

GaAs/Al_xGa_{1-x}As 球形量子点中的电子结构^{*}

王传道[†]

(中国科学院半导体研究所超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2007 年 6 月 16 日收到, 2007 年 7 月 2 日收到修改稿)

详细讨论了 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 球形量子点内的单电子束缚能级随量子点半径、Al 组分以及外电场的变化规律, 并计算了考虑量子点内外电子有效质量不同后对电子能级的修正. 另外, 用解析和平面波展开两种方法对球形量子点内的电子能级进行了计算, 并对计算结果做了比较, 发现它们符合的很好. 结论和方法为量子点的研究和应用提供了有益的信息和指导.

关键词: 球形量子点, 解析方法, 平面波展开方法, 有效质量

PACC: 7125, 7115, 7320D

1. 引 言

量子点是一个典型的零维系统, 由于它在基本物理方面的重要性, 即提供了一个在大于原子尺度上研究量子物理行为的途径, 以及在许多领域, 尤其是光电子、微电子领域内的应用前景, 得到了广泛的实验^[1-3]和理论研究^[4-21].

量子点中的电子结构计算是一个基本而且重要的问题. 比如, 量子点中的电子基态和第一激发态可以被认为是一个二能级系统, 被广泛应用于量子计算和量子调控^[17]. 同时, 许多应用量子点而产生的新型器件需要工作在一定的外电场下, 比如, 在浮栅量子点闪存中, 很重要的一点是通过外电场来调节量子点中的载流子浓度^[22, 23]. 因此, 计算外电场对量子点中能级的影响也显得格外重要. 总之, 研究量子点的电子结构可以为量子点的应用开拓新的前景.

对于量子点中的电子结构的计算, 总体上有两种方法^[20], 一种是第一性原理计算, 另一种是用有效质量近似和包络函数理论. 一般来说, 第一性原理计算的结果更加可靠, 但它的缺点在于难于计算包含几百万或者更多个原子的体系的电子结构. 因此, 在很多情况下, 有效质量近似和包络函数理论不失为一种良好的近似计算方法.

在有效质量近似和包络函数理论框架下, 有很多种函数可以被选作为基矢波函数, 其中, 选择平面波做基矢被广为采用, 原因之一在于矩阵元的计算相对简单. 我们把孤立的单量子点置于一个立方单元中, 在耦合的周期结构中, 立方单元的边长等于平面波的周期^[24, 25]. 当运用平面波展开方法计算单个孤立量子点的电子结构时, 计算结果取决于立方单元的大小和作为基矢的平面波波函数的个数. 原则上讲, 选择大的立方单元和更多的平面波数目, 会得到更准确的结果, 但计算量随平面波个数的增加迅速增加. 因此, 我们在保持一定计算精度要求的前提下, 尽可能选取小的立方单元和少的平面波个数.

目前, 可以实现的典型自组装量子点一般为金字塔形^[26]或者透镜形^[27]. 本文目的在于研究 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 量子点中的单电子束缚能级随量子点尺寸、Al 组分的变化和外电场对电子能级的影响, 以及考虑量子点内外电子有效质量差异后对电子能级的修正, 并且比较解析方法和平面波方法的有效性, 为量子点在器件设计等领域的研究和应用提供有益的信息和指导. 因此, 为了简化计算, 采用理想的球形模型.

2. 理论模型与计算方法

考虑 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 形成的理想的球形量子

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60521001)资助的课题.

[†] E-mail: sirwangdao@sina.com

点,具有如下的中心对称球形势:

$$V(\mathbf{r}) = \begin{cases} 0 & \text{当 } r < s, \\ V_{\text{ex}} & \text{其他,} \end{cases} \quad (1)$$

其中 s 是球形量子点的半径, $\mathbf{r} = (x, y, z)$, $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$. 电子的有效质量为

$$m^*(\mathbf{r}) = \begin{cases} m_1^* & \text{当 } r < s, \\ m_x^* & \text{其他,} \end{cases} \quad (2)$$

根据文献[28], $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 的带隙 $E_g(x) = (1.426 + 1.247x) \text{eV}$, V_{ex} 主要由于 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 与 GaAs 的导带带阶 ΔE_c 引起, $\Delta E_c \approx 0.67\Delta E_g$. 在 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 材料中,电子的有效质量与 Al 组分 x 的关系为 $m_x^* = (0.067 + 0.083x)m_0$, 其中 m_0 是自由电子质量.

