

垂直耦合自组织 InAs 双量子点中激子能的计算^{*}

董庆瑞[†] 牛智川

(中国科学院半导体研究所超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2004 年 8 月 26 日收到 2004 年 9 月 17 日收到修改稿)

在有效质量近似条件下研究了垂直耦合的自组织 InAs/GaAs 量子点的激子态. 在绝热近似条件下, 采用传递矩阵方法计算了电子和空穴的能谱. 通过哈密顿量矩阵的对角化, 对电子和空穴间的库仑相互作用进行了精确处理. 讨论了两量子点间的垂直距离对激子基态能的影响. 从基态波函数概率分布的角度, 讨论了激子的束缚能. 计算了重空穴和轻空穴激子的基态能随外部垂直磁场变化的函数关系. 计算了量子点大小(量子点半径)对激子能的影响.

关键词: 量子点, 激子, 对角化

PACC: 7320D, 7360J

1. 引 言

半导体量子点在物理上类似于具有原子核和束缚电子的原子体系, 也正是因为这个原因, 量子点经常被称为“人造原子”. 作为原子比喻的拓展, 耦合在一起的多量子点体系也被称“人造分子”. “indium-flush”技术^[1]的发展, 使高质量垂直耦合盘形量子点的制造成为可能. 这种垂直生长的量子点结构在制造光存储器件^[2]和量子点激光器^[3, 4]方面具有广阔的应用前景. 耦合量子点分子轨道无论在理论方面^[5-12]还是在实验方面^[1, 13-15]都得到了广泛的研究. 其中 Korkusinski 和 Hawrylak^[11]在质量有效近似和绝热近似下利用传递矩阵的方法计算了垂直耦合双量子点的电子结构.

近年来, 量子点激子态的研究也受到人们的极大关注. 这不仅是因为激子态的研究为量子点能谱分析提供了一个有力的工具^[16, 17], 也是因为量子点方案已经成为量子信息基础器件设计的一个重要选择^[18]. 文献 19]用有效质量哈密顿量研究了外磁场作用下抛物势量子点中激子的性质. Janssens 等^[20]研究了束缚在一个盘形量子点中的激子, 计算了激子的基态能量和激子束缚能随磁场变化的函数关系. 在垂直耦合 InAs/GaAs 量子点的磁场调制光致

发光(PL)谱中, 发现了激子能级交叉和反交叉的多样模式^[21], 这为量子点中光学激发的相干耦合提供了直接的证据. 文献 10]发展了一套计算耦合量子点中激子精细结构的理论方法. Shtrichman 等^[22]测量了电场调制下的单个垂直生长 InAs 量子点分子的时间平均 PL 谱, 发现了激子态的耦合所导致的两量子点间的电子迁移.

本文在有效质量近似条件下研究了垂直耦合自组织 InAs 量子点的激子态. 在绝热近似条件下, 采用传递矩阵方法^[23]计算了电子和空穴的能谱. 通过哈密顿量矩阵的对角化, 对电子和空穴间的库仑相互作用进行了精确处理. 相对于文献 24]的模型, 我们的计算对耦合量子点激子态进行了更精确的处理. 本文讨论了两量子点的垂直距离对重空穴和轻空穴激子基态能的影响, 计算了重空穴和轻空穴激子的基态能随外部垂直磁场变化的函数关系以及量子点大小(量子点半径)对激子能的影响. 本文还从非相互作用电子空穴对能量和束缚能的角度分析了激子能的行为, 同时从载流子局域化的角度分析了激子束缚能的变化.

2. 物理模型与理论

图 1 为 InAs/GaAs 耦合双量子点结构示意图. 两

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50025410, 60176006)资助的课题.

