

06;07

Влияние разброса квантовых точек по форме на их совместную плотность состояний

© А.Е. Краснок, В.П. Дзюба, Ю.Н. Кульчин

Институт автоматки и процессов управления ДВО РАН, Владивосток
E-mail: krasnokfiz@mail.ru

Поступило в Редакцию 10 января 2011 г.

Предложен оригинальный подход к оценке влияния распределения квантовых точек по форме на их совместную плотность энергетических состояний. Получены выражения, определяющие величины смещения и неоднородного уширения основной частотной полосы люминесценции в зависимости от коэффициента модуляции формы поверхности квантовых точек.

В последнее время интерес исследователей оптоэлектронных приборов на полупроводниковых гетероструктурах переместился в область изучения гетероструктур с трехмерным ограничением области локализации носителей заряда. Подобные структуры реализуют концепцию квантовой точки (КТ), являющейся теоретическим пределом концепции размерного квантования [1–3]. Интерес к КТ обусловлен рядом их преимуществ перед структурами других типов, включая квантовые ямы и проволоки, что обусловлено их атомоподобным энергетическим спектром. Для реализации этих преимуществ на практике требуются однородные массивы КТ. Однако геометрическая форма поверхности реальных КТ обычно отличается от идеальной. Это отклонение способно вызвать существенные изменения в спектрах энергетических состояний носителей зарядов, локализованных внутри КТ, и, как следствие, отразиться на спектральных характеристиках оптоэлектронных приборов, выполненных на их основе. Однако методы учета влияния геометрии границ на энергетический спектр КТ недостаточно развиты, в основном из-за серьезных математических трудностей. В настоящее время существует ряд теоретических работ, в которых исследуется неоднородное уширение основных спектральных линий люминесценции массивов КТ [4–9]. В большинстве работ реальный массив КТ, суще-

ственно различающихся по форме, заменяется ансамблем одинаковых, чаще сферических КТ, различающихся только размерами. Ясно, что такой подход совершенно не учитывает уширение спектральных линий фотолюминесценции отдельной КТ, связанное со снятием вырождения с ее квантово-размерных состояний. Те теоретические модели, которые все же пытаются учесть влияние формы КТ на спектральные характеристики оптоэлектронных приборов, учитывают его только для основного состояния, и практическое применение этих методов ограничено их относительной математической сложностью. Целью данной работы является разработка метода оценки неоднородного уширения и сдвига центральных частот полос люминесценции массива разнородных по форме КТ.

Определим функционал $E[s(r)]$ энергии электрона, локализованного в КТ. Этот функционал, определенный на пространстве функций $s(r)$, определяющих форму поверхности КТ, представим [10] в виде вариационного ряда Тейлора в окрестности функции $s_0(r)$:

$$E[s(r)] = E_0[s_0(r)] + \int_V \frac{\delta E[s(r)]}{\delta s(\xi)} \Big|_{s=s_0} \delta s(\xi) d\xi + \frac{1}{2!} \iint_V \frac{\delta^2 E[s(r)]}{\delta s(\xi_1) \delta s(\xi_2)} \Big|_{s=s_0} \delta s(\xi_1) \delta s(\xi_2) d\xi_1 d\xi_2 + \dots, \quad (1)$$

где V — объем КТ, $\delta/\delta s(\xi)$ — вариационная производная и $\delta s(\xi) = s(\xi) - s_0(\xi)$ — вариация поверхности КТ. Если вариация поверхности КТ не велика, то этот ряд довольно быстро сходится. Взяв вариационную производную $\frac{\delta E[s(r)]}{\delta s(\xi)} = \frac{dE[s(r)]}{ds(r)} \delta(r - \xi)$ и ограничившись первым приближением, получим

$$E[s(r)] \approx E[s_0(r)] + \frac{dE[s(r)]}{ds(r)} \Big|_{s=s_0} \delta s(r). \quad (2)$$

