

ЕНЕРГЕТИЧНИЙ СПЕКТР ЕЛЕКТРОНА У СФЕРИЧНІЙ КВАНТОВІЙ ТОЧЦІ З ОДНІЄЮ ТА ДВОМА ВОДНЕПОДІБНИМИ ДОМІШКАМИ

У рамках моделі безмежно глибокої потенціальної ями методом ефективних мас за допомогою розкладу хвильової функції електрона за повною системою точних хвильових функцій квазічастинки в сферичній потенціальній ямі розраховано енергії основного та декількох збуджених станів квазічастинки в квантовій точці (КТ) з однією чи двома донорними домішками. Отримано залежність енергій електрона від положення донорної домішки в КТ. Досліджено розподіл густини ймовірності знаходження квазічастинки в наносистемі в основному та збуджених станах.

Ключові слова: квантова точка, донорна домішка, енергетичний спектр, хвильова функція.

В рамках модели бесконечно глубокой потенциальной ямы методом эффективных масс с помощью разложения волновой функции электрона по полной системе точных волновых функций квазичастицы в сферической потенциальной яме рассчитано энергии основного и нескольких возбужденных состояний квазичастицы в квантовой точке (КТ) с одной или двумя донорными примесями. Получена зависимость энергий электрона от положения донорной примеси в КТ. Исследовано распределение плотности вероятности нахождения квазичастицы в наносистеме в основном и возбужденных состояниях.

Ключевые слова: квантовая точка, донорная примесь, энергетический спектр, волновая функция.

Within the model of an infinitely deep potential well by the effective masses approximation by expanding the electron wave function of the complete system of the exact wave functions of a quasiparticle in a spherical potential well calculated energies of the ground and several excited states of quasiparticles in a quantum dot (QD) with one or two donor impurities. The dependence of the electron energy on the position of the donor impurity in the QD is obtained. The distribution of the probability density of location a quasiparticle in nanosystems in the ground and excited states is calculated.

Keywords: quantum dot, donor impurity, energy spectrum, wave function.

Вступ

Сучасні нанотехнології дозволяють створювати різні напівпровідникові прилади на основі наногетеросистем. Напівпровідникові квантові точки знаходять широке застосування у нанoeлектроніці як польові транзистори, фотоелементи, світловипромінюючі діоди, лазери [1-3].

За способом створення розрізняють епітаксійні та колоїдні квантові точки. Особливий інтерес представляють флуоресціюючі квантові точки, одержувані методом колоїдного синтезу. Вони характеризуються високою фотостабільністю (збереження флуоресцентних властивостей протягом декількох років), високим квантовим виходом флуоресценції (до 90%), ефективним по-

глинанням в широкій області спектру, вузькими піками флуоресценції (висока чистота кольору). Такі квантові точки використовуються в біології та медицині як сенсори та біомітки.

КТ на основі халькогенідів кадмію у залежності від свого розміру флуоресціюють різними кольорами. Вони поглинають енергію в широкому діапазоні спектру, а випромінюють у вузькій області частот світлових хвиль, який визначається положенням енергетичних рівнів електрона.

Енергетичний спектр квантових точок залежить як від їх розмірів і геометричної форми, так і від наявності та положення заряджених домішок в нанокристалі чи оточуючому його середовищі.

Домішки в КТ можуть з'являтися в результаті недосконалості технологій їх синтезу, так і в результаті цілеспрямованого легування для змін оптичних властивостей приладів.

Квантові точки, вирощені з колоїдних розчинів мають сферичну форму, що полегшує теоретичні дослідження їх фізичних властивостей, які виконуються на основі точних розв'язків рівняння Шредінгера як для простих квантових точок [4], так і для складних багатошарових наногетеросистем [5-6]. Вплив домішок на енергії основного та збуджених станів квазічастинок детально досліджувався в багатьох роботах як для закритих так і для відкритих наносистем лише для випадку центрально розміщеної домішки. Значно менше досліджено вплив нецентральної домішки на енергетичний спектр електрона у КТ. Рівняння Шредінгера для електрона в полі нецентральної домішки не має точного розв'язку навіть для найпростішої моделі КТ - безмежно глибокої сферичної потенціальної ями. Тому ці дослідження виконуються лише для декількох найнижчих квантових станів електрона варіаційним методом та методом теорії збурень [7-9].