[†] E-mail: qrdong@red.semi.ac.cn

个量子点分别生长在厚度为 W 的浸润层 (WL) 上, 并且被 GaAs 势垒层覆盖. 两个量子点具有相同的高度 H (一般为 1—2 nm) 和相同的半径 R (一般为 7—12 nm). 两个浸润层之间的距离为 D , 两个量子点之间的隧穿势垒厚度为 $D - H$; GaAs 势垒和 InAs 量子点之间导带偏移量构成了量子点的限制势 V_0 . 量子点和浸润层的有效里德伯常数为 $R = m_e e^4 / 2\epsilon^2 \hbar^2$, 有效玻尔半径为 $a_B = \hbar^2 / m_e e^2$, 其中 m_e 和 ϵ 分别是电子有效质量和介电常数. 在本文的计算中, 我们把 R 和 a_B 作为能量和长度的单位.

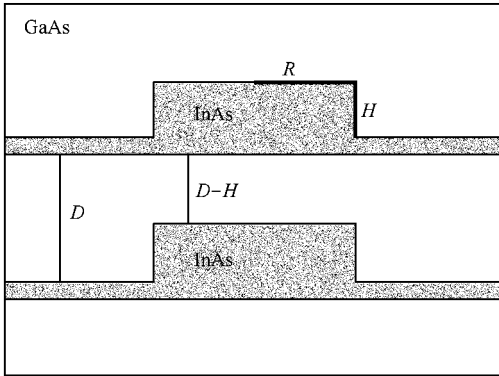


图 1 耦合 InAs/GaAs 双量子点结构示意图 (量子点的半径为 R , 高度为 H , 浸润层的间隔为 D)

处于外加静态垂直均匀磁场中的激子, 其哈密顿量在柱状坐标系中可表示为

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_h + \hat{H}_{e-h}. \quad (1)$$

我们采用哈密顿量的矩阵表示数值对角化的方法, 来求解体系的本征函数和本征值. 在这一方法中, 体系的哈密顿量被分成两部分,

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}',$$

其中 $\hat{H}_0 = \hat{H}_e + \hat{H}_h$ 为非相互作用的电子空穴对的哈密顿量, $\hat{H}' = \hat{H}_{e-h}$ 为电子和空穴相互作用哈密顿量. 我们可以用 \hat{H}_0 的本征函数把 \hat{H} 展开, 则求解体系本征函数和本征值的问题转化为一个矩阵对角化问题, 矩阵的矩阵元为 $\langle \varphi_i | H | \varphi_j \rangle$, 其中 φ_i 是非相互作用电子空穴对的本征函数.

垂直磁场 $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ 相应的势矢可表示为 $\mathbf{A} = \left(-\frac{B}{2}y, \frac{B}{2}x, 0 \right)$ 则

$$\hat{H}_e = -\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) + \frac{eB}{c} l_z + \frac{e^2 B^2}{4c^2} r^2 - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z), \quad (2)$$

$$\hat{H}_h = -\frac{m_e}{m_{hr}} \frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) - \frac{eB}{c} l_z + \frac{e^2 B^2}{4c^2} r^2 - \frac{m_e}{m_{hz}} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_h(r, z), \quad (3)$$

$$\hat{H}_{e-h} = -\frac{e^2}{\epsilon} \frac{1}{|r_e - r_h|}, \quad (4)$$

其中, m_{hr} 和 m_{hz} 分别为空穴的径向有效质量和垂直方向有效质量, 量子点和浸润层中有 $V_e(r, z) = -V_{e0}$ 和 $V_h(r, z) = -V_{h0}$, 而在势垒层中有 $V_e(r, z) = 0$ 和 $V_h(r, z) = 0$. 电子和空穴的运动在垂直方向受到强烈限制, 在绝热近似下, 电子和空穴的波函数可表示为 $(1/\sqrt{2}) e^{im\theta} g_i^v(z) f_m^v(r)$. 在垂直方向, 体系结构由两个同样大小的量子阱组成, 量子阱的厚度为 $H + W$ 或者 W . 若用 E_0 标记相应的基态能量, $g_1(z)$ 和 $g_2(z)$ 为两个量子阱孤立时的基态电子波函数, 则体系垂直方向的波函数 $g_r^0(z)$ 可用两个量子阱波函数的对称和反对称线性组合表示,

