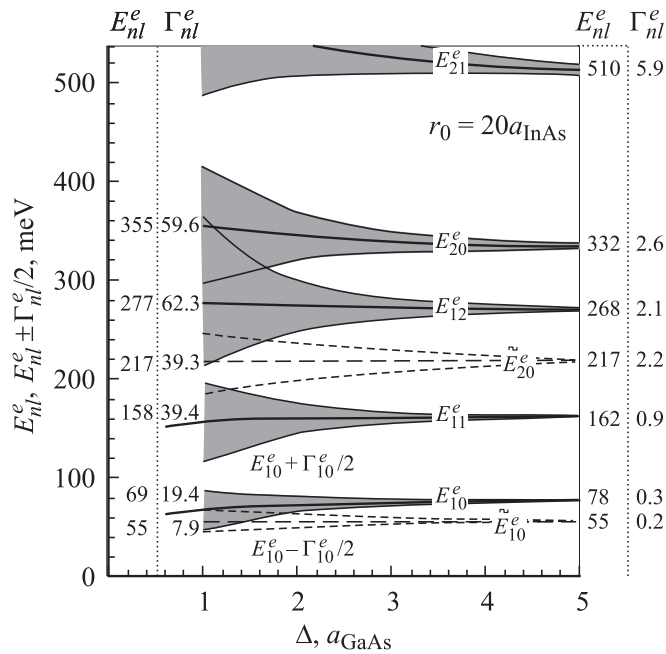


Рис. 2. Зависимость энергий E_{nl}^e и $E_{nl}^e \pm \Gamma_{nl}^e/2$ от толщины Δ при фиксированных значениях r_0 .

параметров (резонансные уровни E_{nl} и полуширины Γ_{nl}) квазистационарных электронных спектров в открытой сферической квантовой точке InAs/GaAs/InAs в зависимости от радиуса квантовой ямы и ширины барьера. Расчет выполнялся для системы с такими физическими параметрами:

$$m_{\text{InAs}}^e = 0.023; \quad m_{\text{GaAs}}^e = 0.063; \quad U_e = 535 \text{ meV};$$

$$a_{\text{GaAs}} = 5.65 \text{ \AA}; \quad a_{\text{InAs}} = 6.06 \text{ \AA}.$$

Результаты расчетов зависимости E_{nl}^e и $E_{nl}^e \pm \Gamma_{nl}^e$ от толщины (Δ) шара-барьера при различных значениях радиуса r_0 КТ приведены на рис. 2. Из этого рисунка видно, что с увеличением r_0 не только резонансные энергии E_{nl}^e , но и все полосы квазистационарных состояний

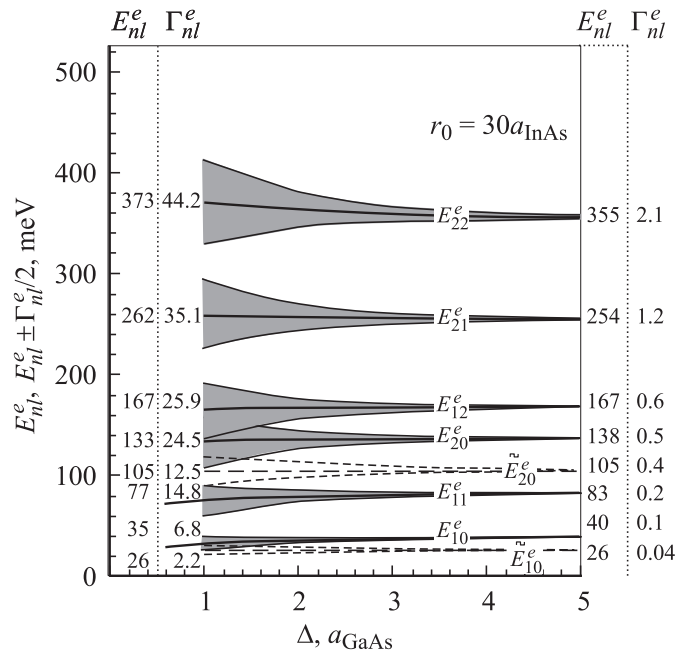


Рис. 2 (продолжение).

