

01;06

Безызлучательный резонансный перенос энергии между двумя полупроводниковыми квантовыми точками

© Д.М. Самосват, О.П. Чикалова-Лузина, А.С. Степашкина,
Г.Г. Зегря

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
E-mail: samosvat@yandex.ru

Поступило в Редакцию 20 августа 2012 г.

Рассматривается безызлучательный резонансный перенос энергии между двумя полупроводниковыми квантовыми точками (донором и акцептором) с учетом непараболичности закона дисперсии электронов, а также механизм переноса энергии вследствие кулоновского взаимодействия между носителями заряда донора и акцептора. Показано, что при учете непараболичности закона дисперсии для электронов в матричный элемент переноса энергии входит дополнительное слагаемое, что приводит к увеличению вероятности резонансного переноса энергии.

Безызлучательный резонансный перенос энергии между квантовыми системами давно известен и эффективно используется в биологии и медицине с применением как органических красителей и флуоресцирующих биомолекул, так и полупроводниковых квантовых точек [1]. Однако механизм переноса энергии между квантовыми точками и квантовой точкой и биомолекулой недостаточно изучен.

Первое квантово-механическое описание процесса переноса энергии было разработано Ферстером для молекулярных систем [2]. Недавно безызлучательный перенос энергии был рассмотрен в системе полупроводниковых квантовых точек с использованием различных подходов.

В данной работе рассмотрен безызлучательный перенос энергии между квантовыми точками на основе полупроводников A_3B_5 . Наиболее точное описание спектра и волновых функций узкозонных полупроводников A_3B_5 дает модель Кейна, учитывающая непараболичность закона дисперсии для электронов.

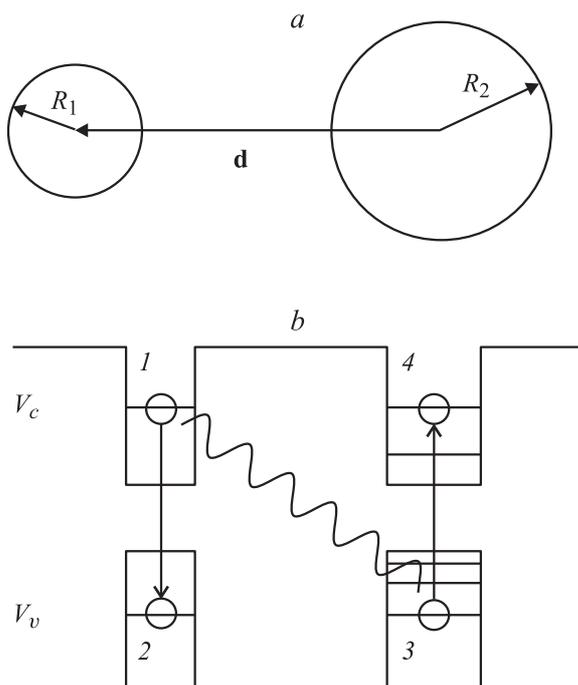


Рис. 1. *a* — схема квантовых точек донора с радиусом R_1 и акцептора с радиусом R_2 . *b* — схема процесса безызлучательного резонансного переноса энергии.

Мы рассматриваем систему двух квантовых точек, изготовленных из одного материала и расположенных на конечном расстоянии друг от друга (рис. 1, *a*). Предполагается, что квантовые точки имеют конечные потенциальные барьеры для электронов (V_c^d и V_c^a) и конечные потенциальные барьеры для дырок (V_v^d и V_v^a). Индексы *d* и *a* соответствуют донору и акцептору соответственно. В результате кулоновского взаимодействия электронов донора и акцептора происходит безызлучательный резонансный перенос энергии. В этом процессе возбужденный электрон (1 на рис. 1, *b*) в квантовой точке-доноре рекомбинирует с дыркой (2 на рис. 1, *b*), при этом энергия возбуждения передается электрону валентной зоны акцептора и в квантовой точке-акцепторе

возникает электрон-дырочная пара (3 и 4 на рис. 1, *b*). Условием безызлучательного переноса энергии является существование в доноре и акцепторе энергетических состояний с равными энергиями переходов, что следует из закона сохранения энергии.

Для изучения механизма резонансного переноса энергии между двумя квантовыми точками необходимо найти волновые функции носителей заряда. В этой работе волновые функции определяются в рамках трехзонной модели Кейна. Волновые функции носителей могут быть записаны как

$$\psi = \psi_s |s\rangle + \psi |p\rangle, \quad (1)$$

где $|s\rangle$ и $|p\rangle$ – блоховские волновые функции s - и p -типа. Функции s -типа описывают состояние в зоне проводимости, p -типа — валентной зоны. Функции ψ_s и ψ являются огибающими волновыми функциями. Уравнения Кейна для огибающих функций приведены в работе [3]. Решения уравнений Кейна в сферической системе координат были получены в работе [3].

