

Mô hình hóa phổ hấp thụ của chấm lượng tử

Nguyễn Thế Lâm*

Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội 2

Ngày nhận bài 7.7.2015, ngày chuyển phản biện 14.7.2015, ngày nhận phản biện 10.8.2015, ngày chấp nhận đăng 17.8.2015

Bài báo cho thấy phổ hấp thụ của các chấm lượng tử hình hộp và hình cầu được xác định bằng phương pháp mô hình hóa. Thông qua mô hình tính toán, nhóm nghiên cứu đã tìm được các mức năng lượng được lượng tử hóa của các chấm lượng tử nêu trên. Đây là cơ sở xác định phổ hấp thụ của các chấm lượng tử (có thể áp dụng cho các chấm lượng tử bán dẫn). Xác suất tìm thấy hạt trên các mức năng lượng của hạt ở nhiệt độ cao cũng đã được thảo luận chi tiết. Từ đó xác định được sự phụ thuộc của phổ hấp thụ của các chấm lượng tử vào nhiệt độ.

Từ khóa: ảnh hưởng của hình dạng - kích thước của chấm lượng tử, mô hình hóa chấm lượng tử, phổ hấp thụ chấm lượng tử.

Chỉ số phân loại 1.3

SIMULATION OF ABSORPTION SPECTRA OF QUANTUM DOTS

Summary

The energy spectra of the box and sphere quantum dots were found by a simulation method. Based on the discreted-energy levels, the author simulated and pointed out the absorption spectra of the quantum dots with different shapes and sizes (may be applied for semiconductor quantum dots). The probability for electrons at temperature $T \neq 0K$ was clearly discussed. The study also determined the dependence of absorption spectra of semiconductor quantum dots on temperature.

Keywords: absorption spectra of quantum dots, effects of shape and size of quantum dots, simulation of quantum dots.

Classification number 1.3

Mở đầu

Chấm lượng tử bán dẫn là các cấu trúc ba chiều có kích thước nanomet mà các điện tử bị giam giữ. Để tạo ra các chấm lượng tử bán dẫn, người ta bao kín một loại bán dẫn này trong một loại bán dẫn khác mà nó có vùng cấm lớn hơn. Điều này được thực hiện với kích thước nanomet và có thể tương đương với bước sóng De Broglie của các điện tử. Từ đó, năng lượng của các điện tử bị giam giữ trong các chấm bị lượng tử hóa. Sự lượng tử hóa các mức năng lượng của các điện tử của chấm cũng còn phụ thuộc vào kích thước và vật liệu tạo nên chấm lượng tử. Các chấm lượng tử bán dẫn có thể được làm từ một số vật liệu bán dẫn khác nhau tùy thuộc vào mục đích sử dụng chấm. GaAs/InAs là các vật liệu phổ biến được dùng để tạo ra các chấm lượng tử. Phương pháp để chế tạo chấm lượng tử thường là tạo mầm hay còn gọi là phương pháp Stranski-Krastanow. Trong phương pháp này, bước một ta phải có một đế bán dẫn (ví dụ như GaAs). Bước tiếp theo, tạo nên một lớp ứot bằng việc tạo một mầm (InAs) trên đế. Khi các mầm InAs lớn lên trên lớp ứot, do tính chất cấu trúc của hai bán dẫn nó sẽ làm cho năng lượng tăng lên và hình thành các chấm lượng tử. Sau đó, các chấm lượng tử lại được đặt chìm trong GaAs và cứ như vậy quá trình lại lặp lại. Bình thường các chấm lượng tử có kích thước cỡ 10÷20 nm, nó tương đương với kích thước của 10÷50 nguyên tử. Như vậy, các chấm sẽ thể hiện như một nguyên tử nhân tạo lớn [1]. Các nghiên cứu về hình dạng và tính chất của các chấm lượng tử bán dẫn đã được nghiên cứu [2-4]. Các phép đo phổ hấp thụ của chấm lượng tử bán dẫn CdSe [5-6] và PbS [7]