Якщо результати досліджень енергії основного стану, виконані різними методами, добре узгоджуються між собою для різних положень домішки, то точність результатів розрахунків енергій збуджених станів невисока через складність побудови варіаційної функції та великі значення поправок до основної частини гамільтоніану в методі теорії збурень.

Через складність теоретичних розрахунків мало дослідженим залишається вплив двох та більшої кількості домішок на енергетичний спектр електрона в КТ. У працях [9-11] різними наближеними методами досліджено залежність найнижчих енергій електрона від положення домішок в КТ. Оцінити точність отриманих результатів та виконати подібні дослідження для вищих станів у рамках запропонованих методів досить складно.

У даній роботі виконано дослідження залежності енергетичного спектру та ево-

люції хвильової функції електрона в КТ від положення донорної домішки. Розрахунки виконано методом розкладу хвильової функції електрона в наносистемі за повним набором точних хвильових функцій квазічастинок в сферичній потенціальній ямі.

Висока точність отриманих результатів досягається великою кількістю врахованих доданків у сумі розкладу і вона обмежена лише потужністю обчислювальної техніки. Необхідна кількість доданків для досягнення заданої точності визначається за результатами отриманих енергій у граничному випадку центральної домішки, де відомі точні розв'язки рівняння Шредінгера.

Подібним методом досліджено енергетичний спектр та хвильові функції електрона в КТ з двома домішками.

1. Рівняння Шредінгера та його розв'язки для електрона у сферичній КТ з нецентральною домішкою

Розглянемо електрон в сферичній КТ радіуса R з донорною домішкою, розміщеною на відстані r_{imp} від центра наносистеми. Систему координат виберемо так, щоб початок координат збігався з центром КТ, а вісь Oz проходила через точку, де знаходиться домішка. Вважатимемо, що границя КТ непроникна для електрона.

У відсутності домішок хвильова функція електрона матиме вигляд

$$\Phi_{nlm}(\vec{r}) = A_{nl} j_l(x_{nl} r / R) Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (1)$$

де A_{nl} – константа нормування, x_{nl} – n -й нуль функції Беселя l -го порядку, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ – сферична функція.

Рівняння Шредінгера для електрона в сферичній наносистемі з однією домішкою має вигляд

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta \Psi_{jm}^{(1)}(\vec{r}) - \frac{e^2}{\varepsilon |\vec{r} - \vec{r}_{imp}|} \Psi_{jm}^{(1)}(\vec{r}) = E_{jm}^{(1)} \Psi_{jm}^{(1)}(\vec{r}). \quad (2)$$

У випадку двох домішок, одна з яких розміщена в центрі КТ рівняння (3) міститиме ще доданок, що описує взаємодію з центральною домішкою

$$\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta \Psi_{jm}^{(2)}(\vec{r}) - \frac{e^2}{\varepsilon} \left(\frac{1}{r} + \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}_{imp}|} \right) \Psi_{jm}^{(2)}(\vec{r}) = E_{jm}^{(2)} \Psi_{jm}^{(2)}(\vec{r}). \quad (3)$$

Хвильові функції $\Psi_{jm}^{(1,2)}(\vec{r})$, які задовольняють граничну умову $\Psi_{jm}^{(1,2)}(R) = 0$ шукаємо у вигляді розкладів

$$\Psi_{jm}^{(1,2)}(\vec{r}) = \sum_n \sum_l c_{nlm}^{(1,2)} \Phi_{nlm}(\vec{r}). \quad (4)$$

Для коефіцієнтів $c_{nlm}^{(1,2)}$ отримаємо рівняння

$$\left| H_{nl,n'l'}^{(1,2)} - E_{jm}^{(1,2)} \delta_{n,n'} \delta_{l,l'} \right| = 0, \quad (5)$$