$$g_s^0(z) = [g_1(z) + g_2(z)]/2, \\ g_{as}^0(z) = [g_1(z) - g_2(z)]/2.$$

相应的本征值为

$$E_s = E_0 - \Delta/2, \\ E_{as} = E_0 + \Delta/2,$$

其中 Δ 为两能级间的分裂. 电子径向的运动是量子化的, 相应的波函数可以用 Bessel 函数表示. 对于无限深势垒, 体系的径向能谱可以用 Bessel 函数的零点 α_m^n 来表达,

$$E(m, n) = (\alpha_m^n / R)^2,$$

其中, R 是量子点的半径, n 是径向量子数, m 是角量子数. 于是, 电子和空穴的能谱由两个能级的队列组成: 对称电子态队列, $E_0 - \Delta/2 + E(0, 1), \dots$, 记为 $(m, n, +)$; 反对称电子态队列, $E_0 + \Delta/2 + E(0, 1), \dots$, 记为 $(m, n, -)$. 对于每一个角量子数 m , 电子波函数 $g_i^v(z)$ 和 $f_m^v(r)$ 满足方程

$$\left[-\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(r, z) \right] g_i^v(z) = E_v(r) g_i^v(z), \quad (5)$$

$$[\hat{H}_R + E_v(r)] f_m^v(r) = E f_m^v(r), \quad (6)$$

$$\hat{H}_R = -\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} - m^2 \right) + \frac{eB}{c} l_z + \frac{e^2 B^2}{4c^2} r^2. \quad (7)$$

同时空穴的波函数 $g_i^v(z)$ 和 $f_m^v(r)$ 具有类似的形式. 求解电子和空穴本征函数 $(1/\sqrt{2}) e^{im\theta} g_i^v(z) f_m^v(r)$ 及其

相应本征值的详细计算过程,可参见我们以前的工作^[12].将电子和空穴的本征函数适当组合,可得到相应的非相互作用电子和空穴对本征函数 φ_i . 在本征函数 φ_i 的表象中,可得到体系的总哈密顿量的矩阵表示,其矩阵元为 $\langle \varphi_i | H | \varphi_j \rangle$,通过对角化方法,可得到激子的本征函数和本征值.本文的计算所采用的参数适用于 InAs 材料,例如,介电常数 $\epsilon = 15.15\epsilon_0$,电子有效质量 $m_e = 0.053m_0$ ^[25],以及 $V_0 = 600 \text{ meV}$ ^[11].我们采用 Luttinger 参数为 $\gamma_1 = 19.97$, $\gamma_2 = 8.37$ ^[25],于是,对于重空穴态, $m_{hz} = m_0(\gamma_1 - 2\gamma_2)$, $m_{hr} = m_0(\gamma_1 + \gamma_2)$,对于轻空穴态, $m_{hz} = m_0(\gamma_1 + 2\gamma_2)$, $m_{hr} = m_0(\gamma_1 - \gamma_2)$,另外, $V_{10} = 295 \text{ meV}$ ^[20].

3. 结果及讨论

在不加磁场的情况下,一个重空穴激子和一个轻空穴激子的基态能量随量子点间距 D 变化的函数关系如图 2(a) 所示.随着 D 的增加,激子能也随之升高.我们从电子空穴对能量和束缚能的角度来讨论激子能的变化.随着 D 的增加,电子、空穴及电子空穴对的能量都随之增加,详细的计算过程可参见文献 [11].由于库仑相互作用,激子能要低于非相互作用的电子空穴对.轻空穴在垂直方向的有效质量要比重空穴在垂直方向的有效质量小很多,导致轻空穴的电子空穴对的能量高于重空穴的电子空穴对的能量,从而重空穴激子的基态能也要低于轻空穴激子的基态能.