* Email: nguyenthelam2000@yahoo.com

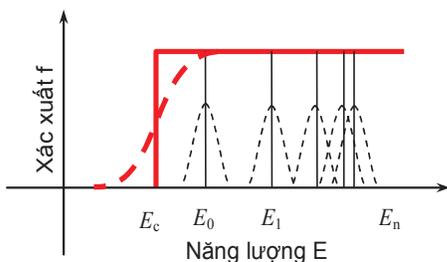
cũng cho thấy phổ hấp thụ phụ thuộc mạnh vào kích thước của các chấm lượng tử này. Hiện nay, các chấm lượng tử chế tạo được thường có dạng hình tháp, hình đĩa [8] và việc chọn được hình dạng và kích thước của chấm lượng tử bán dẫn là một vấn đề hết sức khó khăn trong quá trình chế tạo. Như vậy, vấn đề tồn tại là với những chấm lượng tử có hình dạng và kích thước khác nhau có ảnh hưởng như thế nào tới phổ hấp thụ của chúng. Câu trả lời cho vấn đề này phần nào được giải quyết trong mô hình của chúng tôi.

Việc khảo sát sự ảnh hưởng của nhiệt độ lên phổ hấp thụ của các chấm lượng tử trong mô hình của chúng tôi được đề xuất như sau: tại nhiệt độ $T = 0K$, xác suất tìm thấy hạt ở các mức năng lượng E_n dưới mức Fermi của chấm lượng tử hóa luôn là 100%. Khi $T \neq 0K$, xác suất này được thay bằng một phân bố Gausse $\exp[-\frac{(E - E_n)}{K_B T}]$, với E là năng lượng của hạt, E_n là các mức năng lượng của chấm, K_B là hằng số Boltzman và T là nhiệt độ tuyệt đối. Mặt khác, xác suất để tìm thấy hạt trong miền dẫn của bán dẫn khối cũng được thay bằng:

$$f_c = \frac{1}{\exp(\frac{E_c - E}{K_B T}) + 1} \quad (1)$$

Trong đó, f_c là xác suất tìm thấy hạt và E_c là đáy vùng dẫn trong bán dẫn khối. Như vậy, xác suất để tìm thấy điện tử trong các mức E_n của chấm lượng tử được xác định như sau:

$$f = \exp[-\frac{(E - E_n)}{K_B T}] \frac{1}{\exp(\frac{E_c - E}{K_B T}) + 1} \quad (2)$$



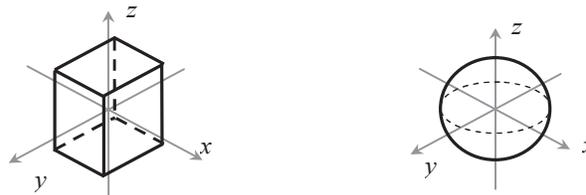
Hình 1: xác suất tìm thấy hạt trong bán dẫn khối (nét đậm) và trong chấm lượng tử (nét mảnh) khi ở $T = 0K$ (nét liền) và $T \neq 0K$ (nét đứt)

Phương trình cơ bản và thuật toán

Chuyển động của một điện tử trong chấm lượng tử bán dẫn được mô tả bằng phương trình Schrodinger [9]:

$$-\frac{\hbar}{2m} \Delta \psi_n(x, y, z) + V(x, y, z) \psi_n(x, y, z) = E_n \psi_n(x, y, z) \quad (3)$$

Trong đó, $V(x, y, z)$ là thế năng của chấm phụ thuộc vào hình dạng và vật liệu của chấm. Trong mô hình hóa chúng tôi lấy $V(x, y, z) = 0$ với các điểm bên trong chấm và $V(x, y, z) = V_0$ với những điểm ngoài chấm. Việc mô tả các chấm lượng tử có hình dạng bất kỳ có thể được biểu diễn bằng các điểm rời rạc trong không gian ba chiều. Trong giới hạn bài báo này, $V(x, y, z)$ chỉ xét trong trường hợp chấm là hình hộp và hình cầu với những kích thước khác nhau (hình 2).