де матричні елементи $H_{n'l',nl}^{(1,2)}$, мають вигляд

$$H_{n'l',nl}^{(1,2)} = \frac{x_{nl}^2}{R^2} \delta_{n',n} \delta_{l',l} + 4\pi I_{n'l',nl}^{(1,2)}, \quad (6)$$

$$I_{n'l',nl}^{(1)} = A_{n'l'} A_{nl} \int_0^R r^2 dr \int_0^\pi \sin \theta Y_{l'm}(\theta, 0) \times \\ \times Y_{l'm}(\theta, 0) \left(\frac{j_{l'}(x_{n'l'} r/R) j_l(x_{nl} r/R)}{\sqrt{r^2 + r_{imp}^2 - 2r r_{imp} \cos \theta}} \right) d\theta,$$

$$I_{n'l',nl}^{(2)} = I_{n'l',nl}^{(1)} + A_{n'l'} A_{nl} \int_0^R r dr \int_0^\pi \sin \theta d\theta \times \\ \times \left[j_{l'}(x_{n'l'} r/R) j_l(x_{nl} r/R) Y_{l'm}(\theta, 0) Y_{l'm}(\theta, 0) \right]$$

У співвідношенні (6) в якості одиниці енергії та довжини вибрані відповідно ефективний Рідберг $R_{eff} = \mu e^4 / (2\hbar^2 \varepsilon^2)$ та ефективний борівський радіус $a_b = \hbar^2 \varepsilon / (\mu e^2)$.

Знайшовши власні значення та власні вектори матриць

$$F_{nl,n'l'}^{(1,2)} = H_{nl,n'l'}^{(1,2)} - E_{jm}^{(1,2)} \delta_{n,n'} \delta_{l,l'} \quad (7)$$

при різних значеннях магнітного квантового числа m , отримуємо повний енергетичний спектр $E_{jm}^{(1,2)}$ та хвильові функції $\Psi_{jm}^{(1,2)}(\vec{r})$ електрона в квантовій точці з однією та двома донорними домішками.

2. Результати числових розрахунків

У числових розрахунках використовувались такі параметри: ефективна маса електрона $\mu=0,2 m_e$ (m_e – маса вільного електрона), постійна ґратки $a_{cDs}=0,582$ нм, діелектрична проникність $\varepsilon=5,5$.

При розкладі хвильових функцій (4) враховувалось достатня кількість доданків, так щоб похибка в отриманих значеннях енергій електрона не перевищувала 1%.

У результаті числових розрахунків виявилось, що необхідна точність для основного рівня електрона досягається при врахуванні більше ніж 100 доданків ряду (4).

У випадку малих значень r_{imp} необхідно враховувати більше доданків з різними значеннями n і менше з різними значеннями орбітального квантового числа. По мірі збільшення r_{imp} у формуванні хвильової функції зростає доля станів з $\ell \neq 0$.

Числові значення коефіцієнтів розкладу $c_{nl0}^{(1)}$ хвильової функції основного стану електрона наведено в таблиці 1.

Таблиця 1. Величини коефіцієнтів $c_{nl0}^{(1)}$ розкладу хвильової функції основного стану електрона в КТ з домішкою при $n=1...4$, $\ell=0...10$, $r_{imp}=R/2$, $R=40$ Å.

$c_{nl0}^{(1)}$	$n=1$	$n=2$	$n=3$	$n=4$
$\ell=0$	0,84307	0,0221	-0,02167	-0,00038
$\ell=1$	0,46199	0,05635	-0,01583	-0,00508
$\ell=2$	0,22046	0,05541	-0,00499	-0,00653
$\ell=3$	0,10679	0,04405	0,0026	-0,00549
$\ell=4$	0,05372	0,03217	0,00646	-0,00347
$\ell=5$	0,02782	0,02249	0,00776	-0,0014
$\ell=6$	0,01473	0,01535	0,00754	0,00021
$\ell=7$	0,00789	0,01029	0,00668	0,00135
$\ell=8$	0,00434	0,00685	0,00553	0,00193
$\ell=9$	0,0024	0,00447	0,00444	0,00218
$\ell=10$	0,00132	0,00281	0,00338	0,00214