Удобно выбрать поверхность $s_0(r)$ простой и максимально симметричной формы, так как энергетический спектр такой КТ известен. Выберем в качестве невозмущенной поверхности сферу $s_0(r) = R_0^2$ и свяжем с ней сферическую систему координат (R, θ, φ) . Вариация поверхности в этих координатах равна $\delta s(R, \theta, \varphi) = R^2(\theta, \varphi) - R_0^2$, где

$R^2(\theta, \varphi)$ — квадрат расстояния от центра сферы до точки на возмущенной поверхности $s(R, \theta, \varphi)$ КТ. Известно, что энергия электрона внутри сферической КТ радиусом R_0 в приближении бесконечно глубокой потенциальной ямы определяется выражением $E_{nl}(R_0) = \alpha_{nl}^2 \hbar^2 / (2\mu R_0^2)$, где μ — эффективная масса электрона в КТ, α_{nl} — корни функции Бесселя $J_{L+1/2}(\alpha_{nl}) = 0$. Введя обозначение $E_{nl}(R_0) = E_{nl}^0$, из выражения (2) с учетом сказанного получим

$$E_{nlm}[R(\theta)] = E_{nl}^0 \left(1 - \frac{\delta R^2(\theta)}{R_0^2} \right). \quad (3)$$

Будем рассматривать только аксиально-симметричные вариации формы, определяемые выражением

$$\delta R^2(\theta) = \eta^2 R_0^2 \cos^\gamma(k\theta), \quad (4)$$

где η — коэффициент модуляции формы КТ, который $\eta < 1$, θ — угол между осью аксиальной симметрии и плоскостью, в которой лежит радиус-вектор $R(\theta, \varphi)$, проведенный из начала системы координат. Если плоскость движения частицы совпадает с плоскостью, в которой лежит вектор $R(\theta, \varphi)$, то

$$\cos^2 \theta = \frac{m^2}{l(l+1)}, \quad (5)$$

где l, m — орбитальное и магнитное квантовые числа частицы соответственно. Для эллиптической деформации сферы разлагаемый метод дает выражение, совпадающее с выражением, полученным с помощью стандартных методов теории возмущений [11].

Для простоты рассмотрим массив КТ, однородный по размерам. В выражении (4) γ и k будем считать дискретными случайными величинами. Введем распределения вероятностей $G(\gamma)$ и $K(k)$ величин γ и k . Распределения $G(\gamma_i)$ и $K(k_j)$ определяют вероятности того, что у произвольно выбранной КТ параметры γ и k имеют соответственно дискретные значения γ_i и K_j . Образует совместную функцию распределения $f(\gamma_i, k_j) = G(\gamma_i)K(k_j)$ и найдем с ее помощью

математическое ожидание и дисперсию величины (3):

$$\langle E_{nlm} \rangle = \frac{\alpha_{nl}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} \left(1 - \eta^2 \sum_i \sum_j f(\gamma_i, k_j) \cos^\gamma(k_j \theta) \right), \quad (6)$$

$$\sigma = \left(\frac{\alpha_{nl}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} \right) \left[\left\langle \left(\sum_i \sum_j f(\gamma_i, k_j) \cos^{\gamma_i}(k_j \theta) - \cos^\gamma(k \theta) \right)^2 \right\rangle \right]^{1/2}. \quad (7)$$