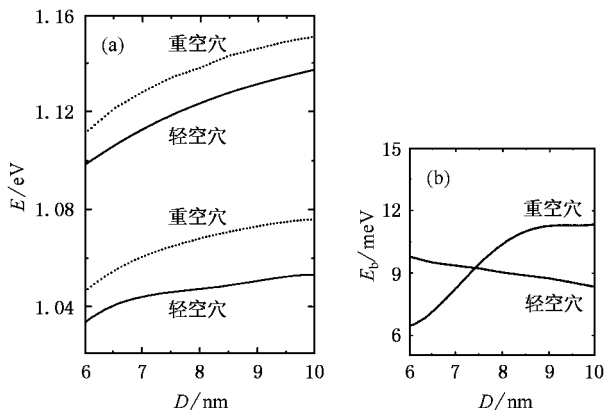


图 2 重空穴激子和轻空穴激子基态能量随量子点间距 D 变化的函数关系(结构参数: $H = 2 \text{ nm}$, $R = 9 \text{ nm}$. 非相互作用电子空穴对的能量用虚线表示. (a) 和激子束缚能随 D 变化的函数关系(b))

随着 D 的增加,重空穴激子束缚能和轻空穴激子束缚能的行为有所不同,我们从电子和空穴波函数在垂直方向的概率分布来解释其中的不同.对于重空穴激子,随着 D 的增加,束缚能也增加,并且趋向于一个常数(如图 2(b) 所示).尽管所有的电子态和空穴态都对束缚能产生影响,但对于基态激子的束缚能,电子基态和空穴基态无疑有决定性的影响.图 3 给出了重空穴基态激子的电子和空穴在垂直方向的波函数概率分布,随着 D 的增加,电子和空穴概率分布的峰值都增加,电子和空穴在两个量子阱中的局域化都有所增强.这种局域化的加强也增大了电子和空穴间的库仑相互作用,从而激子的束缚能也增加了.对于轻空穴激子,随着 D 的增加束缚能几乎保持不变,这和重空穴激子的束缚能的情况是不同的,原因是随着 D 的增加,空穴的局域化变弱了,抵消了电子局域化增强的作用.图 4 给出了轻空穴基态激子的电子和空穴在垂直方向的波函数概率分布,随着 D 的增加,空穴概率分布的峰值下降,空穴在两个量子阱中的局域化都有所减弱.

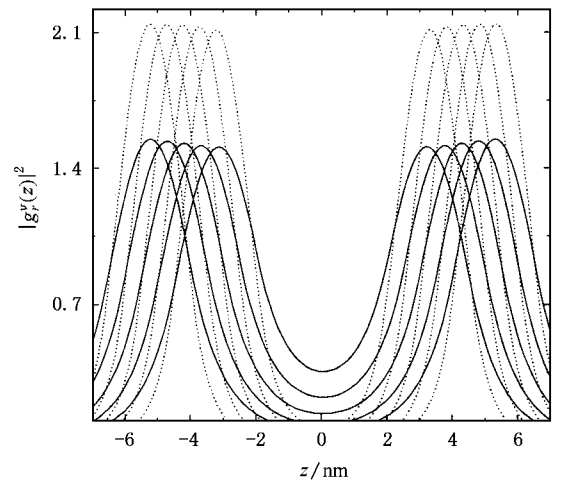


图 3 基态重空穴激子的电子和空穴在垂直方向的波函数概率分布(5条曲线分别对应相同的结构参数: $H = 2 \text{ nm}$, $R = 9 \text{ nm}$ 和不同的结构参数: $D = 6, 7, 8, 9, 10 \text{ nm}$. 电子分布用实线表示,空穴分布用虚线表示)

我们还研究了一个重空穴激子和一个轻空穴激子的基态能量随外部垂直磁场变化的函数关系(如图 5 所示).随着磁场的增加,电子和空穴在径向受到了更强的有效势,导致电子和空穴的能量升高,从而激子的能量也升高了.但是,随着磁场的增加,激子的束缚能只有轻微的升高(几乎保持不变),这是因为电子和空穴受到有效势垒的升高不足以导致电子