Hình 2: hình dạng của các chấm lượng tử trong mô phỏng

Năng lượng và hàm sóng của phương trình (3) sẽ được tìm bằng phương pháp mô hình hóa. Mô hình này có thể áp dụng cho các chấm lượng tử bán dẫn nếu ta thay độ lớn của thế giam cầm bằng hiệu độ cao của hai khe năng lượng và góc năng lượng sẽ được tính tại đáy vùng dẫn của các bán dẫn có khe năng lượng nhỏ hơn. Ví dụ đối với chấm lượng tử AlGaAs/GaAs, ta sẽ lấy $V_0 = E_c(\text{AlGaAs}) - E_c(\text{GaAs})$. Năng lượng ở trạng thái thấp nhất sẽ lấy bằng E_c là đáy vùng dẫn của GaAs [10].

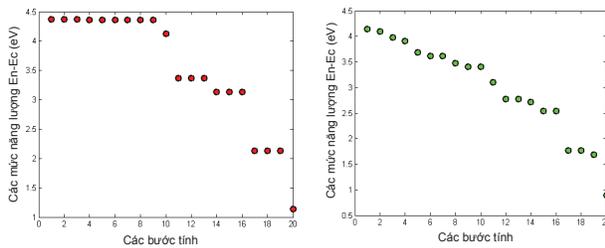


Hình 3: sơ đồ các bước mô phỏng chấm lượng tử

Thuật toán cho mô hình hóa tìm năng lượng và hàm sóng của các chấm lượng tử này được tiến hành như hình 3. Các mức năng lượng của các chấm sẽ là cơ sở để xác định phổ hấp thụ.

Các kết quả mô hình hóa

Bằng phương pháp hàm riêng, trị riêng [11], năng lượng của phương trình (3) cho các chấm lượng tử hình hộp và hình cầu với các kích thước khác nhau được biểu diễn ở hình 4 và hình 5.



Hình 4: 20 mức năng lượng thấp nhất của chấm lượng tử hình hộp kích thước 20x20x20 nm

Hình 5: 20 giá trị thấp nhất trong phổ năng lượng của chấm lượng tử hình cầu bán kính R = 10 nm

Từ hình 4 và 5 cho thấy, năng lượng của các chấm lượng tử đã bị lượng tử hóa, trong đó các mức năng lượng thấp nhất nằm cách khá xa nhau, trong khi các mức năng lượng cao hơn có xu thế tiến lại gần nhau hơn. Chi tiết cho các mức năng lượng được ghi cụ thể trong bảng 1 và bảng 2.

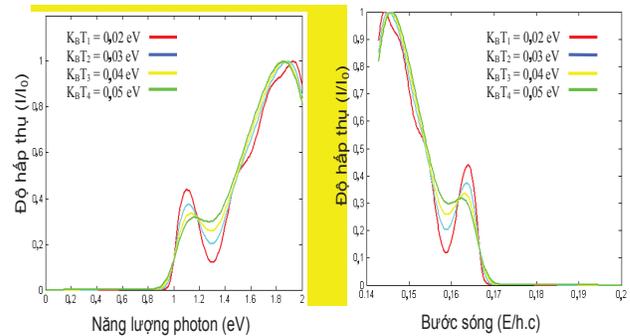
Bảng 1: các mức năng lượng của chấm lượng tử hình hộp kích thước 20x20x20 nm

$E_1 = 2,8336$	$E_2 = 2,8336$	$E_3 = 2,8336$	$E_4 = 2,4961$
$E_5 = 2,4961$	$E_6 = 2,4961$	$E_7 = 2,4961$	$E_8 = 2,4961$
$E_9 = 2,4961$	$E_{10} = 2,2487$	$E_{11} = 1,9435$	$E_{12} = 1,9435$
$E_{13} = 1,9435$	$E_{14} = 1,6961$	$E_{15} = 1,6961$	$E_{16} = 1,6961$
$E_{17} = 1,1436$	$E_{18} = 1,1436$	$E_{19} = 1,1436$	$E_{20} = 0,5910$

