

文章编号: 1000-5013(2009)02-143-04

# nc-Si/SiO<sub>2</sub> 球形量子点的三阶极化率

刘明强, 郭震宁, 杨小儒

(华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 泉州 362021)

摘要: 在有效质量近似下, 采用无限深势阱, 理论计算 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 球形量子点导带中的电子束缚态, 并利用紧束缚密度矩阵理论, 推导出共振三阶极化率的表达式. 通过数值模拟, 分析讨论 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 球形量子点的三阶极化率与量子点半径、入射光子的能量和弛豫相的关系. 结果表明, 在强受限中, 三阶极化率与量子点半径、入射光子能量和弛豫相有着显著的关系. 随着量子点半径的增大、入射光子能量的增大和弛豫相的减小, 三阶极化率都有不同程度的增强.

关键词: 量子点; 无限深势阱; 三阶极化率; nc-Si/SiO<sub>2</sub>

中图分类号: O 472<sup>+</sup>. 3

文献标识码: A

自 20 世纪 70 年代量子点<sup>[1]</sup>的概念提出以来, 有关半导体量子点非线性光学效应的研究十分活跃<sup>[2-9]</sup>. 量子点是一种人工剪裁材料, 与体材料相比具有显著的非线性光学效应, 激发阈值也大大降低, 在锁模、光电调制器、光学双稳器件, 以及新型的激光器等光电器件方面有着广阔的应用前景<sup>[10-11]</sup>. 随着制造工艺的提高, 人们用物理或化学的方法制造出各种不同形状的量子点, 如盘形、箱形、岛状和球形量子点. 在量子点系统中, 尺寸从几纳米到几百纳米不等, 载流子的运动在三维空间受限, 使得能级量子化而具有独特的物理光学性质. nc-Si/SiO<sub>2</sub> 作为一种镶嵌结构量子点材料, nc-Si 被薄膜 SiO<sub>2</sub> 包覆. SiO<sub>2</sub> 具有极高的带隙(8.8 eV), 当它与 Si 形成异质结后, 导带和价带的能带偏移分别是 3.15, 4.55 eV, 所以, nc-Si/SiO<sub>2</sub> 量子点结构对电子和空穴都具有很强的量子限制效应. 另外, 由于制造工艺的提高, 使得 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 量子点制造成本大大降低, 而它与成熟的微电子工艺兼容又极大地拓展了其应用性. 本文采用无限深势阱模型、有效质量近似, 分析讨论了球形 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 量子点的三阶极化率.

## 1 理论推导

采用无限深势阱、有效质量近似, 考虑具有均匀的介电常数  $\epsilon$  的球形量子点. 系统的 Hamilton 算符可写为

$$H = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \nabla_e^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \nabla_h^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon r_{e,h}}. \quad (1)$$

式(1)中,  $m_e^*$ ,  $m_h^*$  分别为电子和空穴的有效质量, 粒子被限制无限深势阱中.

考虑强受限系统, 即量子点半径  $R_0$  小于体材料激子玻尔半径  $a_B$  的情况. 在强受限中, 电子和空穴的受限动能远远大于它们之间的库仑相互作用. 因此, 形成激子的电子和空穴可以看成各自独立的带电粒子, 激子能量近似由电子和空穴限域动能来决定, 电子和空穴能级分别量子化. 下面, 讨论一个电子经过光激发由价带跃迁到导带的情况(图 1).

采用球坐标, 其薛定谔方程为

$$\left\{ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + \frac{2\mu}{\hbar^2} (E - V) \right\} \Psi_e(r, \theta, \varphi) = 0. \quad (2)$$

收稿日期: 2008-02-03

通信作者: 郭震宁(1958), 男, 教授, 主要从事光电子材料与器件的研究. E-mail: znguo2003@yahoo.com.