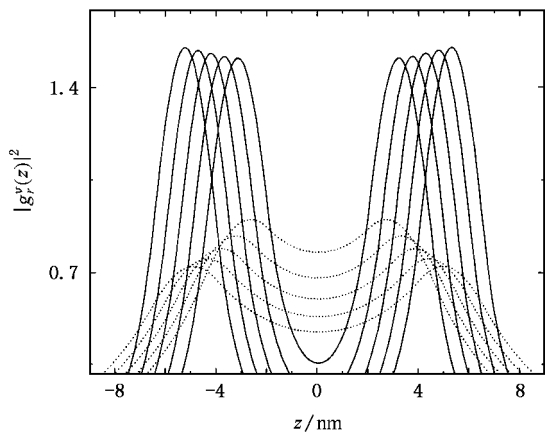


图 4 基态轻空穴激子的电子和空穴在垂直方向的波函数概率分布(5 条曲线分别对应相同的结构参数 : $H = 2 \text{ nm}$, $R = 9 \text{ nm}$ 和不同的结构参数 : $D = 6, 7, 8, 9, 10 \text{ nm}$. 电子分布用实线表示 , 空穴分布用虚线表示)

和空穴的径向局域化和库仑相互作用显著增强 , 所以激子的束缚能几乎保持不变 . 增加量子点的半径

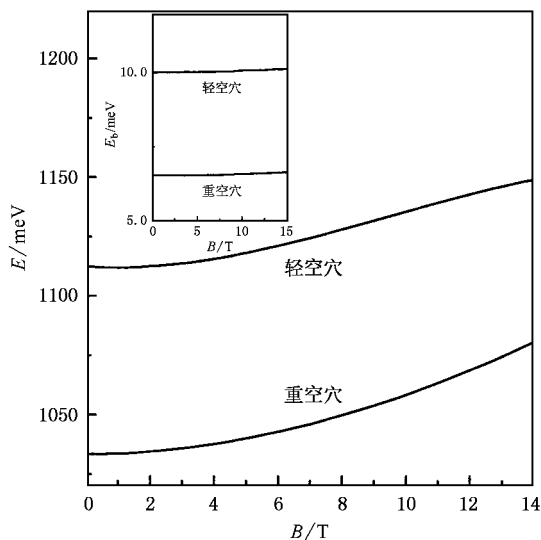


图 5 基态重空穴激子和基态轻空穴激子能量随垂直磁场变化的函数关系(结构参数 : $H = 2 \text{ nm}$, $R = 9 \text{ nm}$ 和 $D = 6.0 \text{ nm}$. 内插图给出了激子束缚能随磁场变化的函数关系)

量子点的径向限制也随之减弱 , 电子和空穴的能量降低 , 从而激子的能量也下降了(如图 6 所示). 另外 , 激子束缚能也降低了 , 原因是量子点限制减弱 , 导致了电子和空穴的局域化减弱、电子空穴间的库仑相互作用减弱 , 从而激子的束缚能下降 .

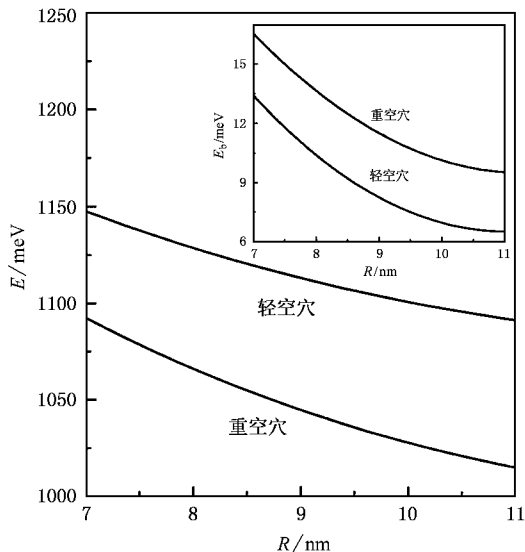


图 6 基态重空穴激子和基态轻空穴激子能量随量子点半径变化的函数关系(结构参数 : $H = 2 \text{ nm}$, $R = 9 \text{ nm}$ 和 $D = 7.5 \text{ nm}$. 内插图给出了激子束缚能随磁场变化的函数关系)

