

耦合量子点的反常极化*

徐晓华 姜 浩 傅荣堂 孙 鑫

(复旦大学李政道物理学综合实验室 物理系, 上海 200433)

(1999 年 6 月 27 日收到; 1999 年 9 月 13 日收到修改稿)

耦合量子点体系可以在激发态实现逆电性. 在外电场中, 耦合量子点产生极化. 通过光激发, 其感应电偶极矩反转. 这种光电开关效应是一种新的光致现象.

PACC : 3520M ; 7320D ; 3150

1 引 言

近年来, 飞秒技术(femto-second technology)的发展使实验测量的时间分辨率实现了历史性的飞跃^[1, 2]. 与此同时, 在时间标度观念上, 寿命为纳秒量级的分子激发态由“瞬态”重新定位为“准稳态”. 在了解激发态超快过程的实验技术基础具备后, 许多基态不存在的新奇物理现象相继被发现, 并逐渐构成一门新的前沿学科——光致现象(photoinduced phenomenon). 最近, 孙鑫及其合作者在高分子电致发光的研究中提出了“光致极化反转”的概念^[3]. 这一新的光致现象涉及分子的“逆电性”(极化率 $\alpha < 0$).

众所周知, 在磁学中, 存在固有磁矩的分子呈现顺磁性(para-magnetism), 无固有磁矩的分子则产生逆磁性(dia-magnetism); 在电学中, 分子无论极性存在与否, 均有顺电性(para-electricity)^[4]. 这意味着电学与磁学一直存在着极化术语上的不对称性: 后者有顺、逆磁之分, 而前者无顺、逆电之别. 文献^[3]则从理论上论证了在特定体系与条件下实现逆电性的可行性.

诸如原子、分子和量子点等量子体系具有一系列本征态 ψ_i 及相应能级 E_i . 体系处于态 ψ_i 时, 其极化率^[5]

$$\alpha_i = \sum_{j \neq i} 2 |P_{ij}|^2 \chi(E_j - E_i), \quad (1)$$

其中 P_{ij} 为 ψ_i 与 ψ_j 间的偶极矩矩阵元. (1) 式表明, 任何体系的基态极化率恒正. 对激发态而言, 极化率来自正负两方面的贡献, 分别由能级高于和低于它的状态产生. 由于前者无限而后者有限, 故通常情形下, 即使是激发态, 其极化率亦为正. 不过 (1) 式并不保证任何激发态的极化率一定为正. 事实上, 如果体系存在两个远离其他能级的毗邻能级 E_u 和 E_d , 则体系处于上能态 ψ_u 时的极化率主要来自于下能态 ψ_d , 因而

$$\begin{aligned} \alpha_u &= \sum_{j \neq u} 2 |P_{uj}|^2 \chi(E_j - E_u) \\ &\approx 2 |P_{ud}|^2 \chi(E_d - E_u) < 0. \end{aligned} \quad (2)$$

可见, 负极化分子设计本质上是“能级工程”. 利用结构可塑性较强的低维小量子系统来实现逆电性, 将是切实可行的. 半导体量子点是一种能谱可调, 电子数可由栅极电压控制的人工原子^[6, 7]. 对单量子点而言, 约束势导致很大的能级间距. 当两个量子点耦合形成“分子”时, 孤立“原子”的简并基态分裂成宇称相反的成-反键态对, 即分子的基态和第一激发态. 在弱耦合情形下, 这两态间能级分裂很小, 同时又远离其他更高的激发态能级. 显然, 第一激发态具有负极化率.

将一个电子注入外电场下的耦合量子点, 体系产生极化. 电子处于基态时, 极化率为正, 感应电偶极矩与电场同向. 当电子吸收一个光子跃迁至第一激发态时, 由于极化率为负, 感应电偶极矩转至与电场相反的方向. 这种光致极化反转现象预言了低维

*国家自然科学基金(批准号: 59790050 和 198740140), 国家高技术研究发展计划(批准号: 863-715-010)及上海应用物理研究中心资助的课题.