2.1. 无外电场情形下单电子束缚能级的解析解法

首先考虑无外电场的情形,根据有效质量近似和包络函数理论^[29,30],球形量子点中的单电子哈密顿量为

$$H_e = \mathbf{P} \frac{1}{2m^*(r)} \mathbf{P} + V(\mathbf{r}), \quad (3)$$

其中 \mathbf{P} 是电子的动量算符. 采用球坐标系,薛定谔方程为

$$H_e \Psi(r, \theta, \varphi) = E_e \Psi(r, \theta, \varphi). \quad (4)$$

下面分两种情况计算量子点中的单电子束缚能级.

2.1.1. 不考虑球形量子点内外电子有效质量的差异

此时, $m_1^* = m_x^* = m^*$, 其中 m^* 是 GaAs 材料中的电子有效质量. 根据文献[31],波函数可以表示成

$$\Psi(r, \theta, \varphi) = R_{n_r l}(r) Y_{lm}(\theta, \varphi),$$

其中 $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ 是球谐函数, $R_{n_r l}(r)$ 是径向函数,具有如下形式:

$$R_{n_r l}(r) = \begin{cases} A_{kl} j_l(kr) & r \leq s, \\ B_{kl} h_l(ik'r) & r > s, \end{cases} \quad (5)$$

其中 $k = \sqrt{2m^* E_e} / \hbar$, $k' = \sqrt{2m^*(V_{\text{ex}} - E_e)} / \hbar$, j_l, h_l 为分别是 l 阶球贝塞尔函数和 l 阶球汉克尔函数, i 为虚数单位. 根据边界条件 $R_{n_r l}(r) \partial R_{n_r l}(r) / \partial r$ 必须在 $r = s$ 处保持连续性,得

$$\frac{A_{kl} j_{l+1}(ks)}{j_l(ks)} = \frac{ik' h_{l+1}(ik's)}{h_l(ik's)}. \quad (6)$$

2.1.2. 考虑球形量子点内外电子有效质量的差异

此时, $m_1^* \neq m_x^*$, 方程(4)没有严格解析解. 但

由于 m_x^* 和 m_1^* 差别不大,为此,仍用 $m_1^* = m_x^* = m^*$ 时的解(5)式来近似 $m_1^* \neq m_x^*$ 时的解,有效质量的差异在边界条件中体现出来,根据边界条件 $R_{n_r l}(r) (\partial R_{n_r l}(r) / \partial r)$ 必须在 $r = s$ 处保持连续性,得

$$\frac{1}{m_1^*} \left[\frac{l}{s} - \frac{k j_{l+1}(ks)}{j_l(ks)} \right] = \frac{1}{m_x^*} \left[\frac{l}{s} - \frac{ik' h_{l+1}(ik's)}{h_l(ik's)} \right], \quad (7)$$

解方程(6)(7),可分别得出两种情况下球形量子点中单电子的束缚能级.