4. 结 论

本文对垂直耦合自组织 InAs 量子点的激子态进行了研究 , 并发展了一套针对激子态的数值计算方法 . 计算结果表明 , 激子基态能主要由非相互作用电子空穴对的基态能量决定 , 而束缚能在整个激子基态能中只占次要地位 . 在绝热近似条件下 , 量子点间垂直距离对激子束缚能的影响和电子空穴在垂直方向的概率分布有关 . 磁场作为电子空穴运动的有效势 , 其改变能显著地调整激子的基态能 , 而减小量子点的半径能够降低激子的基态能和束缚能 .

[1] Wasilewski Z R , Fafard S , McCaffrey J P 1999 *J. Cryst. Growth* **201** 1131
 [2] Lundstrom T , Schoenfeld W , Lee H *et al* 1999 *Science* **286** 2312
 [3] Maximov M V *et al* 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 5561
 [4] Fafard S , Wasilewski Z R , Allen C N *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 986
 [5] Palacios J J , Hawrylak P 1995 *Phys. Rev. B* **51** 1769

[6] Tokura Y , Austing D G , Tarucha S 1999 *J. Phys. C* **11** 6023 ; Bryant G W 1993 *Phys. Rev. B* **47** 1683
 [7] Pryor C 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 3579
 [8] Fonseca L R C , Jimenez J L , Leburton J P 1998 *Phys. Rev. B* **58** 9955
 [9] Ni H Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1474 (in Chinese) [倪海桥 2004 物理学报 **53** 1474]

- [10] Lyanda-Geller Y B , Reinecke T L 2004 *Phys. Rev. B* **69** 161308 067401
- [11] Korkusinski M , Hawrylak P 2001 *Phys. Rev. B* **63** 195311 [19] Halonen V , Chakraborty T , Pietillinen P 1992 *Phys. Rev. B* **45** 5980
- [12] Dong Q R *et al* 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 3277
- [13] Blick R H , Pfannkuche D , Haug R J *et al* 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4032 [20] Janssens K L , Peeters F M , Schweigert V A 2001 *Phys. Rev. B* **63** 205311
- [14] Luyken R J , Lorke A , Fricke M *et al* 1999 *Nanotechnology* **10** 14 [21] Ortner G *et al* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 086404
- [15] Bayer M *et al* 2001 *Science* **291** 451 [22] Shtrichman I *et al* 2002 *Phys. Rev. B* **65** 081303
- [16] Gammon D *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 3005 [23] Wojs A , Hawrylak P , Fafard S *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **54** 5604
- [17] Bayer M *et al* 1999 *Rev. Lett.* **82** 1748 [24] Ortner G *et al* 2004 *Physica E* **38** 479237
- [18] Chen P C , Piermarocchi C , Sham L J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** [25] Pryor C *et al* 1998 *Phys. Rev. B* **57** 7190

Excitonic energy of vertically stacked self-assembled InAs quantum dots^{*}

Dong Qing-Rui[†] Niu Zhi-Chuan

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

(Received 26 August 2004 ; revised manuscript received 17 September 2004)

Abstract

We have studied the exciton states in vertically stacked self-assembled quantum disks within the effective mass approximation. The energy spectrum of the electron and hole is calculated using the transfer matrix formalism in the adiabatic approximation. The Coulomb interaction between the electron and the hole is treated accurately by the direct diagonalization of the Hamiltonian matrix. The effect of the vertical alignment of the disks on the ground energy of heavy- and light-hole exciton is presented and discussed. The binding energy is discussed in terms of the probability of the ground wave function. The ground energy of heavy- and light-hole excitons as a function of the magnetic field is presented and the effect of the disk size (the radius of disks) on the exciton energy is discussed.

Keywords : quantum dot , exciton , diagonalization

PACC : 7320D , 7360J

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60025410 , 60176006).

[†] E-mail : qrdong@red.semi.ac.cn