Операция усреднения по форме обозначена угловыми скобками. Дискретное распределение $f(\gamma, k)$ величины γ и k всегда можно выровнять непрерывным законом распределения [12]. Для этого рассмотрим центральные моменты третьего и четвертого порядков, которые, как известно [12], определяют коэффициенты асимметрии $S[E_{nlm}]$ и эксцесс $E[E_{nlm}]$ распределения, по формулам

$$S[E_{nlm}] = \left(\frac{\alpha_{nl}^2 \hbar^2}{2\mu \sigma_{nlm} R_0^2} \eta^2 \right)^3 \left\langle \left(\sum_i \sum_j f(\gamma_i, k_j) \cos^{\gamma_i}(k_j \theta) - \cos^\gamma(k \theta) \right)^3 \right\rangle, \quad (8)$$

$$E[E_{nlm}] = \left(\frac{\alpha_{nl}^2 \hbar^2}{2\mu \sigma_{nlm} R_0^2} \eta^2 \right)^4 \left\langle \left(\sum_i \sum_j f(\gamma_i, k_j) \cos^{\gamma_i}(k_j \theta) - \cos^\gamma(k \theta) \right)^4 \right\rangle - 3. \quad (9)$$

Выравнивая распределение $f(\gamma_i, k_j)$ с помощью выражений (6)–(9), мы получим набор функций распределения по энергиям $f(E)$ в районе каждого из состояний (n, l, m) . Для выявления основных особенностей модели рассмотрим следующий пример. Пусть, например, распределения $G(\gamma)$ и $K(k)$ определяются значениями $K(1) = 0.6$, $K(2) = 0.4$, $G(0) = 0.5$, $G(1) = 0.3$, $G(2) = 0.2$. Тогда вероятности $f(\gamma_i, k_j)$ будут иметь значения: $f(0) = 0.5$, $f(1, 1) = 0.18$, $f(1, 2) = 0.12$, $f(2, 1) = 0.12$, $f(2, 2) = 0.12$. На рис. 1 изображены формы КТ, представленных в рассматриваемом ансамбле. Среднее значение и среднее квадратичное отклонение основного состояния $1s$ в этом случае определяются следующими выражениями:

$$\langle E_{100} \rangle = \frac{\alpha_{10}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} (1 - 0.46\eta^2), \quad \sigma_{100} = 0.48\eta^2 \frac{\alpha_{10}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2}. \quad (10)$$

Из формул (10) видно, что в реальном массиве КТ основное состояние фактически расширяется в зону с шириной, равной $\Delta_{10} = \sigma_{100}$.

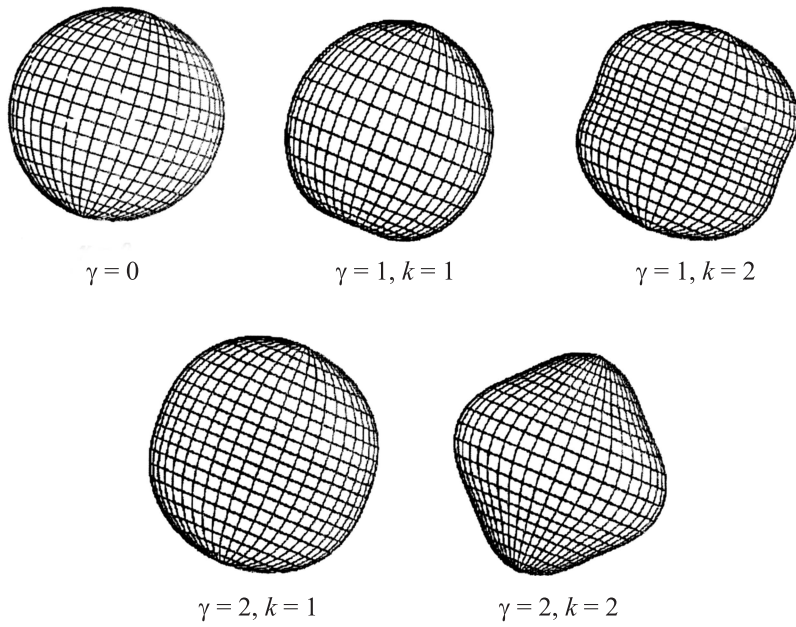


Рис. 1. Формы КТ, представленных в рассматриваемом ансамбле.

