

文章编号:1000-582X(2007)03-0105-04

盒形量子点多电子系统基态能和化学势的计算*

黄晓亚, 赵 铧, 张定梅

(重庆大学 数理学院 凝聚态物理研究所, 重庆 400030)

摘要:根据密度泛函理论,用自洽迭代和变分法求解有电场和磁场下的三维盒形量子点中电子($N=1\sim 12$)的薛定谔方程,对绝对零度情况下处于基态的电子的总能量和化学势进行了数值计算,并讨论了电场和磁场对量子点中电子基态能量的影响,得出了盒形量子点多电子系统的一些基态性质.

关键词:盒形量子点;基态能;化学势;外加磁场和电场

中图分类号:0488

文献标识码:A

随着纳米尺度制造工艺和晶体生长技术的快速发展,人们已经能成功的制备出具有超小结构的半导体量子点^[1-2]. 其中最常见的是在夹于二层绝缘的 Al-GaAs 之间的 GaAs 层上通过加金属电极门电压来形成的半导体量子点. 通过控制门电压,量子点中的电子数可以从 1 逐渐增加到 100 左右,从而形成少电子系统,这种少电子系统遵从量子力学规律,有极强的量子效应. 半导体量子点的微小结构里蕴藏着许多未被发现的不同于块状样品的现象,并将可能成为未来微电子器件的首选结构. 因为当半导体材料从体相逐渐减小至一定临界尺寸以后,其载流子的运动将受到强量子封闭性的限制(类似于在箱中运动的粒子),导致其动能的增加,相应的电子结构也从体相的连续能带结构变成了准分裂的能级(类似于分子),并且由于动能的增加使原来的能隙增加(即光吸收向短波方向移动),粒径越小,能隙越大. 又由于半导体材料的多样化和半导体量子点尺寸的可控性,相应器件的波长范围可以从微波、红外、可见光一直到紫外,并且有可能在一定范围内调制,这就带来了广泛的应用前景. 出于上述考虑,有必要全面了解和研究量子点中各种载流子的物理特性,而电子态的性质则是其中一个重要而复杂的问题. 文中根据密度泛函理论,用计算机模拟和变分原理相结合的方式,对三维盒形量子点模型中电子的基态能量和化学势进行了计算,分析了电场和磁场对量子点中电子基态能量的影响,从而说明了盒形量子点中的电子在受到强量子封闭性限制时由于动能

的增加使得相应的电子结构发生变化的规律.

1 模型与理论计算方法

考虑一个边长为 l , 厚度为 h 的盒型量子点 ($l > h$). 量子点中有数十个电子,电子在 z 方向处于无限深势阱中,在 (x, y) 平面内受到抛物线型限制势,不考虑电子在 z 方向与 (x, y) 平面的耦合. 若沿量子点的 z 轴方向同时加上均匀的电场 F 和磁场 $B = \nabla \times A$,则量子点中电子的薛定谔方程为:

$$\left[\frac{1}{2m^*} (P(x_i, y_i) + qA)^2 + \frac{1}{2m^*} P_z^2 + V_c(x_i, y_i) + V_b(x_i, y_i) + V_{ex}(x_i, y_i) + V_{corr}(x_i, y_i) \right] \psi_i(x_i, y_i, z_i) + [qFz + V(z_i)] \psi_i(x_i, y_i, z_i) = \varepsilon_i \psi_i(x_i, y_i, z_i). \quad (1)$$

对方程进行分离变量得出 (x, y) 平面内和 z 轴方向的薛定谔方程. 沿 z 轴方向的薛定谔方程为:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(z) + qFz \right) \varphi_i(z) = \varepsilon_{i1} \varphi_i(z), \quad (2)$$

$$V(z) = \begin{cases} 0 & |z| < \frac{h}{2} \\ \infty & |z| \geq \frac{h}{2} \end{cases}$$

其中, \hbar 是普朗克常数, m^* 是电子的有效质量, $\varphi_i(z)$ 是第 i 个电子沿 z 方向的波函数, ε_{i1} 为对应的能量本征值. 对于该方程,其本征解严格说为 2 个 Airy 函数的线性组合. 但利用 Airy 函数求解是比较复杂的,所以采用变分法来求方程的近似解. 选取试探波函数:

* 收稿日期:2006-10-17

作者简介:黄晓亚(1980-),女,重庆大学硕士研究生,主要从事凝聚态理论研究. 赵铧,男,凝聚态物理研究所所长,教授,

E-mail: huazhao@cqu.edu.cn.