2.2. 无外电场情形下电子束缚能级的平面波展开方法

根据文献[15,16,20],满足方程(4)的波函数可以用平面波展开,具有如下形式:

$$\Psi(x, y, z) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y L_z}} \sum_{n_x n_y n_z} C_{n_x n_y n_z} \times \exp\{i[(k_x + n_x K_x)x + (k_y + n_y K_y)y + (k_z + n_z K_z)z]\}, \quad (8)$$

其中 L_x, L_y, L_z 分别是立方单元的在 x, y, z 三个方向的边长, $K_x = 2\pi/L_x, K_y = 2\pi/L_y, K_z = 2\pi/L_z, n_x = -m_x, \dots, m_x, n_y = -m_y, \dots, m_y, n_z = -m_z, \dots, m_z$, 其中 m_x, m_y, m_z 都是正整数. 平面波的个数为 $N = N_x N_y N_z = (2m_x + 1)(2m_y + 1)(2m_z + 1)$. 用 $|n\rangle = |n_x n_y n_z\rangle$ 来标记一个平面波,此后计算中,取 $L_x = L_y = L_z = L, K_x = K_y = K_z = K = 2\pi/L$, 以及 $N_x = N_y = N_z = N$.

不考虑有效质量差异时,以平面波为基矢的哈密顿量的矩阵元为

$$\begin{aligned} \langle n' | H_e | n \rangle = & \left\{ \frac{\hbar^2}{2m^*} [(k_x + n_x K_x)^2 + (k_y + n_y K_y)^2 + (k_z + n_z K_z)^2] \right. \\ & + V_{\text{ex}} \left(1 - \frac{4\pi s^3}{3L^3} \right) \Big\} \delta_{n, n'} \\ & + (1 - \delta_{n, n'}) [\Lambda \cos(\Lambda s) - \sin(\Lambda s)] \times \frac{4\pi V_{\text{ex}}}{(\Lambda L)^3}, \end{aligned} \quad (9)$$

其中

$$\begin{aligned} \Lambda = & \frac{2\pi}{L} \sqrt{(n_x - n'_x)^2 + (n_y - n'_y)^2 + (n_z - n'_z)^2}, \\ \delta_{n, n'} = & \begin{cases} 1 & \text{当 } n_x = n'_x, n_y = n'_y, n_z = n'_z, \\ 0 & \text{其他,} \end{cases} \end{aligned} \quad (10)$$

考虑有效质量差异时,矩阵元为

$$\begin{aligned}
 n' | H_e | n &= \frac{\hbar^2}{2} \left[(k_x + n_x K_x) \chi (k_x + n'_x K_x) \right. \\
 &+ (k_y + n_y K_y) \chi (k_y + n'_y K_y) \\
 &+ \left. (k_z + n_z K_z) \chi (k_z + n'_z K_z) \right] \\
 &\times \left\{ \left(\frac{1}{m_x^*} + \frac{4\pi s^3}{3m_{1x}^* L^3} \right) \delta_{n,n'} \right. \\
 &+ (1 - \delta_{n,n'}) \frac{4\pi}{m_{1x}^* (\Delta L)^3} \\
 &\times [\sin(\Delta s) - \Delta s \cos(\Delta s)] \left. \right\} \\
 &+ V_{ex} \left(1 - \frac{4\pi s^3}{3L^3} \right) \delta_{n,n'} \\
 &+ (1 - \delta_{n,n'}) \frac{4\pi V_{ex}}{(\Delta L)^3} \\
 &\times [\Delta s \cos(\Delta s) - \sin(\Delta s)] \quad (11)
 \end{aligned}$$

其中

$$1/m_{1x}^* = 1/m_1^* - 1/m_x^* \quad (12)$$

2.3. 在外电场下单电子束缚能级

设外电场强度为 F 沿 z 方向, 则单电子的哈密顿量为

$$H_{eF} = H_e - eFz, \quad (13)$$

其中 H_e 是无外电场时的哈密顿量. 仍采用平面波展开, 矩阵元为

$$\begin{aligned}
 n' | H_{eF} | n &= n' | H_e | n + i \times \frac{eFL(-1)^{n'_z - n_z}}{2\pi(n'_z - n_z)} \\
 &\times \delta_{n_x, n'_x} \delta_{n_y, n'_y} (1 - \delta_{n_z, n'_z}), \quad (14)
 \end{aligned}$$

$$\delta_{n_x, n'_x} = \begin{cases} 1 & \text{当 } n_x = n'_x, \\ 0 & \text{其他,} \end{cases} \quad (15)$$

$\delta_{n_y, n'_y}, \delta_{n_z, n'_z}$ 的定义与 (15) 式类似. 其中当不考虑量子点内外有效质量差异时, $n' | H_e | n$ 取 (9) 式, 考虑有效质量差异时, 取 (11) 式.

