Polarizacioni efekti u sfernim kvantnim nanočesticama

DUŠANKA P. STOJANOVIĆ, Univerzitet u Beogradu,
Institut za fiziku, Beograd
RADMILA S. KOSTIĆ, Univerzitet u Beogradu
Institut za fiziku, Beograd
JELENA M. TRAJIĆ, Univerzitet u Beogradu
Institut za fiziku, Beograd

Originalni naučni rad
UDC: 539.121.8
DOI: 10.5937/tehnika1505747S

Istraživane su energije elektrona u sfernoj čestici poluprovodnika nanometarskih dimenzija (kvantna tačka) koja je okružena drugim materijalom (matrica). Pored toga što materijal matrice čini da je elektron u potencijalnoj jami, materijal unutar nano sfere i onaj koji je okružuje mogu biti različitih dielektričnih svojstava tj. dielektrične propustljivosti ova dva materijala mogu da se više ili manje razlikuju, što čini da polarizacioni efekti dođu do izražaja. U ovom radu pokazano je kako na energije elektrona u kvantnoj tački CdS utiče promena dielektrične propustljivosti okoline.

Energije i talasne funkcije elektrona u kvantnoj tački, bez polarizacionih efekata, određene su u sferno simetričnom potencijalu u okviru aproksimacije efektivne mase kao rešenja odgovarajuće Schrödinger-ove jednačine.

U cilju uračunavanja polarizacionih efekata analitički je rešena Poisson-ova jednačina za slučaj da se tačkasto naelektrisanje nalazi bilo gde u nanosferi. Kroz dobijenu zavisnost uvodi se uticaj polarizacije naelektrisanjem koje je indukovano na površini koja razdvaja dve sredine. Dat je kompletan izraz za elektrostatički potencijal u bilo kojoj tački sfernog sistema ako je izvor drugo tačkasto naelektrisanje. Iz ovih izraza dobija se i izraz za self-potencijal.

U odnosu na prvobitni problem, čija rešenja su već poznata, self-potencijal je uveden kao perturbacija. Sprovođenjem perturbativnog postupka dobijene su nove, popravljene, energije stanja.

Pokazano je da u nanodimenzionim poluprovodničkim strukturama energija vezanih stanja elektrona značajno zavisi od odnosa dielektričnih propustljivosti kvantne tačke i matrice.

Ključne reči: polarizacioni efekat, kvantne tačke, Poisson-ova jednačina

1. UVOD

Nanodimenzioni materijali su oni čiji strukturni elementi imaju uređenu tj. kristalnu strukturu i dimenzije u intervalu od 1 do 100 nm. Kvantne tačke su poluprovodne nanostrukture kod kojih su nosioci naelektrisanja prostorno ograničeni u sve tri dimenzije. Smanjenje dimenzije dovodi do kvantnih fenomena koji uzrokuju promenu elektronske zonske strukture, usled koje se značajno menjaju osnovne osobine materijala; električne, optičke i magnetne u odnosu na osobine istog materijala velike zapremine (balk). Posledice toga su veliko naučno interesovanje za fundamentalne osobine, razvoj tehnoloških postupaka za do-

bijanje ovakvih sistema i prilagođavanje metoda karakterizacije. Najčešći put istraživanja je da se ispituju nanostrukturni materijali čije su nam osobine u balku dobro poznate. Karakterizacija novih niskodimenzionih struktura kao što su kvantne žice, superrešetke, kvantne tačke itd. zahteva postojanje vrlo osetljivih i preciznih metoda, tehnika i instrumentacije.

Već godinama se sprovode istraživanja i napravljeni su veliki pomaci vezani za sintezu kvantnih tačaka na bazi Cd, zbog njihovih interesantnih optičkih karakteristika, a posebno zbog mogućnosti da se njihova fluorescentna emisija pomera kroz vidljivi spektar.[1, 2, 3]. Jedan od pravaca istraživanja je efekat dopiranja magnetnom primesom [4, 5].