基金项目: 福建省自然科学基金资助项目(E0410018); 国务院侨办科研基金资助项目(06QZR02); 泉州市科技计划重点项目(2008G7)

由于电子被限制在无限深势阱中, 根据边界条件, 在边界  $r= R_0$  处的波函数为零. 然后, 利用全空间归一化条件, 解薛定谔方程得到

$$\Psi_e(r, \theta, \varphi) = \sqrt{\frac{2}{R^3}} \frac{j_l(k_{ln}r)}{(k_{ln}R)} Y_{ln}(\theta, \varphi), \tag{3}$$

$Y_{ln}(\theta, \varphi)$  是归一化球谐函数,  $j_l$  是  $l$ th 球 Bessel 函数, 系数  $k_{ln}$  为质心运动量子数, 满足

$$j_l(k_{ln}R_0) = 0 \tag{4}$$

电子能级为

$$E = E_g + \frac{\hbar^2 k_{ln}^2}{2m_e^* R_0^2}. \tag{5}$$

其中,  $E_g$  为体材料的光学带隙.

假定系统受到一外界光电场激发, 则

$$\tilde{E}(t) = E_0 \cos(\omega t). \tag{6}$$

外电场与系统的相互作用很弱, 可以把光场的扰动看作微扰进行处理. 根据量子力学理论, 单电子密度矩阵  $\rho$  算符随时间演化遵从下列方程, 有

$$\frac{\partial \rho_{ij}^{(n)}}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [ [H_0, \rho_{ij}^{(n)}] - i\hbar \Gamma_{ij} \rho_{ij}^{(n)} ] - \frac{1}{i\hbar} [ \varepsilon \tilde{E}(t), \rho_{ij} ]. \tag{7}$$

上式中,  $H_0$  是没有外加电场时的系统哈密顿量,  $\rho^{(0)}$  是未受扰动时的密度矩阵,  $\Gamma_{ij}$  是弛豫率. 将  $\rho$  展开成幂级数的形式, 则有

$$\rho(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \rho^{(n)}(t), \tag{8}$$

电场  $\tilde{E}(t)$  引起的电极化强度  $P(t)$ , 可以通过密度矩阵算符  $\rho$  表示为

$$P^{(n)}(t) = \frac{1}{S} \text{tr}(\varepsilon \rho^{(n)}) \tag{9}$$

式(9)中,  $S$  是相互作用面积,  $\text{tr}(\varepsilon \rho^{(n)})$  表示对矩阵  $\varepsilon \rho^{(n)}$  求迹. 同时,  $P(t)$  也可以展开为电场的级数形式, 只取前 3 项, 有

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi_{\omega}^{(1)} E_0 \exp(-i\omega t) + \varepsilon_0 \chi_{\omega}^{(2)} E_0^2 \exp(-2i\omega t) + \varepsilon_0 \chi_{\omega}^{(3)} E_0^3 \exp(-3i\omega t) + \dots, \tag{10}$$

式(10)中,  $\varepsilon_0$  是真空介电常数,  $\chi_{\omega}^{(1)}$ ,  $\chi_{\omega}^{(2)}$  和  $\chi_{\omega}^{(3)}$  分别为线性极化率、二阶和三阶非线性极化率. 在中心对称系统中, 二阶非线性极化率为零, 只考虑三阶非线性极化率. 在紧束缚近似下, 利用密度矩阵<sup>[12]</sup>, 得到共振条件下的三阶非线性极化率为

$$\chi_{\omega}^{(3)} = \frac{Ne^4 \mu_{0,1} \mu_{1,2} \mu_{2,3} \mu_{3,0}}{\varepsilon_0} \times \frac{1}{[ (E_{3,0} - 3\hbar\omega - i\hbar\Gamma_{3,0}) (E_{2,0} - 2\hbar\omega - i\hbar\Gamma_{2,0}) (E_{1,0} - \hbar\omega - i\hbar\Gamma_{1,0}) ]^{-1}}. \tag{11}$$

$E_{i,j} = E_i - E_j$  是导带中不同电子能级之间跃迁能量,  $N$  是量子点中的电子浓度, 而跃迁矩阵元为

$$\mu_{i,j} = | \langle \Psi_i | r | \Psi_j \rangle |. \tag{12}$$

## 2 数值模拟

下面, 以 nc-Si/SiO<sub>2</sub> 量子点为例进行数值模拟. 硅量子点镶嵌于 SiO<sub>2</sub> 介质中, 计算过程中采用如下参数<sup>[9, 13]</sup>: 电子有效质量  $m_e^* = 0.26m_0$  ( $m_0$  是自由电子质量),  $E_g = 1.12 \text{ eV}$ ,  $N = 5 \text{ nm}^{-3}$ , 同时, 弛豫量  $\hbar\Gamma_{1,0} = 2\hbar\Gamma_{2,0} = 3\hbar\Gamma_{3,0} = \hbar\Gamma$ .