3. 结果与讨论

图 1 是解析方法计算的单电子束缚能级. 图 1(a) 计算了半径 $s = 10$ nm 的量子点中的单电子束缚能级, Al 组分从 0.10 变化到 0.35, 根据 (6) 和 (7) 式计算了考虑电子在 Al_xGa_{1-x}As 和 GaAs 材料中的有效质量差异对单电子束缚能级的影响, 图 1 中分别给出了基态和第一激发态. 结果表明, 在量子点半径固定的情况下, 随着 Al 组分的增加, 对应能级提高, 这是由于随着 Al 组分的增加, 球形势阱变深,

量子限制效应增强的缘故; 另外, 考虑量子点内外电子有效质量的差异后, 对应能级下降, 这是因为 Al_xGa_{1-x}As 材料中电子的有效质量比在 GaAs 材料中大, 而且随着 Al 组分 x 的增加, 电子在 Al_xGa_{1-x}As 中的有效质量也增大, 因此, 对于同一个束缚能级, 有效质量差异引起的对束缚能级的修正也越大. 图 1(b) 给出了 Al 组分 $x = 0.30$ 的量子点中的电子束缚能级随量子点半径的变化. 在 Al 组分固定的情况下, 随着量子点半径的增加, 对应能级下降, 这是因为随着量子点半径的增加, 量子限制效应减弱. 同时, 由于量子点半径的增大, 电子波函数在量子点外部的部分减少, 因而电子在 Al_xGa_{1-x}As 和 GaAs 材料中有效质量的差异对计算结果影响也减小, 这样, 随着量子点半径的增大, 有效质量差异引起的对束缚能级的修正反而减小.

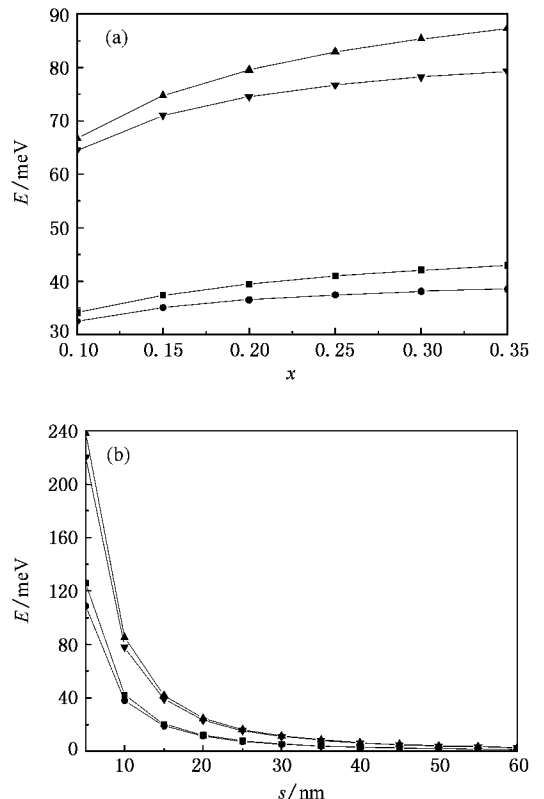


图 1 解析方法得出的无外电场时的电子束缚能级 (a) 是电子能级随 Al 组分的变化, 量子点半径 $s = 10$ nm (b) 是电子能级随量子点半径的变化, Al 组分 $x = 0.30$. 每个图中分别给出了基态和第一激发态能级, 实心方块和上三角表示 $m_1^* = m_x^*$ 情形, 实心圆点和下三角表示 $m_1^* \neq m_x^*$ 情形