量子系统的一种新的器件应用——光电开关.

2 模 型

为简化计算,量子点用理想的三维方势阱模型来描述.当 Y, Z 方向的约束宽度远小于 X 方向时,前者引起的量子化能级间距很大,因而低能态由 X 方向的势阱决定.两个量子点耦合时, X 方向的约束势取为

$$V(x) = \begin{cases} V_0 & |x| < a, \\ 0 & a \leq |x| \leq b, \\ \infty & |x| > b. \end{cases} \quad (3)$$

该势形成对称的双方势阱,其间的耦合强度由隔离势垒的高度 V_0 和相对宽度 a/b 决定.由(3)式可以决定 X 方向的本征波函数及能级.电子处于给定能态 ψ_i 时, X 方向的极化率由

$$\alpha_i = \sum_{j \neq i} 2 |j| \langle ex | i \rangle|^2 / (E_j - E_i) \quad (4)$$

决定.

3 结 果

在数值计算中,能级和极化率分别以参数 E_0 和 α_0 为单位,其中 $E_0 = \pi^2 \hbar^2 / 2m^* (2b)^2$ 为 $V_0 = 0$ (双量子点完全耦合,成为单量子点)时的基态能级, $\alpha_0 = \chi (eb)^2 / E_0$, m^* 为电子的有效质量.

3.1 能级与量子点耦合强度的关系

图 1 给出在不同隔离势垒相对宽度 a/b 下, X 方向的最低 6 个能级随势垒高度 V_0 的变化.当 V_0 较大时,双量子点耦合较弱,能级两两组合为成-反键态能级对,并随 V_0 的继续增大而趋于简并,即双量子点成为两个孤立的量子点;当 V_0 减小时,双量子点耦合增强,逐渐退化为单量子点,相应地,成-反键态能级对间隔增大,逐步演化为单量子点的能级,此时成、反键态能级的划分将失去意义.

另外,对比不同 a/b 值下能级随 V_0 增加趋于简并的快慢可知,双量子点的耦合强度并非随势垒相对宽度单调增大.事实上, a/b 增大固然有减小耦合强度的趋势,但同时两个量子点的相对约束宽度变小,能级与能级间隔相应增大,则势垒相对减低,又会增强耦合.因此真正决定耦合强度的因素是上述两种效应的综合.

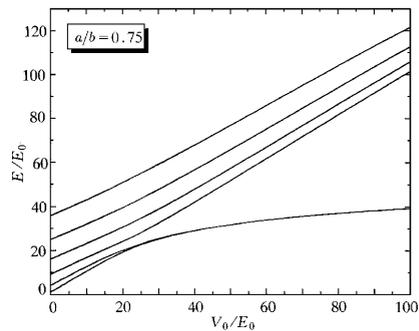
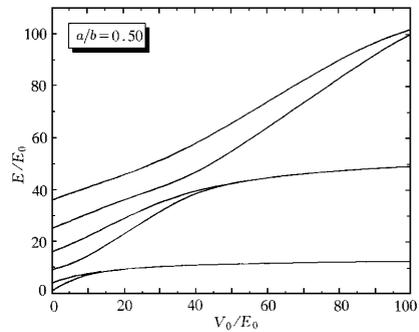
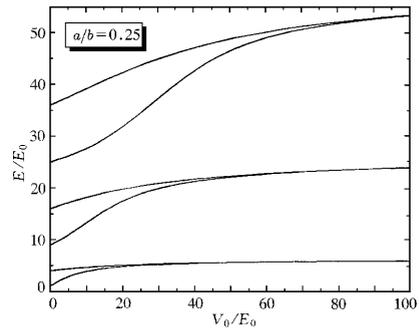


图 1 不同势垒相对宽度下量子点最低 6 个能级随势垒高度的变化

3.2 基态与第一激发态的电子极化率

由图 2 可见,基态的电子极化率为正,而第一激发态则为负,而且其绝对值随 V_0 增大而单调上升.既然(2)式表明极化率主要由两态能级差决定,这一结果是显而易见的.