图 2 为跃迁矩阵元  $|\mu_{0,1} \mu_{1,2} \mu_{2,3} \mu_{3,0}|$  随量子点半径 ( $R$ ) 变化的关系. 从图 2 中可以看出, 随着量子点半径的

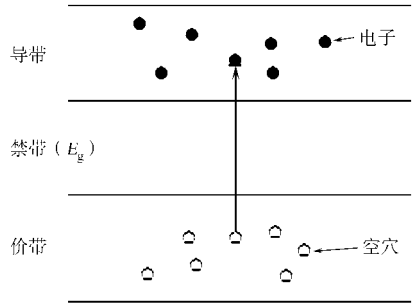


图 1 电子带的示意图

Fig. 1 Schematic of electronic band

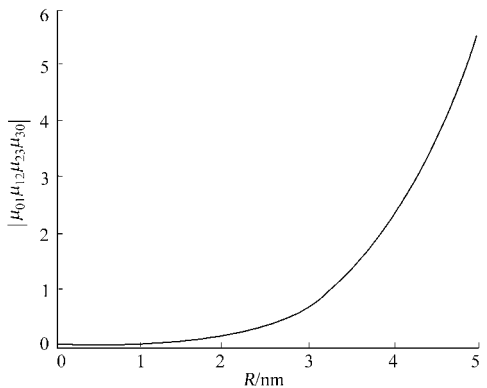


图 2 跃迁矩阵元随量子点半径变化的曲线

Fig. 2 Variation of the transition matrix element with different radius of quantum dots

增大, 跃迁矩阵元逐渐增大.

当量子点半径分别为 3.5, 3.0 nm 时, 三阶极化率的模、实部和虚部与入射光子能量的关系, 如图 3 所示. 图 3 中, 弛豫相 $\hbar\Gamma=3\text{ meV}$ . 从图 3 中可以看出, 随着量子点半径的增大, 曲线逐渐红移. 这是量子点半径的增大, 使得能级间隔减小导致的. 同时, 随着量子点半径的增大, 共振峰增强. 这是跃迁矩阵元随着量子点半径的增大而逐渐增大导致的.