用平面波展开法计算时, 经过验证, 取立方单元的边长为 $L = 2s + 10$ nm 已经可以满足所需要的精度. 图 2(a) 给出了在半径 $s = 10$ nm, Al 组分 $x =$

0.30 的量子点中的 6 个束缚能级随平面波个数的变化曲线. 当 $N_x = N_y = N_z = 19$, 即总的平面波个数 $N = 6859$ 时, 与取 $N_x = N_y = N_z = 21$, 即总的平面波个数取为 $N = 9261$ 时的计算结果相比, 对应能级的变化不超过 0.02 meV , 即取 $N = 6859$ 已经满足我们所需要的精度. 图 2 (b) 给出了 k_x, k_y, k_z 的不同取值对计算结果的影响, 结果表明, 分别取 $k_x = k_y = k_z = 0.00 \times 2\pi/L$, $k_x = k_y = k_z = 0.25 \times 2\pi/L$ 和 $k_x = k_y = k_z = 0.50 \times 2\pi/L$ 时的三条曲线几乎完全重合, 即 k_x, k_y, k_z 的不同取值不会对结果造成影响. 因此, 在以后的计算中, 取 $N = 6859, k_x = k_y = k_z = 0.25 \times (2\pi/L)$.

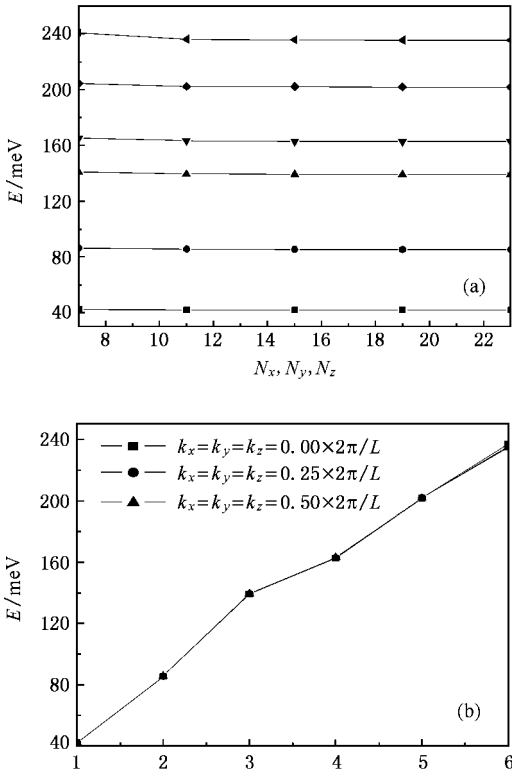


图 2 半径 10 nm, Al 组分 0.30 的量子点中 (a) 6 个束缚能级随平面波数目的变化, 其中 $N_x = N_y = N_z, k_x = k_y = k_z = 2\pi/4L$; (b) $k_x = k_y = k_z = (0.00, 0.25, 0.50) \times (2\pi/L)$ 时, 量子点中的 6 个束缚能级. 横轴代表能级的编号

图 3 是平面波展开方法计算出来的结果, 与图 1 完全对应. 可以看出, 这两种方法的计算结果符合的很好.

图 4 进一步对解析方法和平面波展开方法计算结果进行了比较. 我们分别用这两种方法计算了半径 $s = 10 \text{ nm}$, Al 组分 $x = 0.30$ 的量子点中的 6 个束缚能级. 图 4 (a) 是不考虑量子点内外电子有效质量