Залежність енергій основного та збуджених станів електрона від положення домішки наведено на рис.1. Суцільними лініями зображено енергетичний спектр електрона при $m=0$ та штриховими лініями – $m=1$. Для

основного та першого збудженого станів кружечками наведено результати розрахунків, що виконані варіаційним методом [7]. Як видно з рисунка, варіаційний метод дозволяє з великою точністю розраховувати енергію основного стану електрона в області малих та великих зміщень домішки від центра КТ. В області $r_{imp}=R/2$ для збудженого стану електрона похибка в розрахунках енергії складає більше 20%.

У граничному випадку центральної домішки енергетичний спектр електрона повністю збігається з точними розв'язками рівняння Шредінгера, які характеризуються квантовими числами $n\ell m$. Послідовність енергетичних рівнів наступна: $1s, 1p, 2s, 1d, 2p, 1f$. За магнітним квантовим числом енергетичний спектр вироджений.

У випадку домішки, зміщеної від центра квантової точки, енергетичний спектр характеризується квантовими числами n, m , але для зручності в ідентифікації рівнів будемо користуватись індексами $n\ell m$.

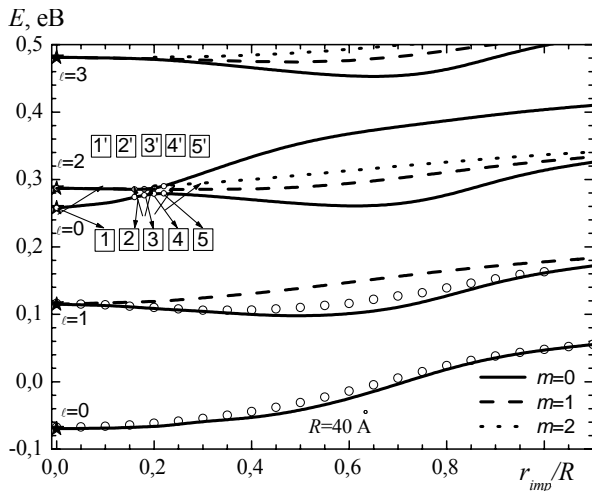


Рис. 1. Залежність енергетичного спектру електрона від положення донорної домішки при $R=40 \text{ \AA}$.

На рис.1 видно, що енергії квантових станів з $\ell=0$ при зміщенні домішки від центра квантової точки монотонно зростають. Залежності решти енергетичних рівнів мають немонотонний характер з незначними мінімумами. Внаслідок такої різної залежності близьких за енергією енергетичних рівнів

з'являються області антиперетинів чи розщовхування рівнів. Еволюцію хвильових функцій квантових станів $(2,0,0)$ та $(1,2,0)$ в області антиперетину наведено на рис.2.