2. TEORIJA

Posmatramo sferu poluprečnika R koja se sastoji od CdS. Sferu nanodimenzija, kvantnu tačku, okružuje

Adresa autora: Dušanka Stojanović, Univerzitet u Beogradu, Institut za fiziku, Beograd, Pregrevica 118

Rad primljen: 17.06.2015.

Rad prihvaćen: 19.06.2015.

drugi materijal tzv. matrica. Kvantna tačka smeštena je u centar sfernog koordinatnog sistema [6]. Elektron koji se nađe unutar sfere okarakterisan je efektivnom masom koja je svojstvo materijala od kojeg je kvantna tačka izgrađena, u ovom slučaju CdS.

Razlika između energija dna provodne zone materijala kvantne tačke i dna provodne zone matrice određuju visinu potencijalne barijere za elektron na površini sfere. Jasno je da unutar sfere u tzv. jezgru, mora biti niži potencijal, što omogućava formiranje vezanih stanja.

U slučaju velike potencijalne barijere sistem se može posmatrati kao da je barijera beskonačno visoka, kao što je usvojeno u ovom slučaju. Potencijal kroz strukturu se može opisati relacijom:

$$V_e(r) = \begin{cases} 0 & r \leq R \\ \infty & r > R \end{cases} \quad (1)$$

Smatrajući da je spektar elektrona posledica kvantovanja usled malih dimenzija tj. vrlo ograničenog prostora u kome elektron boravi, može se napisati stacionarna Schrödinger-ova jednačina:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_e(r) + W_{sp}(r) \right) \Psi(r) = (H_0 + W_{sp}(r)) \Psi(r) = E \Psi(r) \quad (2)$$

$W_{sp}(r)$ opisuje interakciju jedne čestice sa "self-polarization" naelektrisanjem indukovanim na površini sfere. Ovaj potencijal će biti uveden kao perturbacija.

Navešćemo rešenja Schrödinger-ove jednačine bez računanja $W_{sp}(r)$, tj. slučaj elektrona u sfernoj potencijalnoj jami beskonačno visokih zidova, što će biti svojstvene vrednosti i talasne funkcije neperturbovanog stanja.

U slučaju sferno simetričnog potencijala $V_e(r)$ razdvajanje radijalnih i uglovnih koordinata omogućava da se talasna funkcija napiše u obliku $\Psi_{lm}(r) = R_l(r) Y_{lm}(\theta, \varphi)$, gde je $R_l(r)$ radijalni deo talasne funkcije a $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ je sferni harmonik. l i m su orbitalni i magnetni kvantni brojevi.

Za slučaj sfernog potencijala $V_e(r)$ sa diskretnom promenom od konstantne vrednosti 0 (u kvantnoj tacki) do ∞ (izvan kvantne tačke) radijalni deo talasne

funkcije dat je sa $R_l = A_l j_l(kr)$, gde je: $k = \sqrt{\frac{2m^*}{\hbar^2} E}$. j_l

je Besselova sferna funkcija. Rešenja zadovoljavaju uslov da su regularna u koordinatnom početku ($r = 0$). Kako je barijera beskonačno visoka talasna funkcija se ne prostire van kvantne tačke tj. ona mora da ispunji uslov $R_l(R) = 0$. Iz ovog uslova slede rešenja u smislu

svojstvenih vrednosti energija. Pored toga mora biti ispunjen i normalizacioni uslov, da je $\int_0^R R_{nl}^2(r) \cdot r^2 dr = 1$

Ovime su potpuno određene energije E_{nl} i talasne funkcije $R_{nl}(R)$ svojstvenih stanja.

Broj n numeričke svojstvene vrednosti E_{nl} . Kao što je uobičajeno, rešenje sa najmanjom energijom (najdublje u potencijalnoj jami tj. prvo iznad dna potencijalne jame) za svako l numerisano je sa $n=1$. Među svim stanjima, stanje sa oznakama $l=0$, $n=1$ ima najmanju energiju, to je osnovno stanje $1s$. Stanje sa oznakama $l=0$, $n=2$ je stanje $2s$.

