

國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文

自組式量子點中單一激子的庫倫交互作用

Coulomb Interaction of Single Exciton in Self-assembled Quantum Dot

研 究 生：趙虔震

指導教授：鄭舜仁 教授

中華民國九十九年七月

自組式量子點中單一激子的庫倫交互作用

Coulomb Interaction of Single Exciton in Self-assembled Quantum Dot

研 究 生：趙虔震

Student：Chien-Chen Chao

指導教授：鄭舜仁 教授

Advisor：Prof. Shun-Jen Cheng

國 立 交 通 大 學

電子物理研究所

碩 士 論 文

A Thesis

Submitted to Department of Electrophysics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master

in

Electrophysics

July 2010

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十九年七月

自組式量子點中單一激子的庫倫交互作用

學生：趙虔震

指導教授：鄭舜仁 教授

國立交通大學電子物理研究所碩士班

摘 要

本篇論文主要是利用數值積分方法去驗證電子－電洞交互作用的解析結果，它包括了電子－電洞的直接庫倫作用及電子－電洞的交換作用。一般認為，電子－電洞的交換作用是造成所謂的精細結構匹裂(fine structure splitting, FSS)的主要原因，而精細結構匹裂則是阻礙實現量子點作為糾纏光子對光源的主要原因[5,6]。

在這篇論文裡，我們首先回顧文獻[7]的理論工作：在三維非等向性拋物線位能下，直接庫倫作用與交換作用的推導過程，藉此了解電子－電洞交換作用背後的物理，影響交換作用的主要原因有三：材料特性、量子點的尺寸以及激子波函數形狀的不對稱。

接著利用數值方法來驗證三維模型的準確性，除了藉此確認三維模型的正確與否，還可以定量的給出理論公式的適用範圍，也可以進一步的討論理論公式所無法涵蓋的部份，最後模擬各種不同尺寸量子點的直接庫倫作用與交換作用的趨勢與能量尺度。

Coulomb Interactions of Single Exciton in Self-assembled Quantum Dots

Student : Chien-Chen Chao

Advisor : Shun-Jen Cheng

**Department of Electrophysics
National Chiao Tung University**

ABSTRACT

In this thesis, the electron-hole direct Coulomb interactions and exchange interactions in quantum dots are both simulated by using numerical integration method and analytical mean. The electron-hole exchange interaction is often regarded as the main consequence for the fine structure splitting (FSS) of quantum dots. The FSS have been confirmed as a main obstacle for the fabrication of dot-based entangled photon pair emitters.[5,6]

In order to understand the underlying physics of the FSS, we present a theory for the electron-hole Coulomb interaction based on 3D asymmetry parabolic model [7]. According to theoretical studies, the FSS is attributed to several underlying mechanisms: material properties, the size of quantum dots and the lateral deformation of exciton wave function.

By using the numerical integration method and analytical mean, we identify the the size-dependence of the electron-hole Coulomb interactions in a quantum dot with arbitrary aspect ratio. Finally we use the numerical integration method to find the tendency and the energy scale of electron-hole Coulomb interactions between different sizes of quantum dots.

目 錄

摘 要	II
ABSTRACT	III
目 錄	IV
致 謝	V
附表索引	VI
附圖索引	VII
第一章：導論	1
1.1 背景簡介	1
1.2 研究動機	2
1.3 章節概要	4
第二章：自組式量子點的電子結構	6
2.1 自組式量子點簡介	6
2.2 電子與電洞的電子結構	8
2.3 激子的電子結構與交互作用	11
2.4 電子－電洞的直接庫倫作用	15
2.5 電子－電洞的交換作用	15
第三章：電子與電洞的直接庫倫作用與交換作用	20
3.1 三維非等向性拋物線位能	20
3.2 直接庫倫作用與交換作用解析結果	23
第四章：數值方法	27
4.1 數值積分方法原理	28
4.2 數值方法的收斂性與驗證討論	29
4.3 直接庫倫作用數值驗證	36
4.4 長程交換作用數值驗證	37
4.5 直接庫倫作用與長程交換作用數值模擬結果	40
第五章：結果與討論	43
5.1 結論	43
5.2 未來展望	44
附錄一：直接庫倫作用解析公式推導	45
附錄二：直接庫倫作用的奇異點部份積分	49
附錄三：長程交換作用數值模擬收斂性整理	52
參考文獻：	55