Bảng 2: các mức năng lượng của chấm lượng tử hình cầu bán kính R = 10 nm

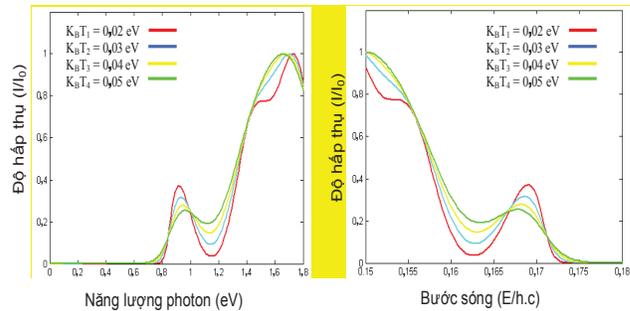
$E_1 = 4,1412$	$E_2 = 4,0996$	$E_3 = 3,9815$	$E_4 = 3,9122$
$E_5 = 3,6848$	$E_6 = 3,6140$	$E_7 = 3,6140$	$E_8 = 3,4732$
$E_9 = 3,4047$	$E_{10} = 3,4047$	$E_{11} = 3,0980$	$E_{12} = 2,7748$
$E_{13} = 2,7748$	$E_{14} = 2,7196$	$E_{15} = 2,5394$	$E_{16} = 2,5394$
$E_{17} = 1,7658$	$E_{18} = 1,7658$	$E_{19} = 1,6887$	$E_{20} = 0,8965$

Từ các mức năng lượng đã tính toán được và kết hợp với xác suất tìm thấy hạt ở nhiệt độ cao (2), ta có thể đi tìm phổ hấp thụ theo năng lượng và theo bước sóng của các chấm lượng tử. Các phổ hấp thụ của các chấm lượng tử được biểu diễn ở hình 6 và 7.



Hình 6: phổ hấp thụ theo năng lượng hạt (trái) và theo bước sóng (phải) của chấm lượng tử hình hộp kích thước 20x20x20 nm.

Trong đó, I_0 là cường độ ánh sáng đầu vào

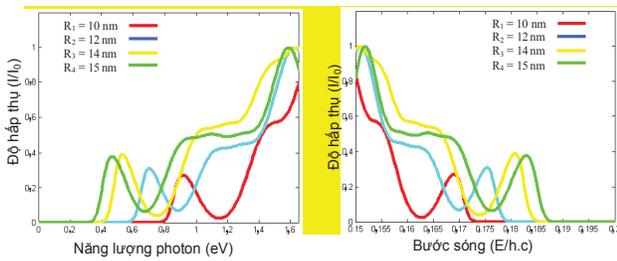


Hình 7: phổ hấp thụ theo năng lượng hạt (trái) và theo bước sóng (phải) của chấm lượng tử hình cầu R = 10 nm.

Trong đó, I_0 là cường độ ánh sáng đầu vào

Hình 6 và 7 cũng cho thấy, khi nhiệt độ tăng các đỉnh hấp thụ có xu thế dịch chuyển về phía ánh sáng có năng lượng cao hơn và đỉnh hấp thụ giảm và mở rộng hơn. Các kết quả này phù hợp định tính khá tốt với các kết quả thực nghiệm của L.R Fonseca, J.L Jimenez (1998) [9].

Ngoài ra, sự phụ thuộc của phổ vào kích thước của các chấm lượng tử cũng đã được chúng tôi tính toán và kết quả được thể hiện trong hình 8. Từ đây cho thấy, khi kích thước của các chấm lượng tử tăng dần, các đỉnh của phổ có xu thế dịch chuyển về phía ánh sáng có năng lượng thấp hơn và chúng cũng có xu hướng cao hơn, hẹp hơn, gần với bán dẫn khối.



Hình 8: sự phụ thuộc của phổ hấp thụ vào kích thước của các chấm lượng tử hình cầu

Kết luận

- Bằng phương pháp hàm riêng trị riêng, chúng tôi đã tìm được phổ năng lượng của các chấm lượng tử hình hộp và hình cầu ở các kích thước khác nhau. Trong các phổ này, năng lượng của các chấm đã bị lượng tử hóa. Các chấm lượng tử có hình dạng khác chưa được nghiên cứu trong nội dung bài báo này, song hoàn toàn có thể thực hiện được nếu mô tả thể giam cầm $V(x,y,z)$ dưới dạng một ma trận 3 chiều với các phần tử của ma trận biểu diễn các giá trị tương ứng của thể giam cầm.