Da bi se odredio elektrostatički potencijal $\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ u tački čiji je radius vektor $\vec{r}_1 = (r_1, \theta_1, \varphi_1)$ a koji potiče od tačkastog jediničnog naelektrisanja koje se nalazi u tački $\vec{r}_2 = (r_2, \theta_2, \varphi_2)$ početak je u rešavanju Poisson-ove jednačine

$$\nabla^2 \Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\frac{q_2}{4\pi\epsilon_1} \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \quad (3)$$

gde je $\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$ Dirac-ova delta funkcija [7-9]. ϵ_1 i ϵ_2 su dielektrične propustljivosti materijala u jezgru i matrici, respektivno. Ako usvojimo da je izvor polja smešten na z-osi tj. da je $\theta = 0$, problem postaje osno simetričan tj. invarijantan u odnosu na rotaciju u odnosu na z-osu. Rešavanjem Poissin-ove jednačine za uobičajene granične uslove na sfernoj razdelnoj površini dva dielektrika dobija se izraz za elektrostatičku potencijalnu energiju u obliku funkcija [7-11]:

$$W(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{e^2}{4\pi} \begin{cases} \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{n+1}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{r_1^n r_2^n}{R^{2n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) + \frac{1}{\epsilon_1} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{r_2^n}{r_1^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 < R \\ & r_2 < R \\ & r_2 < r_1 \\ \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{n+1}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{r_1^n r_2^n}{R^{2n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) + \frac{1}{\epsilon_1} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{r_1^n}{r_2^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 < R \\ & r_2 < R \\ & r_1 < r_2 \\ \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2n+1}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{r_1^n}{r_2^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 < R \\ & r_2 > R \\ \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2n+1}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{r_2^n}{r_1^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 > R \\ & r_2 < R \\ \frac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{n}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{R^{2n+1}}{r_1^{n+1} r_2^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) + \frac{1}{\epsilon_2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{r_2^n}{r_1^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 > R \\ & r_2 > R \\ & r_2 < r_1 \\ \frac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{n}{\epsilon_1 n + \epsilon_2(n+1)} \frac{R^{2n+1}}{r_1^{n+1} r_2^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) + \frac{1}{\epsilon_2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{r_1^n}{r_2^{n+1}} P_n(\cos\theta_{12}) & r_1 > R \\ & r_2 > R \\ & r_1 < r_2 \end{cases}$$

$P_n(x)$ su Legendre-ovi polinomi. Ovaj izraz važi za ceo

prostor ali su za nas interesantni izrazi koji se odnose na slučaj $r_1 < R$ i $r_2 < R$, jer zbog beskonačno visoke barijere neće biti potrebe da se bavimo drugim slučajevima.

Energija self polarizacije $W_{sp}(r_1)$ opisuje interakciju naelektrisanje čestice sa indukovanim površinskim naelektrisanjem koje potiče od nje same. Energija self potencijala definiše se kao $W_{sp}(r_1) = \frac{1}{2} W(\vec{r}_1, \vec{r}_1)_{\text{hom}}$,

pri čemu je $W(\vec{r}_1, \vec{r}_1)_{\text{hom}}$ homogeneni deo rešenja Poisson-ove jednačine u oblasti $r_1 < R$ [7]. Ovime su praktično eliminisani članovi koji se odnose na čistu Koulomb-ovu interakciju. Self-energija zavisi od rastojanja elektrona od centra kvantne tačke kao i dimenzije kvantne tačke i data je izrazom:

$$W_{sp}(r) = \frac{e^2(\epsilon_1 - \epsilon_2)}{8\pi\epsilon_1 R} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{k+1}{k\epsilon_1 + (k+1)\epsilon_2} \frac{r^{2k}}{R^{2k}} \quad (4)$$