Для вычисления вероятности безызлучательного переноса энергии между двумя квантовыми точками необходимо найти матричный элемент кулоновского взаимодействия электронов донора и акцептора для перехода системы из начального состояния в конечное. В начальном состоянии в доноре имеется электрон-дырочная пара, а электрон акцептора находится в основном состоянии. В конечном состоянии системы электрон-дырочная пара локализована в акцепторе, а электрон донора — в основном состоянии. Матричный элемент кулоновского взаимодействия, т. е. матричный элемент переноса энергии, может быть записан в следующем виде:

$$M_{if} = \int \int_{e^2} d^3 r_1 d^3 r_2 \psi_{cD}(r_1) \psi_{hD}^*(r_1) \frac{e^2}{\epsilon |\mathbf{d} + r_1 - r_2|} \psi_{cA}^*(r_2) \psi_{hA}(r_2). \quad (2)$$

Здесь r_1 и r_2 — координаты электрона в доноре и акцепторе соответственно; $\psi_{cD}(r_1)$ — волновые функции электрона в доноре и $\psi_{hD}(r_1)$ — волновые функции дырок (аналогично для акцептора), \mathbf{d} — вектор, проведенный из центра акцептора к центру донора. Будем вычислять матричный элемент (2), используя Фурье-представление кулоновского взаимодействия; при этом интегрирование по координате

донора и координате акцептора разделилось. В результате получаем

$$M_{if} = \frac{4\pi e^2}{\varepsilon} \int \frac{d^3 q}{(2\pi)^3} \exp(iqd) \frac{1}{q^2} I_D(q) I_A^*(q).$$

$$I_D = \int d^3 r_1 \exp(iqr_1) \psi_{cD}(r_1) \psi_{hD}^*(r_1), \quad (3)$$

$$I_A = \int d^3 r_2 \exp(iqr_2) \psi_{cA}(r_2) \psi_{hA}^*(r_2).$$

Интеграл $I_D(q)$ приобретает вид

$$I_D(q) = \int d^3 r_1 \langle p | \psi_{hD}^*(r_1) \exp(iqr_1) (\psi_{cSD}(r_1) |s\rangle + \psi_{cD}(r_1) |p\rangle) \rangle \equiv I_{D1} + I_{D2}. \quad (4)$$

Чтобы вычислить этот интеграл, нам необходимо разделить интегрирование по быстро осциллирующей блоховской составляющей и интегрирование по медленно меняющейся огибающей волновой функции. Считаем, что плавная огибающая волновой функции медленно меняется на масштабах одной элементарной ячейки. Далее воспользуемся длинноволновым приближением $qa \ll 1$ (a — постоянная решетки полупроводника) и разложением $\exp(iqr_{a1})$ в ряд Тейлора, ограничиваясь первыми двумя членами ряда. В результате I_{D1} приобретает вид

$$I_{D1} = i \frac{P}{E_a} \int d^3 r_1 (q \psi_{hD}^*(r_1) \psi_{cSD}(r_1) \exp(iqr_1)), \quad (5)$$

где мы воспользовались соотношением

$$\langle s | z | Z \rangle = \frac{P}{E_g}. \quad (6)$$

Здесь Z — блоховская функция валентной зоны, которая преобразуется как соответствующая координата, $P = \hbar\gamma$ — параметр Кейна, который связан с матричным элементом оператора импульса между состояниями зоны проводимости и валентной зоны. Здесь γ — кейновский матричный элемент, имеющий размерность скорости. Второе слагаемое в интеграле (4) также не равно нулю. Легко показать, что $I_{D2} \ll I_{D1}$ на больших расстояниях, и поэтому мы пренебрегаем этим вкладом. Подставим волновые функции электронов и дырок в выражение для I_{D1}

и I_{A1} и соответственно в выражение для матричного элемента. В данном случае существуют два матричных элемента, отвечающие различным поляризациям волновых функций тяжелой дырки: для матричного элемента $M_{if}^{(1)}$ берем функцию $\psi_{h1}(r)$, а для матричного элемента $M_{if}^{(2)}$ берем функцию $\psi_{hz}(r)$. Эти функции определены в работе [3]. Соответственно каждый из этих матричных элементов дает свои правила отбора. Для матричного элемента $M_{if}^{(1)}$ получаем следующие правила отбора:

$$\begin{cases} m_{cD} = m_{hD}, \\ l_1 + j_{cD} + j_{hD} \text{ — четное,} \\ |l_1 - j_{cD}| \leq j_{hD} \leq l_1 + j_{cD}. \end{cases} \quad (7)$$

Аналогичные правила отбора получаются и для акцептора и поэтому здесь не приводятся. Здесь l_1 и l_2 — моменты, появляющиеся из разложения плоской волны по сферическим функциям. Интегралы I_{D1} и I_{A1} могут быть вычислены только по объему донора и акцептора соответственно, так как волновые функции тяжелых дырок быстро убывают под барьером.