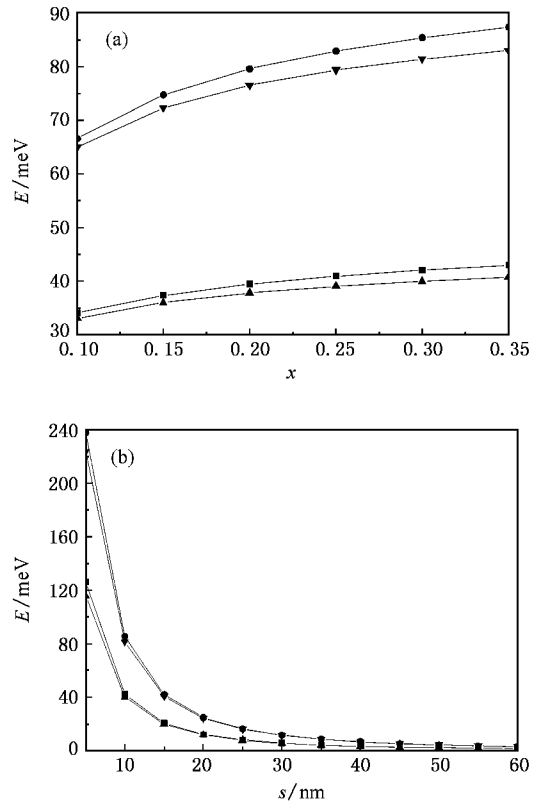


图 3 平面波展开法得出的无外电场时的单电子束缚能级 (a) 是电子能级随 Al 组分的变化, 量子点半径 $s = 10 \text{ nm}$ (b) 是电子能级随量子点半径的变化, Al 组分 $x = 0.30$. 每个图中分别给出了基态和第一激发态能量, 实心方块和实心圆点表示 $m_1^* = m_x^*$ 情形, 上三角和下三角表示 $m_1^* \neq m_x^*$ 情形

不同的关系曲线, 两种方法得出的曲线几乎完全重合, 结果符合的很好. 图 4 (b) 是考虑了量子点内外电子有效质量差异的关系曲线. 此时, 由于用解析方法计算时, 做了近似, 因而得到的曲线和采用平面波展开方法得到的曲线不完全重合. 考虑到这种近似造成的可能误差, 可以认为, 这两种方法的计算结果是符合的, 而且, 平面波展开方法比采用了近似的解析方法得出的结果更加准确.

在外电场存在时, 我们计算了外电场 F 从 0 变化到 $10^5 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$, 半径为 $s = 10 \text{ nm}$, Al 组分 $x = 0.30$ 的球形量子点内的单电子束缚能级, 图 5 (a) 分别给出了不考虑和考虑量子点内外电子有效质量的差异情况下基态、第一、第二激发态能量随外电场 F 的变化规律. 图 5 (b) 给出了量子点内束缚能级的总数随外电场 F 的变化情况. 结果表明, 量子点内相应束缚能级随外电场的增大而下降, 束缚能级的个数随外电场的增大而减少, 这是由于外电场引入的附加势的结果.

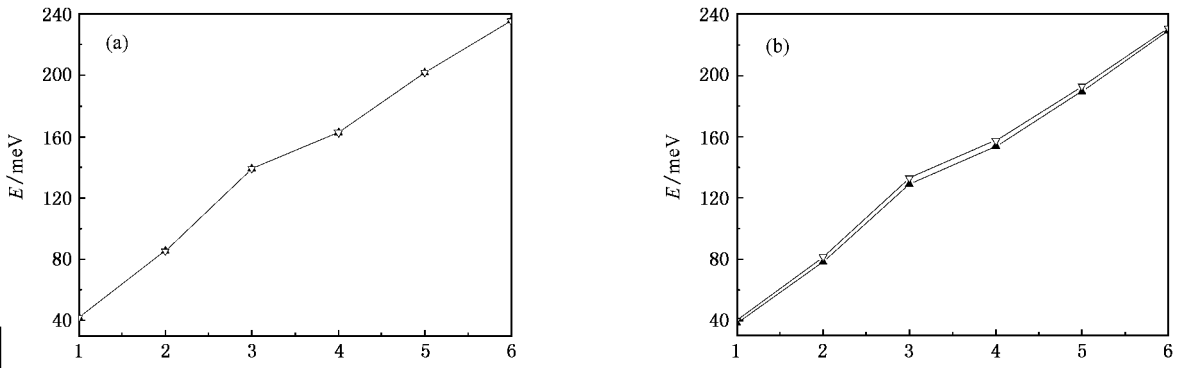


图 4 解析方法和平面波展开方法得出的电子能级比较 ,其中实心上三角形代表解析方法 ,空心下三角形代表平面波展开方法 .量子点半径 10 nm ,Al 组分 0.30. 图示了量子点中的 6 个束缚能级 ,横轴代表能级的编号 (a)不考虑电子有效质量的差异 ; (b)考虑了电子有效质量的差异

