

01;07;08

Роль обменного взаимодействия в безызлучательном переносе энергии между полупроводниковыми квантовыми точками

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

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет
„ЛЭТИ“ им. В.И. Ульянова (Ленина) (СПбГЭТУ)
E-mail: o_chikalova@mail.ru

Поступило в Редакцию 23 сентября 2013 г.

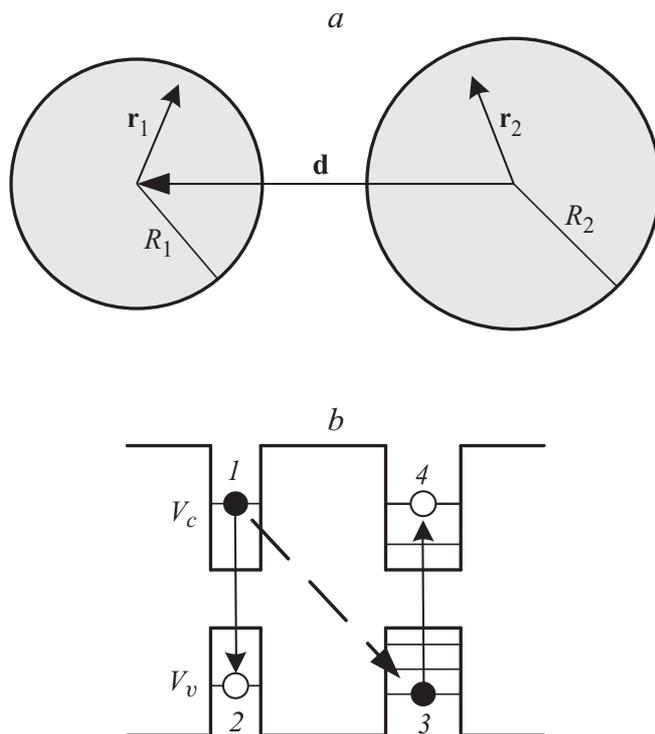
Выполнен анализ вклада обменного взаимодействия в вероятность безызлучательного переноса энергии между двумя полупроводниковыми квантовыми точками на основе соединений A_3B_5 с использованием кейновской модели зонной структуры. Показано, что зависимость обменного вклада от расстояния между центрами донора и акцептора энергии имеет степенной характер при расстояниях, близких к контактному, экспоненциальный характер принимает с увеличением расстояния. Численный расчет показал, что обменный вклад сравним с вкладом диполь-квадрупольного взаимодействия квантовых точек и на 1–2 порядка меньше вклада диполь-дипольного взаимодействия на близких расстояниях.

В настоящее время методы, основанные на явлении безызлучательного переноса энергии между пространственно-разделенными полупроводниковыми квантовыми точками, органическими красителями и флуоресцирующими биомолекулами, находят широкое применение в биологических и медицинских экспериментах [1]. При безызлучательном переносе энергии электронное возбуждение донора энергии приводит к электронному возбуждению акцептора энергии в результате одноактного процесса в отличие от излучательного переноса, который включает в себя излучение кванта света донором и последующее поглощение его акцептором энергии. Первое квантово-механическое описание резонансного безызлучательного переноса энергии было развито Ферстером (Förster) для молекулярных систем [2]. В нем предполагалось, что

перенос энергии происходит преимущественно в результате диполь-дипольного взаимодействия молекул. Затем теория была дополнена Декстером (Dexter) включением диполь-квадрольного и обменного взаимодействий донора и акцептора энергии [3]. Существование в доноре и акцепторе уровней с равными энергиями переходов необходимо для того, чтобы был возможен резонансный перенос энергии. Если в случае диполь-дипольного взаимодействия вероятность переноса энергии определяется дипольными моментами соответствующих переходов, то для переноса энергии в результате обменного взаимодействия требуется только пространственное перекрытие волновых функций электронов донора и акцептора. Вследствие этого обменное взаимодействие допускает перенос энергии для всех разрешенных и запрещенных переходов в доноре и акцепторе. Он становится существенным при малых расстояниях между донором и акцептором, а также в случае дипольно-запрещенных переходов в акцепторе, и единственно возможным для интеркомбинационных переходов в акцепторе, запрещенных спиновыми правилами отбора.

Теоретический анализ переноса энергии между двумя полупроводниковыми квантовыми точками был выполнен в последние годы с использованием различных подходов [4–7]. Однако в этих работах не включен в рассмотрение обменный механизм переноса энергии. В данной работе нами выполнен анализ вклада обменного взаимодействия в вероятность переноса энергии между двумя квантовыми точками на основе соединений A_3B_5 с использованием трехзонной модели Кейна [8], наиболее адекватно описывающей электронную структуру узкозонных полупроводников. Вклад прямого кулоновского взаимодействия в вероятность переноса энергии между квантовыми точками A_3B_5 был рассмотрен нами ранее также в рамках трехзонной модели Кейна [9]. Учет вырождения валентной зоны в этой модели позволил получить в работе [9] вклады в вероятность переноса энергии, дополнительные к тем, которые были получены в модели простой зонной структуры [6,7]. Сопоставление результатов работы [9] с результатами, полученными в данной работе, показало, что при малых расстояниях обменный вклад существенен и должен приниматься во внимание.