Рассмотрим теперь матричный элемент со второй функцией тяжелой дырки. Для данного матричного элемента со второй поляризацией тяжелой дырки получим следующие правила отбора:

$$\begin{cases} m_{eD} = m_{hD}, \\ l_1 + j_{cD} + j_{hD} \text{ — нечетное,} \\ |l_1 - j_{cD}| \leq j_{hD} \pm 1 \leq l_1 + j_{cD}. \\ \text{Кроме того, } j_{hD} \geq 1. \end{cases} \quad (8)$$

Аналогичные правила отбора для акцептора. Ниже опустим явный вид матричных элементов $M_{if}^{(1)}$ и $M_{if}^{(2)}$ ввиду их громоздкости. Вероятность безызлучательного переноса энергии рассчитывается согласно золотому правилу Ферми и может быть записана в следующем виде [4]

$$W_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{if}|^2 \rho, \quad (9)$$

где ρ — плотность конечных состояний. Мы считаем, что уровни энергии донора и акцептора находятся в точном резонансе. Полуширина уровня определяется временем жизни носителей заряда на этом

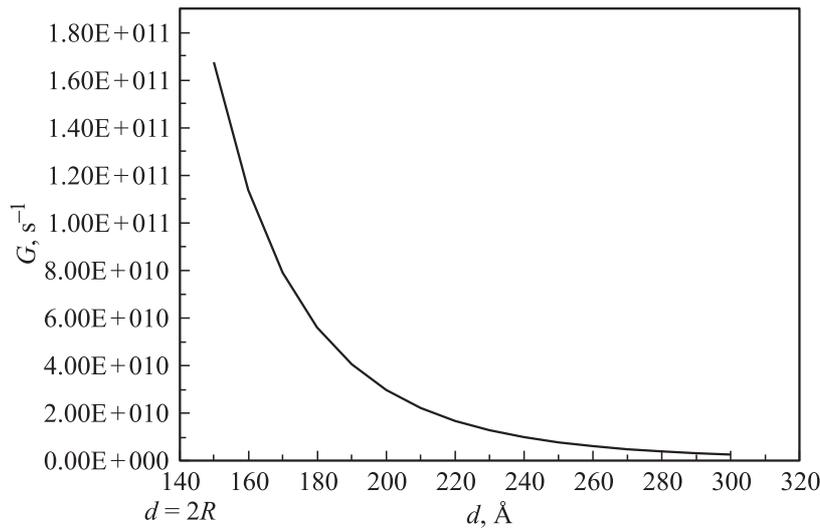


Рис. 2. Зависимость вероятности безызлучательного резонансного переноса энергии от расстояния между квантовыми точками.

уровне τ_i . Если пренебречь расстройкой от положения резонанса, плотность конечных состояний в максимуме будет иметь вид [5]

$$\rho = \frac{1}{\pi\Gamma}. \quad (10)$$

Если учитывать релаксацию электрон-дырочной пары с учетом взаимодействия с фононами, время жизни электрона на уровне можно считать равным $\tau_1 = 10^{-11}$ s. Примем для наших расчетов значения параметров равными: $R_D = R_A = 7$ nm, $d = 15$ nm, $V_c = V_v = 0.17$ eV, $E_g = 1$ eV, $m_c = 0.05 m_0$, $m_h = 0.5 m_0$. Тогда для основного состояния электрона и дырки в доноре с учетом первой функции тяжелой дырки получено $W_{if}^{(1)} = 1.67 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Зависимость вероятности переноса энергии от расстояния между квантовыми точками показана на рис. 2. На рисунке отмечено расстояние, отвечающее двойному радиусу квантовой точки, т.е. контактному расстоянию между донором и акцептором. Поскольку тяжелые дырки имеют большую массу, их волновую функцию можно считать в основном локализованной в