致 謝

在固態量子理論研究室三年的碩士生活裡，首先感謝指導教授鄭舜仁老師這段時間的敦敦教誨，使得我得以踏進固態理論計算的大門，除了讓我能更加的了解固態物體的應用，也使我了解作研究該具備的態度。並且感謝口試委員陳振芳老師、張文豪老師以及林聖迪老師在口試中所提出的寶貴意見，使得研究內容更趨於完備。

在固態物理理論研究室裡，首先感謝盧書楷學長、陳彥廷學長和黃上瑜學長給予研究上的意見以及在課業與生活上各方面的協助，同窗陳勇達、尤文廷在這段期間內的共同奮鬥，一起克服了許多困難。也要感謝學弟們：禹淮、徐燁、建智、…在這段期間內不吝給予的幫助，最後要感謝國家高速網路與計算中心提供軟硬體資源，使本研究得以順利進行。

感謝家人與虹儀在背後默默的支持與鼓勵，這些都是我繼續前進的動力，謹以此論文獻給所有曾經關心我幫助我的每一個人，謝謝大家！

附表索引

表(2.2.1)、電子 Bloch function 的符號表示法	10
表(2.2.2)、電洞 Bloch function 的符號表示法	10
表(2.3.1)、光激子組態所對應的 Bloch function 與符號.....	14
表(A.1.1)、不同高寬比所對應的直接庫倫作用解析公式整理	48
表(A.3.1)、計算長程交換作用所使用的參數	52



附圖索引

圖(1.1.1)、FSS 造成電子電洞再結合的路徑變得可分辨	2
圖(2.1.1)、自組式量子點的形成示意圖	7
圖(2.1.2)、利用三維 STM 所得自組式量子點的形狀	7
圖(2.1.3)、量子點發光示意圖	8
圖(2.2.1)、連續的能帶變成量化的能階示意圖	9
圖(2.2.2)、利用緊束縛法模擬透鏡形狀量子點的位能剖面圖	9
圖(2.3.1)、位置向量分解示意圖	13
圖(2.3.2)、單激子的發光極化示意圖	14
圖(2.5.1)、長程作用與短程作用示意圖	16
圖(3.1.2)、用三維非等向性拋物線位能模擬 SAQD 內的基態波函數	22
圖(3.1.3)、特徵長度隨量子點尺寸改變的關係圖	22
圖(3.1.2)、有限差分法模擬的基態波函數與高斯函數比較	23
圖(3.2.1)、 l_z 與直接庫倫作用的關係	24
圖(3.2.2)、形變比例與長程交換作用的關係	26
圖(4.0.1)、數值程式流程圖	27
圖(4.1.1)、矩形法求定積分示意圖	28
圖(4.2.1)、高斯函數分布範圍示意圖	31
圖(4.2.2)、直接庫倫積分的收斂分析圖	34
圖(4.2.3)、直接庫倫積分的誤差比較圖	34
圖(4.2.4)、直接庫倫積分所需時間整理	35
圖(4.2.5)、平面旋轉對稱直接庫倫積分	36
圖(4.3.1)、針對不同的長寬比，直接庫倫作用數值與解析結果比較	37
圖(4.4.1)、針對不同的長寬比，長程交換作用數值結果與解析結果比較	40
圖(4.5.1)、針對不同特徵長度的模擬結果	42
圖(A.2.1)、利用數值方法驗證奇異點部份積分結果	51
圖(A.3.1)、進行三重積分所需的時間整理	52
圖(A.3.2)、特徵長度 $l_x=2(\text{nm})$ 、 $l_y=2.1(\text{nm})$ 、 $l_z=1(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析	53
圖(A.3.3)、特徵長度 $l_x=2(\text{nm})$ 、 $l_y=2.1(\text{nm})$ 、 $l_z=3(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析	53
圖(A.3.4)、特徵長度 $l_x=8(\text{nm})$ 、 $l_y=8.4(\text{nm})$ 、 $l_z=1(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析	54
圖(A.3.5)、特徵長度 $l_x=8(\text{nm})$ 、 $l_y=8.4(\text{nm})$ 、 $l_z=3(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析	54