$$\varphi(z) = \begin{cases} N_0(\beta) \cos(\frac{\pi z}{h}) \exp(-\frac{\pi z}{h}) & |z| < h/2, \\ 0 & |z| \geq h/2, \end{cases} \quad (3)$$

式中 β 为变分参数, $N_0(\beta)$ 为正交系数, 由归一化条件来决定.

$$N_0^2(\beta) = 4\beta(\beta^2 + \pi^2) [h\pi^2(1 - e^{-2\beta})]^{-1}.$$

则本征能量 ε_{n1} 为:

$$\varepsilon_{n1} = \varepsilon_0(1 + \frac{\beta^2}{\pi^2}) + qFh \left\{ \frac{1}{2\beta} + \frac{\beta}{\beta^2 + \pi^2} - \frac{1}{2} \coth\beta \right\}. \quad (4)$$

其中 ε_0 为零场时基态的能量. 沿 x, y 平面的薛定谔方程为:

$$\frac{1}{2m^*} (P(r) + qA)^2 \varphi_i(r_i) + \left[\begin{matrix} V_c(r_i) + V_b(r_i) + \\ V_{ex}(r_i) + V_{corr}(r_i) \end{matrix} \right] \varphi_i(r_i) = \varepsilon_{n2} \varphi_i(r_i). \quad (5)$$

$\varphi_i(r_i)$ 是第 i 个电子在 x, y 平面内的波函数, ε_{n2} 为对应的能量本征值. V_c 是库仑作用项, $V_{ex}(r_i)$ 和 $V_{corr}(r_i)$ 分别是交换项和关联项; $V_b(r_i) = \frac{1}{2} m^* \omega^2 r^2$, 其抛物线型势垒的强度因子采用参考文献(3)中所述方法求得. $V_c(r_i)$ 满足如下关系式:

$$V_c(r_i) = \sum_{j=1}^N \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int_s \frac{q^2 |\varphi_j(r_j)|^2}{|r_i - r_j|} dr_j, \quad (6)$$

其中 N 是量子点中总的电子数, ϵ_0 是真空介电常数, ϵ_r 是相对介电常数.

根据二维电子气理论, 交换能和相关能的表达式分别是:

$$E_{ex} = -\frac{8\sqrt{2}}{3\pi} \frac{1}{r_s},$$

$$E_{corr} = -C_0 \frac{1 + C_1 w}{1 + C_1 w + C_2 w^2 + C_3 w^3}, w = \sqrt{r_s}.$$

其中,

$$r_s = \frac{a}{a_0}, a = \frac{1}{\sqrt{\pi\rho}},$$

a_0 是玻尔半径, ρ 是局域电子密度, $C_0 = -0.3578$,

$C_2 = 0.9052, C_3 = 0.4165$. 由 $V_{ex} = \frac{d(\rho E_{ex})}{d\rho}, V_{corr} =$

$\frac{d(\rho E_{corr})}{d\rho}$, 得到:

$$V_{ex} = -\frac{4\sqrt{2}}{\pi} \frac{1}{r_s}, \quad (7)$$

$$V_{corr} = -C_0 \frac{1 + d_1 w + d_2 w^2 + d_3 w^3 + d_4 w^4}{(1 + C_1 w + C_2 w^2 + C_3 w^3)^2}. \quad (8)$$

其中 $d_1 = 2.26, d_2 = 2.635, d_3 = 2.007, d_4 = 0.70597$. 这里交换能和相关能以及交换势和相关势采用里德堡能量单位, 通过转换因子 $2.17989 \times 10 \left(\frac{m^*}{m\epsilon_r} \right)$ 可以得到国际单位, 其中 m 是自由电子的质量.

用自洽迭代的方法数值求解方程(5)-(8). 先假设量子点中的电子态密度为 $\rho(r)$, 将其代入方程(6)-(8)中得出 $V_c(r_i), V_{ex}(r_i), V_{corr}(r_i)$. 解式(5)将得出新的电子态密度 $\rho(r)$, 重复以上步骤直到在要求的精度范围内. 用五点差分法对薛定谔方程进行分离, 采用 Dirichlet 边界条件, 得出一带型矩阵. 求出该矩阵本征值和本征矢, 把得出的本征矢作为初始量重新代入方程, 重复以上步骤直到连续的两次迭代之间产生的本征值之差达到无穷小(一般在 10^{-5} 和 10^{-8} 之间).