В данной работе рассмотрена система двух полупроводниковых квантовых точек, расположенных на конечном расстоянии d друг от друга (см. рисунок, a). Предполагается, что квантовые точки изготовлены из одного и того же соединения A_3B_5 и окружены концентричным слоем



a — схема квантовых точек донора с радиусом R_1 и акцептора с радиусом R_2 ; \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 — радиус-векторы электрона в доноре и акцепторе; *b* — схема процесса безызлучательного резонансного переноса энергии.

другого соединения A_3B_5 , создающим потенциальные барьеры конечной высоты для электронов (V_{cD} и V_{cA}) и для дырок (V_{vD} и V_{vA}). Индексы *D* и *A* соответствуют квантовой точке — донору энергии и квантовой точке — акцептору энергии. Перенос энергии происходит в результате кулоновского взаимодействия электронов донора и акцептора (см. рисунок, *b*). В этом процессе возбужденный электрон донора рекомбинирует с дыркой и энергия возбуждения передается электрону валентной зоны акцептора, который переходит в возбужденное состояние.

Вероятность переноса энергии в первом порядке теории возмущений определяется формулой

$$W_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{if}|^2 \rho. \quad (1)$$

Здесь ρ — плотность конечных состояний; матричный элемент кулоновского взаимодействия для перехода системы из начального состояния в конечное M_{if} представляется выражением

$$M_{if} = \sum \int d^3 r_1 d^3 r_2 \psi_f^*(\xi_1, \xi_2) \frac{e^2}{\varepsilon |\mathbf{d} + \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_i(\xi_1, \xi_2), \quad (2)$$

где ε — статическая диэлектрическая проницаемость, \mathbf{d} — вектор, направленный от центра акцептора к центру донора; антисимметризованные волновые функции начального и конечного состояний рассматриваемой системы имеют вид:

$$\begin{aligned} \psi_i(\xi_1, \xi_2) = & \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\psi_{cD}(\mathbf{r}_1) \chi_{cD}(\sigma_1) \psi_{hA}(\mathbf{r}_2) \chi_{hA}(\sigma_2) \right. \\ & \left. - \psi_{cD}(\mathbf{r}_2) \chi_{cD}(\sigma_2) \psi_{hA}(\mathbf{r}_1) \chi_{hA}(\sigma_1) \right), \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \psi_f(\xi_1, \xi_2) = & \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\psi_{hD}(\mathbf{r}_1) \chi_{hD}(\sigma_1) \psi_{cA}(\mathbf{r}_2) \chi_{cA}(\sigma_2) \right. \\ & \left. - \psi_{hD}(\mathbf{r}_2) \chi_{hD}(\sigma_2) \psi_{cA}(\mathbf{r}_1) \chi_{cA}(\sigma_1) \right). \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 — радиус-векторы электронов в доноре и акцепторе, отсчитанные от центров соответствующих квантовых точек, $\xi = (\mathbf{r}, \sigma)$; $\psi_{cD}(\mathbf{r})$ и $\psi_{hD}(\mathbf{r})$ — волновые функции электрона и дырки в доноре (аналогично для акцептора), $\chi(\sigma)$ — спиновые волновые функции. Подстановка волновых функций (3) и (4) в матричный элемент (2) приводит его к виду

$$M_{if} = M_c - M_{ex}, \quad (5)$$

где σ — спиновая переменная, M_c — матричный элемент прямого кулоновского взаимодействия и M_{ex} — матричный элемент обменного взаимодействия, равный

$$\begin{aligned} M_{ex} = & \int d^3 r_1 d^3 r_2 \psi_{cD}(\mathbf{r}_1) \psi_{cA}^*(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{\varepsilon |\mathbf{d} + \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{hD}^*(\mathbf{r}_2) \psi_{hA}(\mathbf{r}_2), \\ & \sum \chi_{hD}^*(\sigma_2) \chi_{cA}^*(\sigma_1) \chi_{cD}(\sigma_1) \chi_{hA}(\sigma_2). \end{aligned} \quad (6)$$

Выражение (6) определяет следующие правила отбора: M_{ex} не равен нулю, если $\chi_{cD} = \chi_{cA}$ и $\chi_{hD} = \chi_{hA}$, при этом не является необходимым, чтобы $\chi_{cD} = \chi_{hD}$ и $\chi_{cA} = \chi_{hA}$ — волновые функции в доноре и акцепторе — изменялись одновременно. Игнорируя функции χ в интеграле (6), можно видеть, что он представляет электростатическое взаимодействие двух электронных облаков $Q_c(r_2) = e\psi_{cD}(\mathbf{r}_2)\psi_{cA}^*(\mathbf{r}_2)$ и $Q_h(r_1) = e\psi_{hD}^*(\mathbf{r}_1)\psi_{hA}(\mathbf{r}_1)$.