сдвигаются в область меньших энергий так, что при фиксированном значении Δ полуширины Γ_{nl} уменьшаются. При любых значениях r_0 с увеличением толщины Δ все полосы сужаются и при $\Delta \rightarrow \infty$ они превращаются в энергетические уровни стационарного спектра закрытой КТ.

С увеличением толщины барьера Δ в области, где выполняется условие ($\Gamma_{nl} \ll E_{nl}$) квазистационарности состояний, величины низкоэнергетических резонансных уровней E_{nl}^e плавно увеличиваются, а высокоэнергетических — уменьшаются. Любопытно заметить, что в области столь малых значений Δ , при которых условие квазистационарности уже не выполняется, уменьшение Δ приводит к резкому уменьшению значений E_{nl}^e (рис. 2).

Сравнение точных E_{n0}^e и приближенных \tilde{E}_{n0}^e значений резонансных энергий (рассчитанных с усредненной эффективной массой

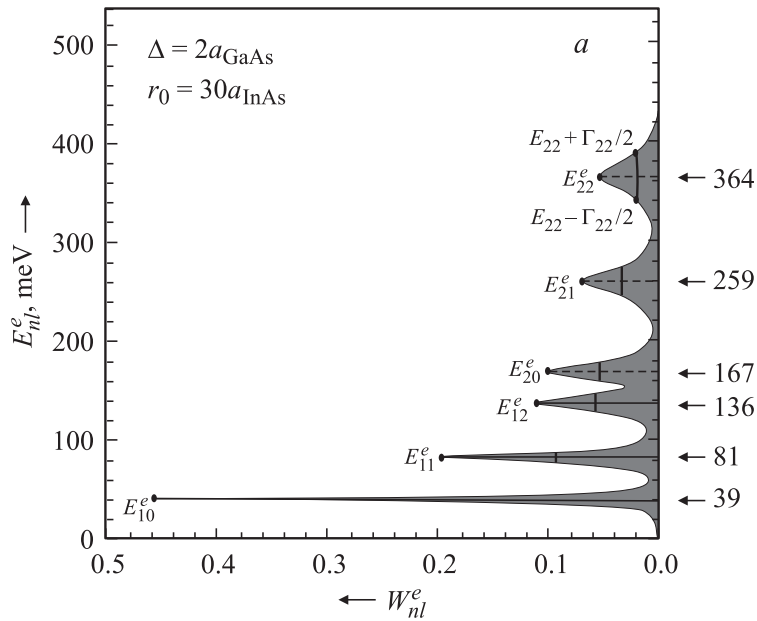


Рис. 3. Зависимости вероятностей W_{nl}^e от энергии E^e (а), резонансных энергий E_{nl}^e и резонансных энергий с полуширинами $E_{nl}^e \pm \Gamma_{nl}^e/2$ (b) от толщины Δ при $r_0 = 30a_{\text{GaAs}}$.

$m_e = \frac{1}{2}(m_{\text{InAs}}^e + m_{\text{GaAs}}^e)$ показывает, что качественные особенности их зависимостей от Δ и r_0 одинаковы, хотя количественно $\tilde{E}_{n0}^e < E_{n0}^e$. Поскольку относительная разница эффективных масс электрона в InAs и GaAs большая, то и погрешности точных и приближенных значений резонансных энергий значительные ($\sim 30 \div 40\%$).

Как видно из рис. 3, по сравнению с резонансными энергиями E_{nl}^e полуширины Γ_{nl}^e (а значит и времена жизни τ_{nl}^e) значительно более чувствительны к изменению r_0 и особенно к величине Δ . Действительно, даже для легкого электрона, быстро туннелирующего через барьер, изменение Δ от одного до пяти монослоев приводит к уменьшению полуширин всех полос в $20 \div 60$ раз.