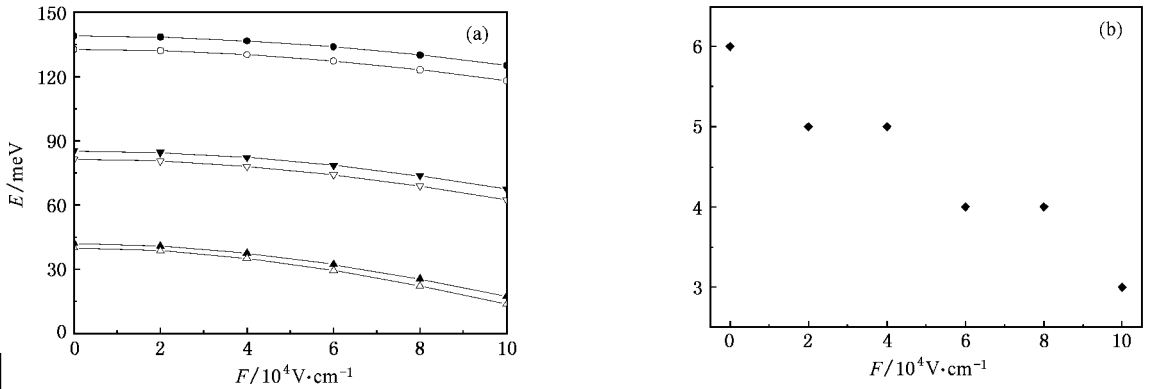


图 5 在外电场存在时用平面波展开方法计算的结果 ,量子点半径 10 nm ,Al 组分 0.30 (a)是量子点内的三个束缚能级 ,即基态和第一、第二激发态 .实心代表 $m_1^* = m_x^*$ 情形 ,空心代表 $m_1^* \neq m_x^*$ 情形 ; (b)给出了量子点内束缚能级数目随外电场的变化关系 ,纵轴表示量子点内束缚能级的个数

4. 结 论

本文用解析方法和平面波展开方法计算了 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 球形量子点内的单电子束缚能级 .对不同量子点半径 ,不同 Al 组分 ,以及有无外电场情况做了计算 ,并考虑了量子点内外电子有效质量差异对能级的影响 .结果表明 ,球形量子点内的单电子束缚能级随量子点半径的增加而下降 ,随 Al 组

分的增加而上升 ;量子点内的束缚能级随外电场的增加而下降 ,束缚能级数目也会随之减少 ;考虑 Al_xGa_{1-x}As 和 GaAs 材料中电子有效质量的差异后 ,相应的束缚能级会有所下降 ,而且 Al 组分越大 ,考虑量子点内外有效质量差异引起的能级修正越大 ,量子点半径越大 ,考虑有效质量差异引起的能级修正越小 .另外 ,本文还对解析方法和平面波展开方法的计算结果进行了比较 ,表明在平面波个数取不小于 6859 个时 ,两者的计算结果符合的很好 .