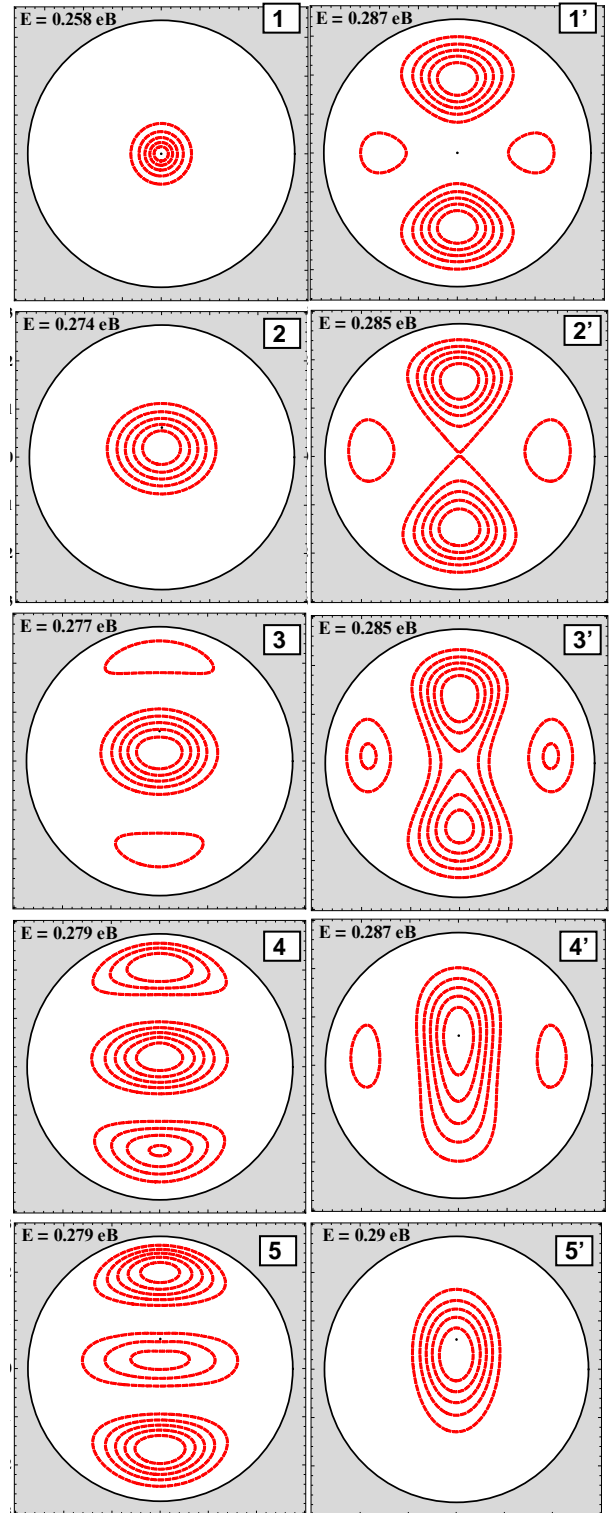


Рис. 2. Розподіл густини ймовірності знаходження електрона в наносистемі з домішкою ($r_{imp}=R/2$) в найнижчих станах.

На рис. 2 видно, що в області антиперетину хвильові функції близьких за енергією станів обмінюються своєю конфігурацією, в результаті чого змінюються залежності енергій відповідних рівнів від положення домішки.

Залежність енергетичного спектру електрона в полі двох домішок (центральної та нецентральної) наведено на рис.3. З рисунка видно, що наявність другої домішки значно змінює енергію зв'язку електрона. Коли обидві домішки локалізовані в центрі КТ енергія зв'язку електрона зростає в чотири рази порівняно з однією центральною домішкою. Це повністю узгоджується з точним розв'язком рівняння Шредінгера для електрона у кулонівському полі центральної двічі іонізованої домішки. При збільшенні відстані між домішками енергія основного стану електрона різко зменшується, що супроводжується появою характерних областей антиперетинів з сусіднім енергетичними рівнями.

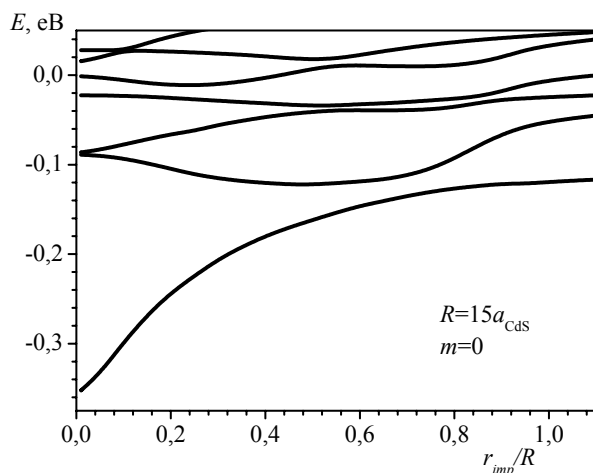


Рис. 3. Залежність енергетичного спектру електрона в КТ $R=15 a_{\text{CdS}}$ з двома домішками, одна з яких центральна, від положення другої нецентральної донорної домішки.