Полуширины полос сферически-симметрических состояний электрона, определенные приближенной формулой (16), отличаются от точных в два-три раза. Что касается зависимости времени жизни

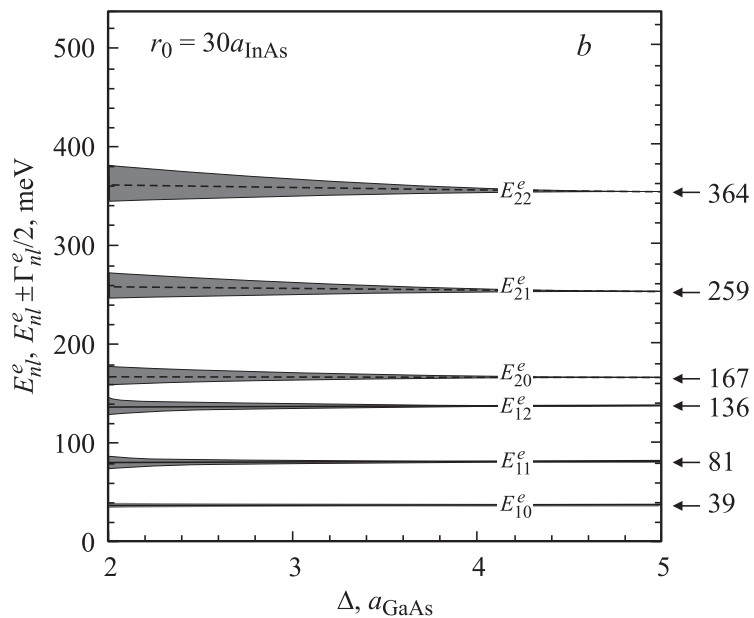


Рис. 3 (продолжение).

τ_{nl}^e квазичастицы от толщины барьера Δ , то она экспоненциальная с практически линейным по Δ показателем (так же как и в приближенной форме (16)).

Наконец отметим, что рассчитанные зависимости вероятностей нахождения электрона в квантовой точке

$$W_{nl}^e(E) = \int_0^{r_0+\Delta} |R_{nl}^e(E)|^2 r^2 dr \quad (18)$$

в квазистационарных состояниях (n, l) имеют форму лоренцевых кривых с положением максимумов в шкале энергий, совпадающих со значениями резонансных энергий E_{nl}^e , определяемыми $\text{Re}S_l(E_n)$ и полуширинами кривых, совпадающими с Γ_{nl}^e , определяемыми $\text{Im}S_l(E_n)$ (рис. 3, а).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты № 04-02-16786, 04-07-90148, 05-02-16679) и Программы поддержки научных школ, грант НШ-5730.2006.2.

Список литературы

- [1] *Biological Nanostructures and Applications of Nanostructures in Biology Electrical, Mechanical, and Optical Properties* / Edited by Michael A. Strosio and Mitra Dutta. 2004. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York.
- [2] Евтихийев В.П., Кудряшов И.В., Котельников Е.Ю., Токранов В.Е., Тутков А.Н., Тарасов И.С., Алфёров Ж.И. // ФТП. 1998. Т. 32 (12). С. 1482.
- [3] Асрян Л.В., Суриц Р.А. // ФТП. 2004. Т. 38. В. 1. С. 3–25.
- [4] Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Максимов М.В., Табатадзе И.Г., Копьев П.С. // ФТП. 1994. Т. 28. В. 8. С. 1483.
- [5] Warren C.W. Chan and Shuming Nie // Science. 1998. V. 281. P. 2016–2018.
- [6] Michalet X., Pihaud F.F., Bentolila L.A., Tsay J.M., Doose S., Li J.J., Sundaresan G., Wu A.M., Gambhir S.S., Weiss S. // Science. 2005. V. 307. P. 538–544.
- [7] Xiaohu Gao, Yuanyuan Cui, Richard M. Levenson, Leland W.K. Chung, Shuming Nie // Nature Biotechnology. 2004. V. 22. N 8. P. 969–974.
- [8] Алфёров Ж.И., Васильев А.И., Иванов С.В., Копьев П.С., Леденцов Н.Н., Луценко М.Е., Мельцер Б.Я., Устинов В.М. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. В. 19. С. 1803.
- [9] Зегря Г.Г. // Письма в ЖТФ. 2006. Т. 32. В. 4. С. 75–81.
- [10] Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М. Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике. М.: Наука, 1971.