量子点中电子的总能量表达式 $E(N)$ 为:

$$E(N) = \sum_{i=1}^N (\varepsilon_{n1} + \varepsilon_{n2}) - \frac{1}{2} \iint \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\rho(r)\rho(r')}{|r-r'|} dr dr' + \int \rho(r) \left\{ \begin{matrix} E_{ex}[\rho(r)] + E_{corr}[\rho(r)] - \\ V_{ex}[\rho(r)] - V_{corr}[\rho(r)] \end{matrix} \right\} dr, \quad (9)$$

N 是量子点中电子的总数目, $\rho(r)$ 是总的电子密度, 满足归一化条件 $\int \rho(r) dr = N$.

量子点的一个很重要的特性是其中的电子数目与化学势的关系. 化学势 $\mu(N)$ 指在具有 $(N-1)$ 个电子的系统中添加第 N 个电子所需要的能量. 如果不考虑电子之间的相互作用, 该能量即是第 N 个电子所占据能态对应的能量, 所以化学势 $\mu(N)$ 满足:

$$\mu(N) = E(N) - E(N-1). \quad (10)$$

2 数值计算与结果分析

在电场 F 和磁场 B 都为零的情况下, 以 GaAs 盒形量子点为研究对象, 计算了不同尺寸量子点的电子基态能量及化学势. 计算时有关参数的取值分别为 $\epsilon_r = 12.9, m^* = 0.067 m_e$, (其中, m_e 为自由电子的质量, $h = 6 \text{ nm}$), 计算结果见图 1 和图 2. 图 1 为不同尺寸 l 的正方盒形量子点(即 $l_x = l_y = l$) 中电子基态能量随电子数的变化曲线, 从上到下量子点尺寸 l 依次为 $15.5 \text{ nm}, 17.5 \text{ nm}, 19.5 \text{ nm}, 21.5 \text{ nm}, 23.5 \text{ nm}, 25.5 \text{ nm}$. 从图 1 可以看出: 量子点中电子的总能量都是随着电子个数的增加而增加. 而量子点的尺度 l 越小, 电子的基态能量越大; 量子点的尺度 l 越大, 电子

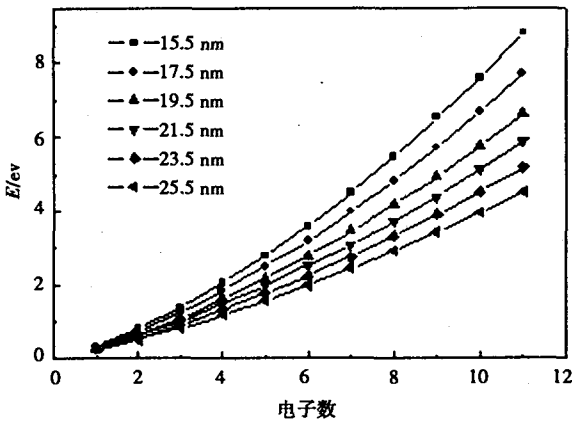


图1 不同尺寸的正方形 GaAs 量子点中电子基态能量与电子数的关系

的基态能量反而越小. 即量子点中多电子系统的基态能量随着量子点尺寸的减小而增大,这和文献[7]中所得的结果一致. 图2为长方盒形量子点(即 $l_x:l_y = 3:4$)的化学势随量子点尺寸的变化曲线,图中的线从下到上依次为 $\mu(2), \mu(3), \mu(4), \mu(5), \mu(6), \mu(7), \mu(8), \mu(9), \mu(10), \mu(11)$. 从图2可以看出,量子点的化学势 $\mu(N)$ 随着量子点尺寸的增加而减小,而