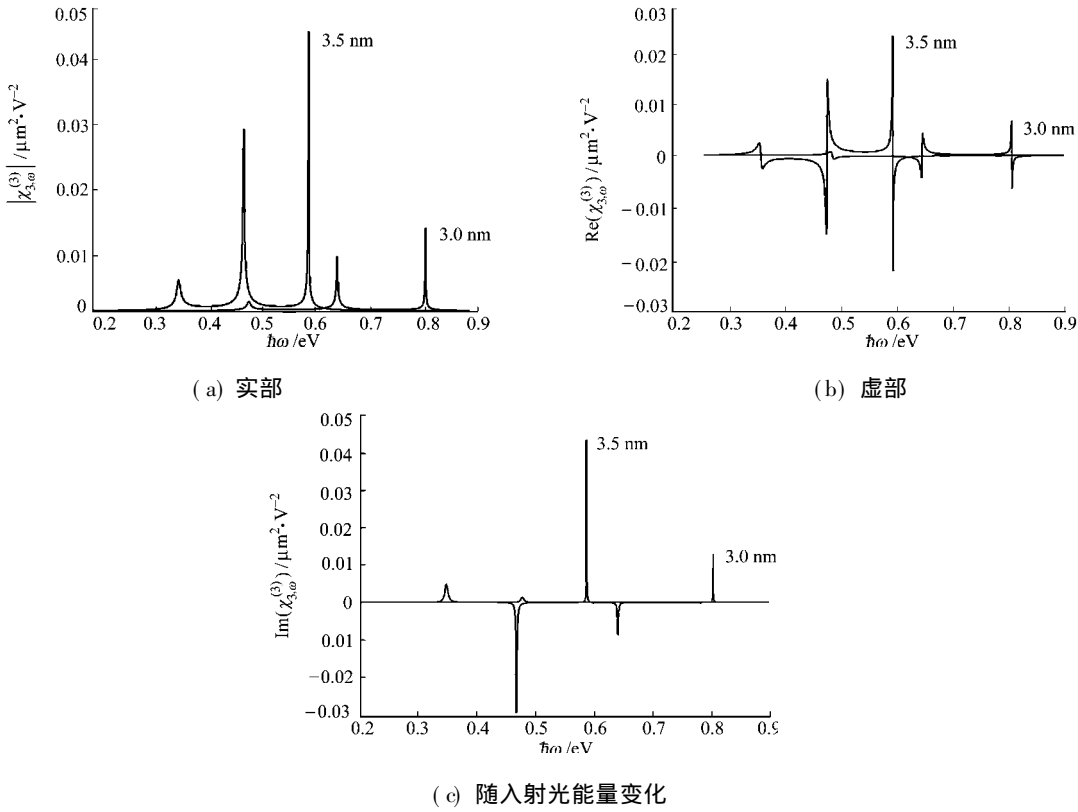


图 3 不同量子点半径对应的三阶极化率的模

Fig. 3 Influence of different radius of quantum dots on  $|\chi^{(3)}|$

当入射光子能量为 0.6 eV, 弛豫相 $\hbar\Gamma$  分别为 3, 9 meV 时, 三阶极化率的模与量子点半径的关系, 如图 4 所示. 为了便于观察, 纵坐标选择的是不均匀坐标, 图 5 为图 4 弛豫相 $\hbar\Gamma=3\text{ meV}$  的放大图. 从图 4 中可以看出, 随着量子点半径的增大, 除三阶极化率得到增强之外, 弛豫相越小, 曲线峰值越尖锐,

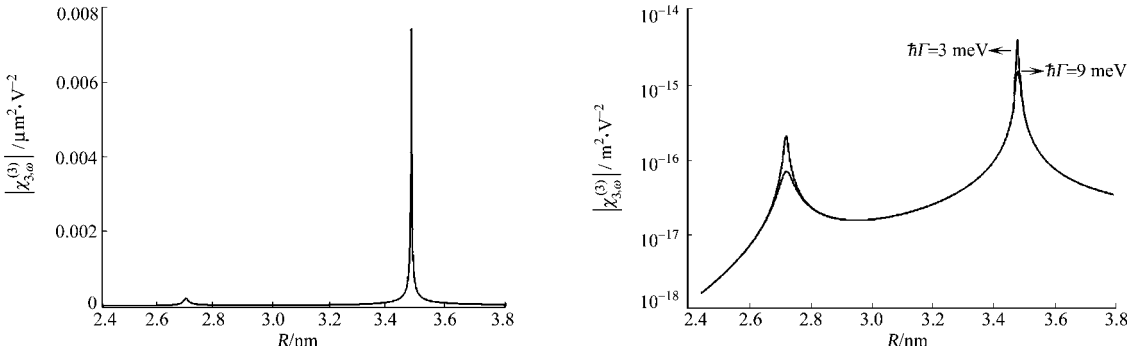


图 4 三阶极化率的模随量子点半径变化

Fig. 4 Variation of  $|\chi^{(3)}|$  with different radius of quantum dots

图 5 图 4 的  $\hbar\Gamma=3\text{ meV}$  的放大图

Fig. 5 Enlarged image of Fig. 4 at  $\hbar\Gamma=3\text{ meV}$

三阶极化率也得到增强. 从图 5 中可以看到, 量子点半径越大, 曲线峰值越尖锐, 三阶极化率得到增强.