Hamiltonian iz relacije (1) je zbir dva operatora H_0 i $W_{sp}(r)$. Ako su energije i talasne funkcije sopstvenih stanja operatora H_0 poznate, po perturbacionoj teoriji popravke prvog reda, self polarizaciona energija $W_{sp}(r)$ se posmatra kao poremećaj. Promena energije stanja, koja nastaje usled dejstva self-potencijala, može se izračunati kao

$$\Delta E = \int_0^R R_{nl}(r) W_{sp}(r) R_{nl}(r) 4\pi r^2 dr \quad (5)$$

3. REZULTATI

Kao što smo već naglasili, fokus ovoga rada je na uticaju spoljašnje sredine. Primenjujući postupak izložen u prethodnom delu, izračunate su energije elektrona u osnovnom i prvom pobuđenom stanju za $l=0$, za CdS kvantnu tačku različitog poluprečnika. Parametri koji se odnose na CdS i ulaze u proračun su: efektivna masa elektrona CdS-a $m^* = 0.21m_e$ (m_e je masa slobodnog elektrona) i dielektrična propustljivost CdS $\epsilon_1 = 8.9\epsilon_0$. Menjana je dielektrična propustljivost matrice ϵ_2 . Na slici 1 je data zavisnost energije polarizacije elektrona od udaljenosti od centra kvantne tačke za poluprečnik $R=2.5$ nm, za $\epsilon_2 = 1\epsilon_0, 5\epsilon_0$ i $10\epsilon_0$.

$W_{sp}(r)$ je proporcionalno razlici vrednosti dielektričnih konstanti na međupovršini kvantne tačke. U blizini granične površine ovaj potencijal ima beskonačnu vrednost.

Energije osnovnog i prvog pobuđenog stanja elektrona za $l=0$ u zavisnosti od veličine kvantne tačke R , za nekoliko vrednosti dielektričnih konstanti matrice prikazane su na slikama 2 i 3, respektivno. Polarizaciona energija u značajnoj meri menja energiju osnovnog stanja.

Slika 1 - Zavisnost energije polarizacije od rastojanja elektrona od centra kvantne tačke za $R=2.5$ nm pri različitim vrednostima dielektrične propustljivosti matrice ($\epsilon_2 = 1\epsilon_0, 5\epsilon_0$ i $10\epsilon_0$)

Ukoliko spoljašnja sredina ima manju dielektričnu propustljivost promena energije je veća. Promena energije je značajnija za manje kvantne tačke. Vrednosti dielektrične propustljivosti nekih materijala koji su česti kao matrice su: $\epsilon_2 = \epsilon_0$ za vazduh, $\epsilon_2 = 1.78\epsilon_0$ za vodu, $\epsilon_2 = 2.38\epsilon_0$ toluen, a pri tom je obezbeđena visoka potencijalna barijera. Do promene energije dolazi usled pomeranja nivoa dna jame pri promeni ϵ_2 od ϵ_0 do $15\epsilon_0$, kako je usvojeno u modelu. Promena energija E_{1s} i E_{2s} je oko 296 meV odnosno 311 eV, respektivno za kvantnu tačku poluprečnika 2.5 nm, a za kvantnu tačku poluprečnika 5nm iznosi 148 meV odnosno 155 meV za istu promenu ϵ_2 . Beskonačna vrednost polarizacionog potencijala na međupovršini ne remeti proračun obzirom da talasne funkcije, pa i gustina naelektrisanja na međupovršini iščezavaju zbog usvojene beskonačne vrednosti potencijalne barijere. Na slici 4 je data energija osnovnog stanja u zavisnosti od vrednosti dielektrične propustljivosti matrice. Za $\epsilon_2 > \epsilon_1$ energija elektrona je manja, a za $\epsilon_2 < \epsilon_1$ veća od energije za slučaj $\epsilon_2 = \epsilon_1$, tj. kada su odsutni efekti self polarizacije.

Slika 2 - Promena energije osnovnog stanja elektrona (prvo rešenje za $l=0, 1s$ stanje) u zavisnosti od veličine kvantne tačke za različite vrednosti dielektrične propustljivosti matrice ($\epsilon_2 = \epsilon_0, 3\epsilon_0, 5\epsilon_0, 8.9\epsilon_0, 10\epsilon_0$ i $15\epsilon_0$)

Slika 3 - Promena energije elektrona u prvom pobuđenom stanju za $l=0$ (drugo rešenje, $2s$ stanje) u zavisnosti od veličine kvantne tačke za različite vrednosti dielektrične propustljivosti matrice ($\epsilon_2 = \epsilon_0, 3\epsilon_0, 5\epsilon_0, 8.9\epsilon_0, 10\epsilon_0$ i $15\epsilon_0$)

Za kvantne tačke manjeg poluprečnika polarizacioni efekti su značajniji zbog većeg uticaja površine, a ukupna energija elektrona raste i zbog značajnijih kvantnih efekata. Kod kvantnih tačaka većeg poluprečnika, odnosno veće zapremine, uticaj indukovanog površinskog naelektrisanja na elektron je slabiji a uticaj kvantovanja slabi proporcionalno sa kvadratom poluprečnika kvantne tačke.