В модели Кейна волновые функции электронов и дырок записываются как

$$\psi = \psi_s |s\rangle + \Psi |p\rangle, \quad (7)$$

где $|s\rangle$ и $|p\rangle$ — блоховские функции s - и p -типа, описывающие состояния в зоне проводимости и валентной зоне соответственно; ψ_s и Ψ — огибающие волновые функции, которые являются решением уравнений Кейна. В работе [10] выполнено решение уравнений Кейна в сферической системе координат и найдены выражение для волновой функции электронов, включающей подмешивание p -состояний, и выражения для двух волновых функций тяжелых дырок ψ_{h1} и ψ_{h2} , которые не содержат компоненты ψ_s и имеют различную поляризацию как для области квантовой точки, так и под барьером.

В данном рассмотрении вклада обменного взаимодействия в перенос энергии мы ограничились вычислением матричного элемента M_{ex} с волновой функцией тяжелых дырок $\Psi_{h1} |p\rangle$ и членом $\psi_s |s\rangle$ волновой функции электронов, найденных в [10]. Учет вкладов второй волновой функции дырок $\Psi_{h2} |p\rangle$ и подмешивания p -состояний к волновой функции электронов приведет к увеличению вероятности переноса энергии; таким образом, здесь получена оценка снизу обменного вклада в вероятность переноса энергии. Тогда, рассматривая в (6) только координатную часть и обозначая функцию ψ_s для донора и акцептора как ψ_{cSD} и ψ_{cSA} , матричный элемент M_{ex} можно записать как

$$M_{ex} = \int d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 \psi_{cSD}(\mathbf{r}_1) \psi_{cSA}^*(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{\varepsilon |\mathbf{d} + \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{h1D}^*(\mathbf{r}_2) \psi_{h1A}(\mathbf{r}_2). \quad (8)$$

Вычисление M_{ex} было выполнено для низколежащих энергетических состояний со значениями проекций полного углового момента на ось z $m_{cD} = m_{cA} = 0$ и $m_{hD} = m_{hA} = \pm 1$. Предполагалось, что квантовые точки донор и акцептор имеют один и тот же радиус R и что расстояние между ними $(d - 2R)$ мало по сравнению с R . Полученное выражение

для M_{ex} здесь не приводится ввиду его громоздкости. Выделяя в этом выражении члены, зависящие от расстояния между донором и акцептором, можно получить

$$M_{ex} \sim d^{-2} \exp[-(\kappa_c + \kappa_h)(d - 2R)], \quad (9)$$

где κ_c и κ_h — обратные длины туннелирования электронов и дырок соответственно. Тогда, согласно формуле (1), практически важная характеристика — зависимость вероятности переноса энергии от расстояния между донором и акцептором — имеет вид

$$W_{i \rightarrow f} \sim d^{-4} \exp[-2(\kappa_c + \kappa_h)(d - 2R)]. \quad (10)$$

Из этого выражения следует, что при расстояниях d , близких к контактному, поведение матричного элемента определяется слабой степенной зависимостью, с увеличением d определяющим множителем становится экспоненциальной. Численный расчет обменного вклада в вероятности переноса энергии для радиуса квантовых точек $R = 7$ nm и расстояний между ними $d = 15$ nm дает значение 10^{10} s^{-1} .

Список литературы

- [1] Frasco V.F., Chaniotakis N. // *Sensors*. 2009. V. 9. P. 7266–7286.
- [2] Förster Th. // *Ann. Phys.* 1948. V. 2. P. 55–75.
- [3] Dexter D.L. // *J. Chem. Phys.* 1953. V. 21. P. 836–850.
- [4] Allan G., Delerue C. // *Phys. Rev. B*. 2007. V. 75. P. 195 311-(1–8).
- [5] Curutchet C., Franceschetti A., Scholes D. // *J. Phys. Chem. C*. 2008. V. 112. N 35. P. 13 336–13 341.
- [6] Baer R., Rabani R. // *J. Chem. Phys.* 2008. V. 128. N 18. P. 184 710–184 721.
- [7] Kruchinin S.Yu., Fedorov A.V., Baranov A.V., Perova T.S., Berwick K. // *Phys. Rev. B*. 2008. V. 78. P. 125 311-(1–13).
- [8] Kane E.O. // *J. Phys. Chem. Solids*. 1957. V. 1. P. 249–261.
- [9] Самосват Д.М., Чикалова-Лузина О.П., Степашикина А.С., Зегря Г.Г. // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39. В. 1. С. 39–46. [Samosvat D.M., Chikalova-Luzina O.P., Stapashkina A.S., Zegrya G.G. // *Technical Physics Letter*. 2013. V. 39. P. 74.]
- [10] Самосват Д.М., Зегря Г.Г. // *ЖЭТФ*. 2007. Т. 131. В. 6. С. 1090–1106. [Samosvat D.M., Zegrya G.G. // *JETP*. 2007. V. 104. P. 951.]