3 结束语

采用无限深势阱、有效质量近似, 利用密度矩阵理论, 理论推导并计算了强受限下 nc Si/SiO<sub>2</sub> 球形

量子点共振三阶极化率. 以上讨论的是子带间的跃迁, 其能级间隔可以通过量子点的尺寸来控制. 基于目前的制造工艺, 可以人为地控制量子点的尺寸, 对量子尺寸效应在光电器件方面的应用, 无疑是一件有意义的事情.

参考文献:

[ 1 ] ESAKI L, TSU R. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors [ J ]. IBM J Res Dev, 1970, 14: 61-65.

[ 2 ] RIBLET P, TANAKA S, RAMVALL P, et al. Size dependent optical non linearities in GaN quantum dots [ J ]. Solid State Commun, 1999, 109( 6 ): 377-381.

[ 3 ] NANDAKUMAR P, VIJAYAN C, MURTI Y V G S. Quantum size effects on the third order optical nonlinearity of CdS quantum dots in Nafion [ J ]. Opt Commun, 2000, 185( 15 ): 457-465.

[ 4 ] ZHANG Li. Studies on the third order nonlinear optical properties of a quantum dot quantum well [ J ]. Acta Sinica Quantum Opt, 2004, 10( 1 ): 5-10.

[ 5 ] DARRIES B R S, NAVANEETHAKRISHNAN K. Donor binding energies and spin orbit coupling in aspherical quantum dot [ J ]. Solid States Commun, 2004, 130( 11 ): 773-776.

[ 6 ] 刘翠红, 郭康贤, 陈传誉, 等. 量子盘中的三阶非线性光学极化率 [ J ]. 发光学报, 2001, 22( 2 ): 135-138.

[ 7 ] 刘翠红. 柱形量子点中的三阶极化率 [ J ]. 光子学报, 2005, 34( 11 ): 1740-1744.

[ 8 ] LIU Li-ming, LI Jue-jie, XIONG Gui-guang. Studies of the third order nonlinear optical susceptibility for  $In_xGa_{1-x}N/GaN$  cylinder quantum dots [ J ]. Physica ( E ), 2005, 25( 4 ): 466-471.

[ 9 ] GUO Kang-xian, YU You-bin. Nonlinear optical susceptibilities in  $Si/SiO_2$  parabolic quantum dots [ J ]. Chin J Phys, 2005, 43( 5 ): 932-941.

[ 10 ] YOFFE A D. Semiconductor quantum dots and related systems: Electronic, optical, luminescence and related properties of low dimensional systems [ J ]. Adv Phys, 2001, 50( 1 ): 1-208.

[ 11 ] 胡水龙, 徐旭明, 于天宝. 光量子阱单滤波、多通道开关 [ J ]. 光子学报, 2004( 8 ): 1104-1106.

[ 12 ] SHEN Yuan-rang. The principles of nonlinear optics [ M ]. New York: Wiley, 1984: 35-68.

[ 13 ] VIJAYALAKSHMI S, GREBEL H, YAGLIOGLU G, et al. Nonlinear optical response of  $Si$  nanostructures in a silica matrix [ J ]. J Appl Phys, 2002, 88: 6418-6422.

Third order Nonlinear Susceptibility in  
a nc- Si/ SiO<sub>2</sub> Spherical Quantum Dot

LIU Ming-qiang, GUO Zhen-ning, YANG Xiao-ru

( College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Quanzhou 362021, China)

**Abstract:** Under the effective mass approximation, the electron state is considered to be confined within a nc-Si/SiO<sub>2</sub> spherical quantum dot with infinite barrier, and by using the compact density matrix method, the analytic expression for the resonant third order susceptibilities was derived. According to numerical simulation, the relation of the third order susceptibilities with quantum dot dimension, incident photo energy and various relaxation rate was discussed. The result shows that the third order susceptibilities strongly depends on quantum dot dimensions, incident photon energy and various relaxation rate. The third order susceptibilities increases with an increase in quantum dot dimension and incident photo energy and a decrease in various relaxation rate.

**Keywords:** quantum dot; infinite barrier; third order susceptibilities; nc-Si/SiO<sub>2</sub>

( 责任编辑: 钱 筠      英文审校: 吴逢铁)