由于势垒相对宽度对量子点耦合强度的影响是非单调的,故极化率的绝对值并非随 a/b 单调上

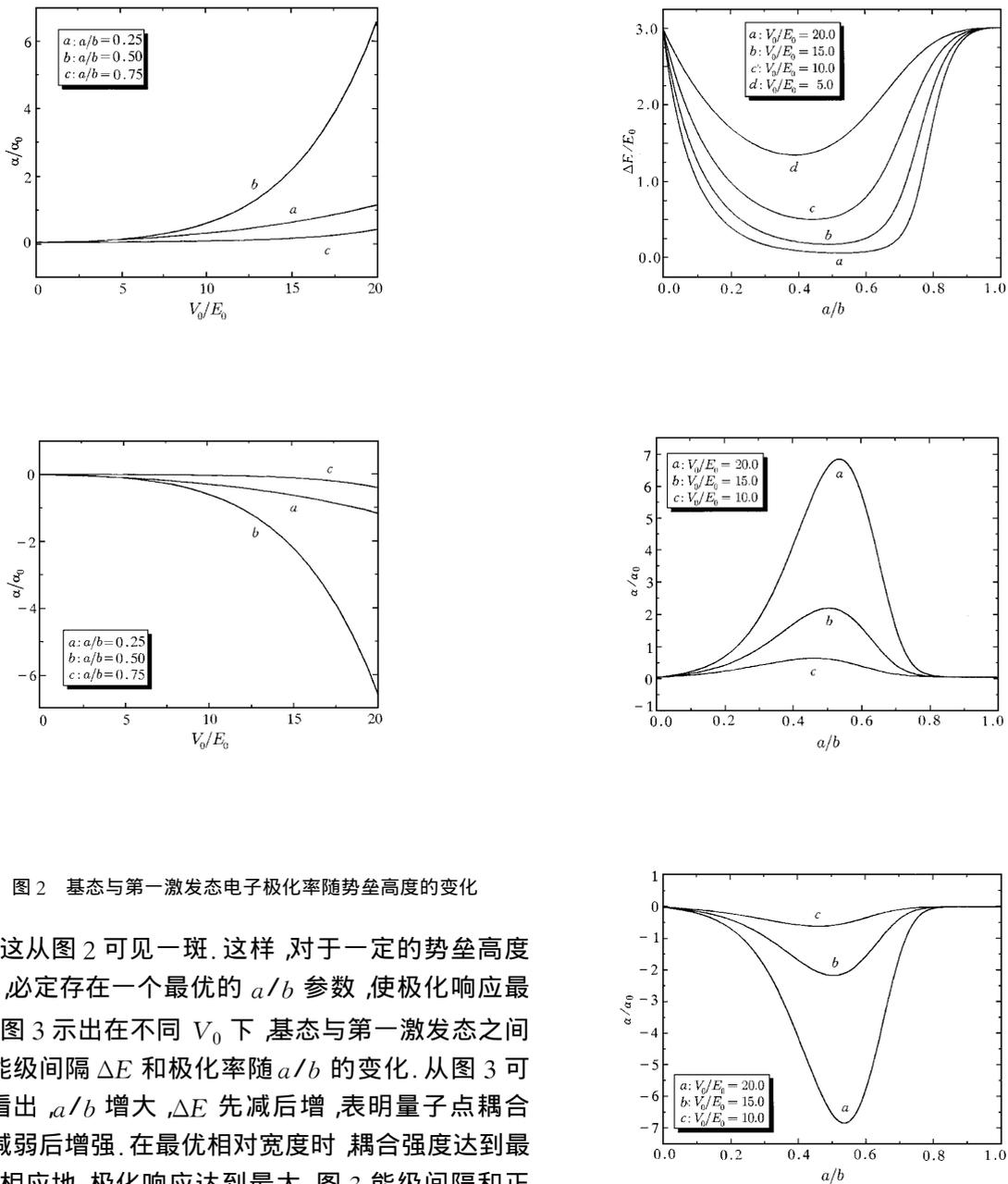


图 2 基态与第一激发态电子极化率随势垒高度的变化

升. 这从图 2 可见一斑. 这样, 对于一定的势垒高度 V_0 , 必定存在一个最优的 a/b 参数, 使极化响应最大. 图 3 示出在不同 V_0 下, 基态与第一激发态之间的能级间隔 ΔE 和极化率随 a/b 的变化. 从图 3 可以看出 a/b 增大, ΔE 先减后增, 表明量子点耦合先减弱后增强. 在最优相对宽度时, 耦合强度达到最小, 相应地, 极化响应达到最大. 图 3 能级间隔和正负极化率极值点的位置基本重合说明, 基态与第一激发态的极化率主要由它们之间的能级差决定.

4 结论与讨论

逆电性可以在耦合量子点第一激发态实现. 调节栅极电压使一个电子注入量子点体系, 在外电场中, 体系产生极化, 感应电偶极矩. 基态极化率为正, 感应电矩与电场同向. 通过光激发, 电子吸收光子跃迁至第一激发态, 极化率由正变负, 电偶极矩反转. 此即光致极化反转.

图 3 不同势垒高度下, 基态与第一激发态能级间距和极化率随势垒相对宽度的变化

综上所述, 本文指出了一种新的量子结构器件——光电开关的工作原理. 在实验观察乃至器件研制中, 由双量子点耦合引起的能级分裂小于单量子点能级间距的 $1/5$ 时, 量子体系方能产生显著的负极化效应. 因此, 为提高器件的工作温度, 必须减小量子点尺度及载流子有效质量, 以获得尽可能大的

能级间距. 目前的生长工艺使量子点的可控尺度达到 100 nm 量级, 由此产生的单量子点能级间距为 1 meV 量级. 在 1 K 温度以下, 通过波长为厘米量级的微波激发, 可以在实验上观察到光致极化反转现象. 随着材料科学与量子点生长工艺的进一步发展, 量子系统的可控尺度有望减小到 10 nm 量级, 同时载流子的有效质量还可减小, 这样, 量子结构器件能在液氮温度以上工作, 从而满足实际应用的需要.

[1] S. Watanabe, *Frontiers in Laser Physics and Spectroscopy* (Pergamon Press, Oxford, 1996).

- [2] H. Stapelfeldt, E. Constant, P. B. Corkum, *Prog. Cryst. Growth* **33** (1996) 209.
- [3] X. Sun *et al.*, *Proceedings of Organic Solids Symposium* (Okazaki, 1998); *Bull. Phys. Soc. Japan* **53** (1998) 49.
- [4] K. D. Bonin, V. V. Kresin, *Electric-Dipole Polarizabilities of Atoms, Molecules, and Clusters* (World Scientific, Singapore, 1997).
- [5] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Pergamon Press, Oxford, 1997).
- [6] M. A. Reed *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **60** (1998) 535.
- [7] K. Ismail *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **54** (1989) 460.

ANOMALOUS POLARIZATION IN COUPLED QUANTUM DOTS^{*}

XU XIAO-HUA JIANG HAO FU RONG-TANG SUN XIN

(*T. D. Lee Physics Laboratory, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433*)

(Received 27 June 1999 ; revised manuscript received 13 September 1999)

ABSTRACT

The coupled quantum dots can be designed to possess negative polarizability in some excited states. In an electric field, the coupled dots are polarized, and the induced dipole moment is reversed by photo-excitation. This photo-switch effect is a new photoinduced phenomenon.

PACC : 3520M ; 7320D ; 3150

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 59790050 and 198740140), and the Foundation of High Technology Research and Development Plan of China (Grant No. 715-010) and Shanghai Center of Applied Physics, China.