Висновки

Метод розкладу хвильової функції електрона в КТ з нецентральною домішкою за повним набором хвильових функцій електрона без домішки дозволяє отримати повний енергетичний спектр та розподіл густини ймовірності знаходження електрона в КТ з необхідною точністю.

У випадку нецентральної домішки внаслідок порушення сферичної симетрії відбувається розщеплення енергетичних рівнів з різними значеннями магнітного квантового числа m .

Залежності енергій станів різної симетрії від положення домішки мають різну поведінку. Зміщення домішки від центра КТ збільшує енергії станів з $\ell=0$, але зменшує енергії станів $\ell=1,2$. У результаті виникають області антиперетинів енергетичних рівнів, в яких різко змінюється конфігурація хвильової функції. Такі зміни проявляються на матричних елементах квантових переходів електрона, а значить і на оптичних властивостях КТ.

У граничному випадку однієї чи двох центральних домішок отримані результати повністю збігаються з точними розв'язками рівняння Шредінгера. Показано, що варіаційний метод дозволяє з великою точністю розрахувати енергію основного стану електрона при довільному положенні нецентральної зарядженої домішки, а метод теорії збурень дозволяє отримати наближені значення енергії декількох найнижчих станів лише у випадку домішки, розташованої поблизу поверхні КТ та у випадку точкових зарядів, розміщених зовні КТ.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Nizamoglu S., Demir H.V. Resonant nonradiative energy transfer in CdSe/ZnS core/shell nanocrystal solids enhances hybrid white LED // Optics Express. – 2008. – **16** (18). – P.13961-13968.
2. Martin-Palma R.J., Manso M., Torres-Costa V. Optical biosensors based on semiconductor nanostructures // Sensors. – 2009. – **9** (7). – P.5149.
3. Frasco M.F., Chaniotakis N. Semiconductor quantum dots in chemical sensors and biosensors // Sensors. – 2009. – **9** (9) – P.7266-7276.
4. Sadeghi S., Impurity binding energy of excited states in spherical QD// Physica E. - 2009. - **41**. - P.1319.
5. Tas H., Sahin M. The electron properties of core/shell/well/shell spherical quantum dot with and without a hydrogenic impurity // Journal of Applied Physics. – 2012. – **111** (8). – P.083702-1-083702-8.
6. Holovatsky V., Makhanets O., Voitsekhivska O. Oscillator strengths of electron quantum transitions in

- spherical nanosystems with donor impurity in the center // *Physica E*. – 2009. – **41** (8). – P.1522-1526.
7. Бойчук В.І., Лешко Р.Я., Білинський І.В., Турянська Л.М. Лінійний та нелінійний коефіцієнти поглинання світла сферичною квантовою точкою з нецентральною домішкою // *Фізика і хімія твердого тіла*. – 2012. – **13** (2). – С.319-324.
 8. Boichuk V., Bilynskiy I., Leshko R., Turyanska L. The effect of the polarization charges on the optical properties of a spherical quantum dot with an off-central hydrogenic impurity// *Physica E*. - 2011. – **45** (2). - P.476–482.
 9. Головацький В.А., Франків І.Б. Енергії та хвильові функції електрона у сферичній квантовій точці CdS/SiO₂ з однією та двома воднеподібними домішками // *ЖФД*. – 2012. – **16** (1/2). – С.1706-1.
 10. Бойчук В., Білинський І., Лешко Р., Турянська Л. Оптичні властивості сферичної квантової точки з двома нейтральними домішками // *Фізика і хімія твердого тіла*. - 2013. - **14** (1). - С.34-39.
 11. Ткач Н., Головацький В., Франків І. Примесные состояния электронов в сферических наносистемах // *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*. - 2011. - **9** (4). - С.783-794.