Первое возбужденное $1p$ -состояние КТ сферической формы, изначально вырожденное с кратностью $n = 3$, расщепляется в набор трех близких уровней:

$$\begin{aligned}
 \langle E_{10} \rangle &= \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} (1 - 0.46\eta^2), & \sigma_{110} &= 0.48\eta^2 \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2}, \\
 \langle E_{111} \rangle &= \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} (1 - 0.81\eta^2), & \sigma_{111} &= 0.42\eta^2 \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2}, \\
 \langle E_{11-1} \rangle &= \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2} (1 - 0.55\eta^2), & \sigma_{11-1} &= 0.43\eta^2 \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu R_0^2}.
 \end{aligned} \tag{11}$$

Ширина этого набора равна:

$$\Delta E_{11} = \langle E_{111} \rangle - \langle E_{110} \rangle = 0.35\eta^2 \frac{\alpha_{11}^2 \hbar^2}{2\mu} \frac{1}{R_0^2}. \tag{12}$$

Величина дисперсии сопоставима с шириной получившегося набора ΔE_{11} , поэтому энергетический спектр реального ансамбля КТ в области этих состояний размывает в довольно широкую зону состояний с шириной порядка величины $2\Delta E_{11}$. Согласно (10), (11) и принимая во внимание то, что корни функции Бесселя равны $\alpha_{10} = 3.142$, $\alpha_{11} = 4.493$, энергетическое расстояние между образовавшимися мини-зонами ($\Delta E = \langle E_{11-1} \rangle - \langle E_{100} \rangle$) будет равно

$$\Delta E = \frac{10.32\hbar^2}{2\mu R_0^2} - \frac{0.1\hbar^2\eta^2}{2\mu R_0^2}. \quad (13)$$

Из выражения (13) следует, что центральная частота основной полосы люминесценции смещается пропорционально квадрату коэффициента модуляции формы поверхности. Запишем выражение, определяющее значение центральной частоты для основной полосы люминесценции, в виде

$$\omega = \omega_0 - \frac{0.1\eta^2\hbar}{2\mu R_0^2}, \quad (14)$$

где ω_0 — частота люминесценции КТ с невозмущенной поверхностью. В нашем случае для КТ на основе GaAs размером $R_0 = 4$ nm эта частота равна $\omega_0 = 1.47 \cdot 10^{15}$ Hz. Выражение (14) определяет величину центральной частоты основной полосы люминесценции массива КТ. При увеличении коэффициента модуляции происходит смещение люминесценции в сторону длинных волн. Для коэффициента модуляции, равного $\eta = 0.4$, величина смещения частоты излучения составляет величину порядка 0.3%, что довольно существенно. Спектральная ширина спектра излучения такого лазера определяется выражением (12) и будет равна $\Delta\omega = 2\Delta E_{11}/\hbar$. На рис. 2 представлена зависимость спектральной ширины основной линии люминесценции от коэффициента модуляции формы КТ. Например, для коэффициента модуляции $\eta = 0.2$ эта ширина равна 10^{14} Hz.

Коэффициент асимметрии $S[E_{nlm}]$ и эксцесс $E[E_{nlm}]$ распределения при малых коэффициентах модуляции для нашего случая близки к нулю. Поэтому функция распределения КТ по энергиям имеет вид приблизительно нормального закона, а совместная плотность состояний массива КТ, с учетом коэффициента спинового вырождения, в районе