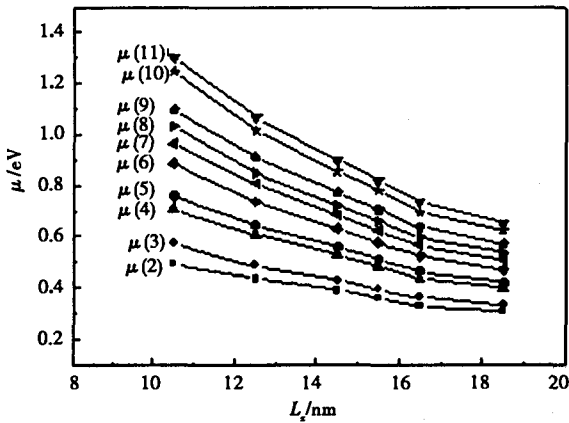


图2 长方盒形 GaAs 量子点化学势与尺寸的关系

且 $\mu(11)$ 随量子点尺寸的变化比 $\mu(2)$ 的变化要显著的多. 当 $l_x = 10.5 \text{ nm}$ 时,量子点的化学势 $\mu(10) - \mu(9)$ 比 $\mu(11) - \mu(10)$ 大的多;而当 $l_x = 18.5 \text{ nm}$ 时,量子点的化学势 $\mu(10) - \mu(9)$ 与 $\mu(11) - \mu(10)$ 之间的差别就不是太大. 即量子点的化学势之间的差值 $\mu(N) - \mu(N-1)$ 随量子点尺寸的增大而减小,当量子点的尺寸达到 $l_x = 100 \text{ nm}$ 时, $\mu(N) - \mu(N-1) = \text{常量}$. 这是因为电子的运动受到抛物型限制势的作用,导致其动能的增加,相应的电子结构变成准分裂的能级(类似于分子)所导致. 量子点中能量量子化与 $\frac{1}{L^2}$ 成正比,而库仑相互作用与 $\frac{1}{L}$ 成正比,所以当量子点足够大

时,其量子特性将被经典性质代替,化学势 $\mu(N)$ 的分布将会是均匀的.

在磁场 $B = 0$, 电场 $F \neq 0$ 的情况下,计算了 GaAs 盒形量子点的 Stark 能量移动,并讨论了它与量子点厚度和电场强度的关系,计算结果见图3和图4. 其中图3为电场 $F = 5 \times 10^7 \text{ V/m}$,量子点的边长 $L = 25.5 \text{ nm}$,点内有5个电子时,Stark 能量移动随厚度 h 的变化曲线. 由该图可以看出当电场强度一定时,随着量子点厚度 h 的增大,Stark 能量移动也迅速增大;图4为当量子点的厚度 $h = 6 \text{ nm}$,边长 $L = 25.5 \text{ nm}$,点内有5个电子时,Stark 能量移动随电场强度的变化曲线. 由该图可以看出当量子点的尺寸一定时,随着电场强度的增大,Stark 能量移动也迅速增大. 这个结果和量子阱,

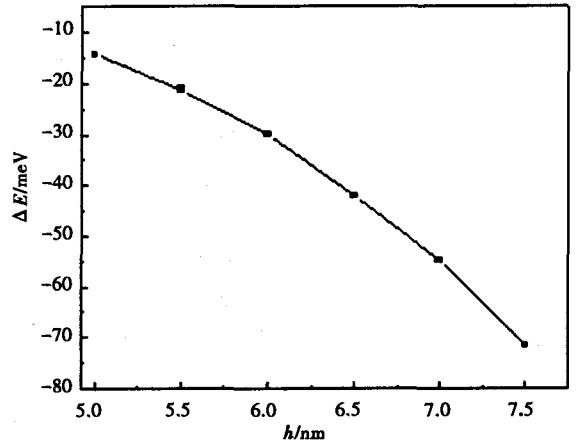


图3 GaAs 盒形量子点 Stark 能量移动随厚度 h 的变化曲线

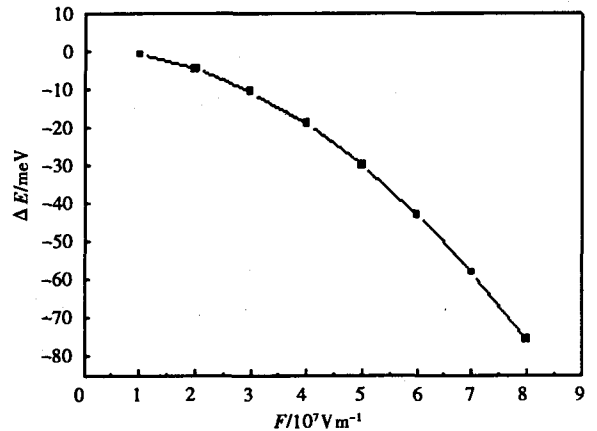


图4 GaAs 盒形量子点 Stark 能量移动随电场强度 F 的变化曲线

量子线中的结果是相类似的. 在电场 $F = 0$, 磁场 $B \neq 0$ 的情况下,计算了 InSb 盒形量子点中电子的基态能,并讨论了有磁场时与无磁场时量子点中电子基态能的变化 ΔE 与量子点尺寸的关系,计算结果见图5. 计算