第一章：導論

1.1 背景簡介

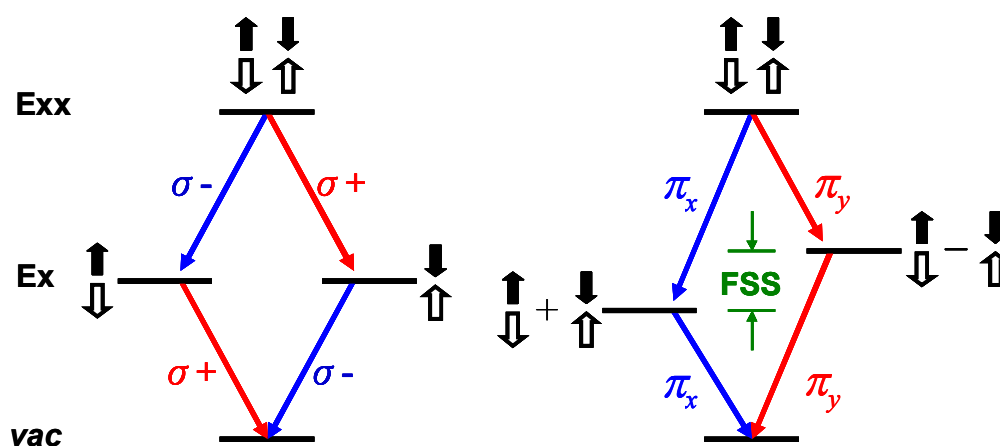
從 70 年代開始，半導體工業的發展如同摩爾定律(Moor Law)所預測的相同：每隔 18 個月，微處理速度就增快一倍，而每個晶片上集成的電晶體數目也隨時間呈指數增長。而這個經驗法也告訴我們，到 2015 年，一個晶片上的電晶體數目將超過 10 億個[1]。因此電晶體的體積勢必要越做越小，但是當電子元件尺寸小於或等於德布羅伊(de Broglie)波長時，電子的行為將不再服從古典物理規律，而必須考慮量子物理的效應。而以量子態疊加原理(superposition principle of quantum states)以及量子態的糾纏性為理論基礎的新興量子資訊科學(quantum information science, QIS)，在增大資訊容量、提高運算速度、確保資訊安全等方面將遠遠突破現有傳統資訊系統的極限[1]。

量子糾纏(quantum entanglement)指的是兩個或多個量子系統間存在特定的關聯，使得某些物理量無法由單一或少數的系統獨立決定[2]。例如兩個量子位元(quantum bit, qubit)可構成糾纏態 $|00\rangle + |11\rangle$ ，它不能被分解成兩個單獨量子位元態的乘積，只要確定了其中一個量子位元狀態，就同時決定了糾纏態內另一個單獨量子位元的狀態。這提供了一種有效的平行處理方法[1]。特別的是，一但兩量子系統構

成了糾纏態，則不管這兩個量子系統間的距離有多遠，即使它們之間不可能存在力學上的交互作用，只要它們仍保持在糾纏態，它們之間的量子關聯性仍不會改變。這種被稱為非定域性(non-locality)的特性，是實現量子傳輸(quantum teleportation)以及量子密碼(quantum cryptography)的理論基礎[3]。

1.2 研究動機

在量子傳輸的實際應用上，常使用量子點作為發射糾纏態光子對(entangled photon-pair)的光學元件[3]，但在大部份量子點中存在著精細結構分裂(fine structure splitting, FSS)，導致單激子(single exciton)自旋態不完全簡併，使得不同自旋的電子電洞再結合的路徑變成可分辨而阻礙糾纏光子對的產生[3]，如圖(1.1.1)所示。所以直接從量子點中產生糾纏光子將變得很困難。



圖(1.1.1)、FSS 造成電子電洞再結合的路徑變得可分辨

產生精細結構匹裂背後的物理機制有許多種可能。然而一般認為，因為形變(shape deformation)、應變(strain)破壞量子點的對稱性，引發了電子－電洞間的交換作用(electron-hole exchange interaction)，才會造成精細結構匹裂[4]。

由上述的討論可以知道，只有先對電子－電洞交換作用有深入的瞭解後，才有可能有效的縮小甚至控制量子點的激子精細結構，以實現量子傳輸應用。

在此先對整個研究主題作個簡單的了解，M. Bayer 與 G. Ortner 等人[5]使用自旋漢米頓(spin Hamiltonian)來描述電子－電洞交換作用對激子組態的影響。指出因為電子－電洞交換能的存在，會造成激子組態的混成，而這些組態重新組合後的能階產生分裂，因為分裂後的能階尺度相較於其他能量小很多($10 \sim 100 \mu\text{eV}$)，因此被稱為精細結構。