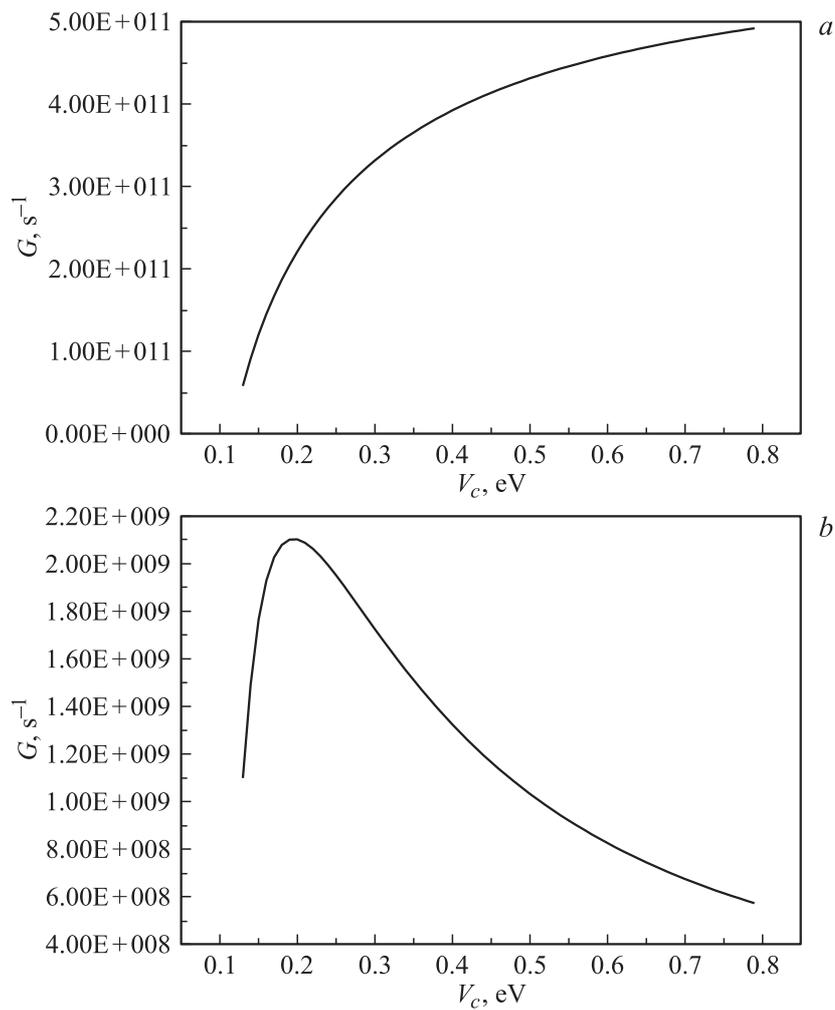


Рис. 3. Зависимость вероятности безызлучательного резонансного переноса энергии от высоты барьера для электронов, показан квантовый переход: *a* — с $n_h = 1$, $n_e = 1$, $j_h = 1$ и $m_h = 1$; *b* — с $n_h = 2$, $n_e = 1$, $j_h = 1$ и $m_h = 1$.

области квантовой точки. Поэтому основная зависимость от высот барьеров определяется барьером для электронов. График зависимости резонансного переноса энергии от высоты барьера для электронов показан на рис. 3, *a*. Видно, что при увеличении высоты барьера скорость резонансного переноса энергии монотонно растет. На рис. 3, *b* показан такой же график для перехода в акцепторе с различными главными квантовыми числами. При какой-то величине барьера скорость достигает максимума, а потом спадает за счет того, что становится слабым интеграл перекрытия между функциями электронов и дырок. Таким образом, в работе в рамках модели Кейна получено выражение для вероятности безызлучательного переноса энергии, учитывающее конечную ширину уровней возбужденных состояний донора и акцептора, и проанализирована зависимость вероятности переноса от расстояния между квантовыми точками и высоты барьеров для электронов и дырок в доноре и акцепторе.

Работа выполнена при частичной поддержке грантов РФФИ № 11-02-00573, НШ-НШ-2901.2012 и программы президиума РАН № 27.

Список литературы

- [1] *Franso V.F., Chaniotakis N.* // *Semiconductors Quantum Dots in Chemical Sensors and Biosensors.* 2009. V. 9. P. 7266–7286.
- [2] *Forster Th.* // *Ann. Phys.* 1948. V. 2. P. 55.
- [3] *Самосват Д.М., Зегря Г.Г.* // *ЖЭТФ.* 2007. Т. 131. В. 6. С. 1090–1106.
- [4] *Борн М.* *Атомная физика.* М.: Мир, 1967. 493 с.
- [5] *Базь А.И., Зельдович А.Б., Переломов А.М.* *Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике.* М.: Наука, 1966. 544 с.