时取 $\epsilon_r = 17.88, m^* = 0.0138 m_e, h = 6 \text{ nm}, B = 10 \text{ T}, l_x = l_y = l$, 电子数 $N = 6$. 由图5可以看出, 磁场使得量子点中电子基态能的增加随量子点尺寸的增大而急剧增大; 也就是说量子点的尺寸越大, 电子基态能受磁场的影响也便越大. 这是由于量子点的尺寸限制效应造成的.

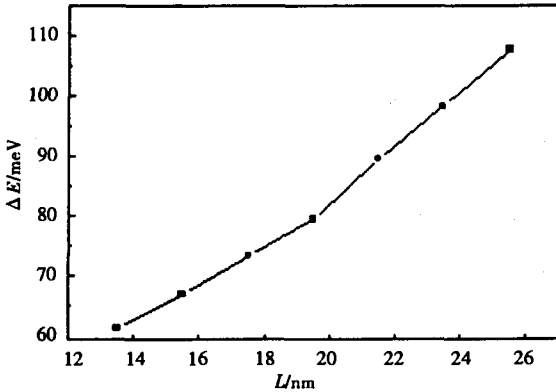


图5 电子的基态能与无磁场时基态能的变化 ΔE 随量子点尺寸的变化曲线

3 结论

根据密度泛函理论, 对三维盒形量子点模型进行了数值计算. 从计算结果可以看出, 量子点中电子基态能量和化学势是电子数和量子点尺度的函数, 电子基态能量和化学势随着电子数 N 的增加而增大, 随着量子点尺度的增加而减小. 量子点尺度越小, 量子效应也就越显著. 量子点中电子的 Stark 能量移动 ΔE 随电场强度 F 和量子点厚度 h 的增加而增加. 还发现量子点

的尺度越大, 电子基态能受磁场的影响也便越大, 这正是量子点尺寸限制效应的结果. 计算方法是量子点模型的模拟, 由于计算条件设施的限制, 计算的过程比较粗糙. 但是也得出量子点中电子的一些基本性质和变化规律, 更好的模拟需要用到更大的计算机.

参考文献:

- [1] BRYANT G W. Electronic structure of ultrasmall quantum-well boxes[J]. *Phys Rev Lett*, 1987, 59:1140.
- [2] KUMAR A, LAUX S E, STERN F. Electron states in a GaAs quantum dot in a magnetic field[J]. *Phys Rev*, 1990, B42: 5166.
- [3] MACUCCI M, HESS KARL, IAFRATE G J. Electronic energy spectrum and the concept of capacitance in quantum dots[J]. *Phys Rev*, 1993, B48:17354.
- [4] TANATAR B, CEPERLEY D M. Ground state of the two-dimension electron gas[J]. *Phys Rev*, 1989, B39:5005.
- [5] 马文淦. 计算物理学[M]. 北京: 科学出版社, 2005: 03-16.
- [6] KOHN W, SHAM L J. Self-consistent equation Inclusion exchange and correlation effects [J]. *Phys Rev*, 1965, 140:A1133.
- [7] 王一中. 双电子量子点系统的 Hartee-Fock 解[J]. 福建师范大学学报: 自然科学版, 1997, 13(2): 33-36.
- [8] SUKUMAR B, NARANEETHA K KRISHNAN. Polarizability of a carrier in an isolated well of a quantum-ellw wire[J]. *Phys Rev B*, 1990, 41: 12911.

Simulation of Electronic Ground Energy and Chemical Potential of Box Quantum Dot

HUANG Xiao-ya, ZHAO Hua, ZHANG Ding-mei

(Institute of Condensed matter physics, College of Mathematics and Physics
Chongqing University, Chongqing 400030, China)

Abstract: Using density-functional theory, the Schrödinger equation of a 3D box quantum dot in an electric field and a magnetic field has been solved self-consistently and variationally. The ground energy and the chemical potential have been computed in the limit of zero temperature. The author the influence of an electric field and a magnetic field on the ground energy of the box quantum dot.

Key words: box quantum dot; ground energy; chemical potential; applied magnetic and electric fields