- Chúng tôi đã đề xuất một phương pháp xác định xác suất tìm thấy hạt ở nhiệt độ cao cho các điện tử trong chấm lượng tử cũng như trong bán dẫn khối để phù hợp với mô hình tính toán.

- Với phổ năng lượng đã bị lượng tử hóa của các chấm lượng tử, chúng tôi đã mô hình hóa được phổ hấp thụ của các chấm lượng tử bán dẫn với những hình dạng, kích thước và ở các nhiệt độ khác nhau. Các kết quả này phù hợp định tính khá tốt với các kết quả thực nghiệm đo được trên các chấm lượng tử CdSe [5, 6].

- Với phương pháp mô hình hóa, chúng ta có thể dễ dàng giải quyết được các bài toán với các chấm lượng tử 3 chiều có hình dạng bất kỳ, đây là một thách thức với các phương pháp giải tích.

Tài liệu tham khảo

[1] Marta Markiewicz, Heinrich Voss (2006), *Electronic states in three dimensional quantum dot/wetting layer structures*, Computational Science and Its Applications-ICCSA, pp.684-693,

Springer Berlin Heidelberg.

[2] D Leonard, M Krishnamurthy, C.M Reaves, S.P Denbaars, P.M Petroff (1993), “Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces”, *Applied Physics Letters*, **63(23)**, pp.3203-3205.

[3] H Marchand, P Desjardins, S Guillon, J.E Paultre, Z Bougrioua, R.Y.F Yip, R.A Masut (1997), “Metalorganic vapor phase epitaxy of coherent self-assembled InAs nanometer-sized islands in InP(001)”, *Appl. Phys. Lett*, **71**, pp.527-529.

[4] Y Toda, O Moriwaki, M Nichioka, Y Arakawa (1999), “Efficient Carrier Relaxation Mechanism in InGaAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots Based on the Existence of Continuum States”, *Phys. Rev. Lett*, **82**, pp.4114.

[5] Kongkanand A, Tvrđy K, Takechi K, Kuno M, Kamat P.V (2008), “Quantum dot solar cells. Tuning photoresponse through size and shape control of CdSe-TiO₂ architecture”, *J Am Chem Soc*, **Vol.130**, pp.4007-4015.

[6] Jianjun Tian, Guozhong Cao (2013), “Semiconductor quantum dot-sensitized solar cells”, *Nano Reviews*, **Vol.4**, p.22578.

[7] L Sun, J Fang, J.C Reed, L Estevez, A.C Bartnik, B.R Hyun, F.W Wise, G.G Malliaras, E.P Giannelis (2010), “Lead-Salt Quantum-Dot Ionic Liquids”, *Small*, **6**, pp.638-641.

[8] U.W Pohl, K Pötschke, A Schliwa, F Guffarth, D Bimberg N.D Zakharov, P Werner, M.B Lifshits, V.A Shchukin, D.E Jesson (2005), “Evolution of a multimodal distribution of self-organized InAs/GaAs quantum dots”, *Phys.Rev. B*, **72**, pp.245-332.

[9] L.R Fonseca, J.L Jimenez (1998), “Electronic coupling in InAs/GaAs self-assembled stacked double-quantum-dot systems”, *Physical Review B*, **Vol.58**, pp.9955-9960.

[10] M Benyoucef, A Rastelli, O.G Schmidt, S. M Ulrich, P Michler (2006), “Temperature dependent optical properties of single, hierarchically self-assembled GaAs/AlGaAs quantum dots”, *Nanoscale Research Letters*, **1(2)**, pp.172-176.

[11] Anderson, E.Z Bai, C Bischof, S Blackford, J Demmel, J Dongarra, J Du Croz, A Greenbaum, S Hammarling, A McKenney, D Sorensen (1999), *LAPACK User's Guide* (http://www.netlib.org/lapack/lug/lapack_lug.html), Third Edition, SIAM, Philadelphia.