Slika 4 - Promena energije elektrona u osnovnom stanju (prvo rešenje za $l=0$, $1s$ stanje) u zavisnosti od vrednosti dielektrične propustljivosti matrice ϵ_2 , za dve veličine kvantne tačke $R=2.5$ nm i $R=5$ nm

4. ZAKLJUČAK

U radu je izračunata elektronska struktura kvantne tačke CdS u dielektričnoj matrici sa beskonačnom potencijalnom barijerom. Energije i talasne funkcije elektrona u kvantnoj tački, bez polarizacionih efekata,

određene su u sferno simetričnom potencijalu u okviru aproksimacije efektivne mase kao rešenja odgovarajuće Schrödinger-ove jednačine. Polarizacioni efekti su uvedeni iz rešenja Poisson-ove jednačine za slučaj da se tačkasto naelektrisanje nalazi bilo gde u nanosferi. Pokazano je da u nanodimenzionim poluprovodničkim strukturama energija vezanih stanja elektrona značajno zavisi od razlike dielektričnih propustljivosti kvantne tačke i matrice. Promenom dielektričnih svojstava matrice može se uticati na elektronske prelaze unutar provodne zone pa tako i na optička svojstva poluprovodne kvantne tačke. Kod složenijih poluprovodničkih nanostrukture (hetero strukturne kvantne tačke jezgro/barijera/ljuska) ovaj problem je kompleksniji jer se polarizacioni efekti javljaju na svim graničnim površinama.

5. ZAHVALNOST

Rad je urađen u okviru projekta No. III45003 koji je finansiran od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije.

LITERATURA

- [1] www.evidenttech.com
- [2] www.qdvision.com
- [3] www.nanosysinc.com
- [4] Romčević M, Romčević N, Kostić R, Kłopotowski S, Dobrowolski W, Kossut J, Čomor M, J. All.Comp. 497,p. 46-51, 2010.
- [5] Kostić R, Petrović-Damjanović M, Romčević N, Romčević M, D. Stojanović, Čomor M, D. J. All. Comp. 521, p. 134-140, 2012.
- [6] Kostić R, Stojanović D, Journal of nanophotonics, 5, 051810, 2011.
- [7] Fonoberov V. A, Pokatilov E. P, Phys. Rev. B 66, 085310, 2002.
- [8] Asmaa Ibral, Asmaa Zouitine, El Mahdi Assaid, Hicham El Achouby, El Mustapha Feddi, Francis Dujardin, Physica B458, p. 73-84, 2015.
- [9] Boichuk V. I, Bilynskyi I. V, R. Leshko Y. A, Ukr. J. Phys.53, p. 991, 2008.
- [10] Cristea M, Radu A, Niculescu E.C., J. Luminescence, 143, p. 592-599, 2013.
- [11] Stojanović D., Kostić R., Journal of nanoscience and nanotechnology 12, p. 8715-8720, 2012.

SUMMARY**SELF-POLARIZATION IN SPHERICAL QUANTUM DOT**

The electronic structures of CdS quantum dot (QD) with dielectric mismatch are calculated. Poisson equation is solved analytically in case of point charge placed inside semiconductor sphere embeded in dielectric matrix in case of different values of the dielectric permittivity of QD and matrix. The validity of the effective mass approximation for the conduction band is assumed. Schrödinger equation for one electron is solved analytically. On the basis of the Poisson equation solution self potential is examined and used as perturbation to calculate the self-polarization effect.

Key words: *self-polarization, quantum dot, Poisson equation*