[1] Tarucha S , Austing D G , Honda T 1997 *J. Appl. Phys.* (Japan) **37** 3917
 [2] Zhao J G , Shao B , Wang T H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1355 (in Chinese) [赵继刚、邵 彬、王太宏 2002 物理学报 **51** 1355]
 [3] Rogge M C , Harke B , Fricke C , Hohls F , Reinwald M , Wegscheider W , Haug R J 2005 *Phys. Rev. B* **72** 233402
 [4] Guo R H , Shi H Y , Sun X D 2004 *Chin. Phys.* **13** 2141
 [5] Hou C F , Jiang Y Y , Abdurusul 2005 *Chin. Phys.* **14** 1932
 [6] Stopa M 1996 *Phys. Rev. B* **54** 13767
 [7] Li S S , Xia J B 1997 *Acta Phys. Sin. Oversea. ed.* **6** 848
 [8] Xie W F 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 563 (in Chinese) [解文方 1997 物理学报 **46** 563]
 [9] Xie W F 2006 *Chin. Phys.* **15** 203
 [10] Koskinen M , Manninen M 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 1389

- [11] Hirose K , Wingreen N S 1999 *Phys. Rev. B* **59** 4604
- [12] Li S S , Xia J B 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 7171
- [13] Li C L , Xiao J L 2007 *Chin. Phys.* **16** 67
- [14] Pan L X , Li S S , Xia J B 2001 *Chin. Phys.* **10** 655
- [15] Li S S , Xia J B 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 3434
- [16] Li S S , Xia J B , Liu J L , Yang F H , Niu Z C , Feng S L , Zheng H Z 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 6151
- [17] Li S S , Long G L , Bai F S , Feng S L , Zheng H Z 2001 *PNAS* **98** 11847
- [18] Chang J F , Zeng X H , Zhou P X , Bi Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 978 (in Chinese) [常加峰、曾祥华、周朋霞、毕 桥 2004 物理学报 **53** 978]
- [19] Li S S , Xia J B 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 43102
- [20] Li S S , Xia J B 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 1896
- [21] Liang S , Lü Y W 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1617 (in Chinese) [梁 双、吕燕伍 2007 物理学报 **56** 1617]
- [22] Welser J J , Tiwari S , Rishton S , Lee K Y , Lee Y 1997 *IEEE Electron. Device Lett.* **18** 278
- [23] Guo S , Leobandung E , Chou S 1997 *Science* **175** 649
- [24] Vukmircovic N , Indjin D , Jovanovic V D , Ikonic Z , Harrison P 2005 *Phys. Rev. B* **72** 75356
- [25] Li S S , Chang K , Xia J B 2005 *Phys. Rev. B* **71** 155301
- [26] Grundmann M , Stier O , Bimberg D 1995 *Phys. Rev. B* **52** 11969
- [27] Moison J M , Houzay F , Barthe F , Leprince L , André E , Vatel O 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 196
- [28] Harrison P 2005 *Quantum Wells , Wires , and Dots* (England : John Wiley & Sons Ltd) p459
- [29] Burt M G 1992 *J. Phys. Condens. Matter* **4** 6651
- [30] Foreman B A 1995 *Phys. Rev. B* **52** 12241
- [31] Zeng J Y 2000 *Quantum Mechanics* (Beijing : Science Press) p313 (in Chinese) [曾谨言 2000 量子力学(北京 科学出版社) 第 313 页]

Electronic structure in GaAs/Al_xGa_{1-x}As spherical quantum dots^{*}

Wang Chuan-Dao[†]

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures , Institute of Semiconductors , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100083 , China)

(Received 16 June 2007 ; revised manuscript received 2 July 2007)

Abstract

In this paper , how the dots ' radius , Al concentration and external electric field affect the single electron energy states in GaAs/Al_xGa_{1-x}As spherical quantum dots are discussed in detail. Furthermore , the modification of the energy states is calculated when the difference in effective electron mass in GaAs and Al_xGa_{1-x}As are considered. In addition , both the analytical method and the plane wave method are used in calculation and the results are compared , showing that they are in good agreement with each other. The results and methods can provide useful information for the future research and potential applications of quantum dots.

Keywords : spherical quantum dot , analytical method , plane wave method , effective mass

PACC : 7125 , 7115 , 7320D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60521001).

[†] E-mail : sirwangdao@sina.com