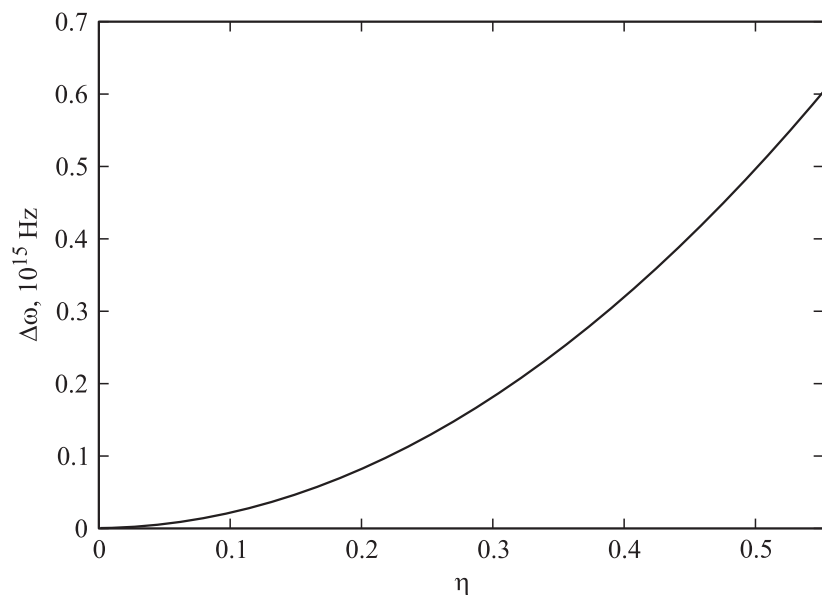


Рис. 2. Зависимость спектральной ширины основной линии излучения лазера от коэффициента модуляции формы КТ.

каждого из состояний преобразуется к виду

$$\rho(E) = \frac{2n_{QD}}{\sqrt{2\pi}\sigma_{nlm}} \exp\left(-\frac{(E - \langle E_{nlm} \rangle)^2}{2\sigma_{nlm}^2}\right), \quad (15)$$

где n_{QD} есть поверхностная плотность точек в массиве.

Итак, в работе предложен новый подход к оценке влияния разброса массива КТ по форме на основные спектральные характеристики люминесценции. Хотя излагаемый метод и ограничен КТ с вариациями форм поверхности, определяемыми выражением (4), он имеет ряд преимуществ. Эти преимущества заключаются в возможности его применения не только к основному, но и к любому возбужденному состоянию КТ с любой степенью точности.

Работа выполнена при поддержке программы президиума РАН № 27, проект 09-И-П27-06, а также программы фундаментальных исследований ОФН РАН, проект 09-И-ОФН-07.

Краснок А.Е. выражает отдельную благодарность фонду некоммерческих программ „Династия“ Дмитрия Зимина.

Список литературы

- [1] Цирлин Г.Э., Петров В.Н., Максимов М.В. // ФТП. 1997. Т. 31. В. 8. С. 912–916.
- [2] Леденцов Н.Н., Устинов М.В. // ФТП. 1998. Т. 32. В. 4. С. 385–411.
- [3] Талалаев В.Г., Новиков Б.В., Вербин С.Ю. и др. // ФТП. 2000. Т. 34. В. 4. С. 467–477.
- [4] Белявский В.И., Шевцов С.В. // ФТП. 2002. Т. 36. В. 7. С. 874–881.
- [5] Жуков А.Е., Ковш А.Р., Устинов В.М. // ФТП. 2002. Т. 33. В. 11. С. 1395–1400.
- [6] Елисеев П.Г. // Квантовая электроника. 2000. Т. 30. В. 2. С. 152–158.
- [7] Dvoyan K.G., Kazaryan E.M., Petrosyan L.S. // Physica E. 2005. V. 28. N 4. P. 333–338.
- [8] Suci S., Mese A.I., Okan S.E. // Physica E. 2008. V. 40. N 8. P. 2698–2702.
- [9] Aktas S., Bilekkaaya A., Okan S.E. // Physica E. 2008. V. 40. N 8. P. 2703–2708.
- [10] Рытов С.М., Кравцов Ю.А., Татарский В.И. // Введение в статистическую радиофизику. Случайные поля. М.: Наука, 1978. 33 с.
- [11] Мигдал А.Б. Качественные методы в квантовой теории. М.: Наука, 1975. 81 с.
- [12] Вентцель Е.С. Теория вероятностей. М.: Академия, 2003. 86 с.