在實際的狀況下，可以使用像是有限差分法(finite difference method)等數值方法解出在量子點內電子與電洞的能階與波函數，接著再使用數值積分計算電子－電洞交換作用，這往往須需要相當大量電腦資源計算才可以得到較可靠的結果。但在二維非等向性的拋物線位能模型(2D anisotropic parabolic model)下，可以化簡問題，建立用

來模擬量子點內的電子－電洞交換作用的解析理論方法[5,6,7,22]。

由於自組式量子點的底部寬約為 20(nm)，高約為 2(nm)，因此一般而言，多半把自組式量子點視為近似二維的系統，因此先前的文獻[5,6,7,22]都是針對二維系統所建立的模型。由於電子－電洞交換作用本質上為庫倫交互作用，因此隨著電子與電洞之間的距離增加，交換作用應該隨著下降，然而，在實際的情況下，交換作用反而隨著自組式量子點尺寸的變小而下降，這跟一般的理解不同，而小量子點的底部寬約為 9~12(nm)，高約為 2~3(nm)[7]，已經不能單純的使用二維模型來解釋，因此 H. Y. Ramirez 等人[7]利用三維非等向性拋物線位能，若只考慮單能帶模型，且假設電子與電洞均處於最低能態，推導出直接庫倫作用與交換作用的三維模型，並且指出影響交換作用的因素，包含了材料特性、量子點的尺寸、量子點形狀的不對稱以及電子－電洞波函數的不對稱等四種可能。

1.3 章節概要

本篇論文的主要工作，就是利用數值方法去驗證在文獻[7]裡提出的電子－電洞間的庫倫交互作用的三維解析結果。因此先回顧整個解析過程，藉以理解電子－電洞交換作用背後的物理，接著利用數值

方法進行驗證與分析，第一步先驗證三維解析模型的正確性，第二步再定量的給出理論公式的適用範圍，最後還可以進一步的討論理論公式所無法涵蓋的部份。

在本篇論文架構的設計上，第一章主要是說明為何需要探討電子—電洞交換作用，第二章簡單介紹自組式量子點內，電子與電洞的電子組態、激子的電子組態，並且考慮完整的激子波函數，得到電子—電洞間的直接庫倫作用與交換作用。第三章說明在三維非等向性拋物線位能下，直接庫倫作用與交換作用的理論推導過程，同時也說明影響電子—電洞間交互作用的因素。第四章是數值模擬的結果，首先介紹所使用的數值方法，接著驗證數值積分程式的效率與可信度，最後使用數值積分來驗證第三章所提出的理論公式，以及模擬不同大小量子點的直接庫倫作用與交換作用。

第二章：自組式量子點的電子結構

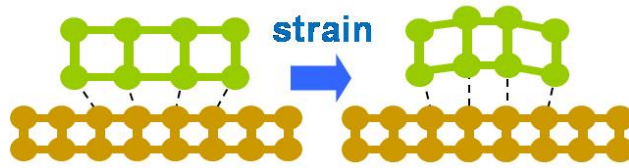
2.1 自組式量子點簡介

電子在半導體內的物質波特性和費米波長(Fermi wavelength, λ_F)來表示：

$$\lambda_F = \frac{h}{\sqrt{2m^*E_F}} \quad (2.1.1)$$

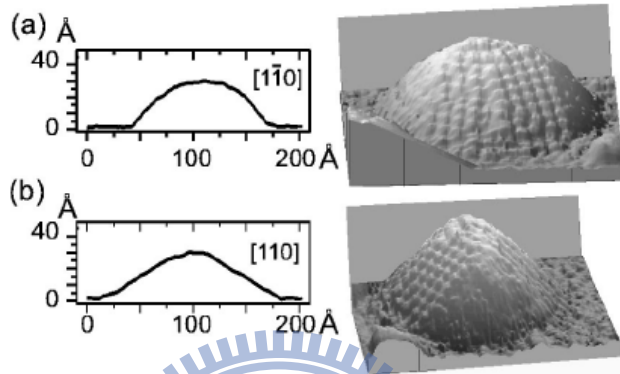
h 為普朗克常數(Plank's constant)、 m^* 為電子的有效質量、 E_F 為費米能量。在半導體材料砷化鎵(GaAs)中，電子的費米波長約為 40nm[9]，因此，當砷化鎵塊材三個維度的尺寸都縮小到 40nm 時，電子在三個方向上的運動便受到限制，如同一個被束縛在三維位能井中的粒子，使得電子的能量呈現不連續分布，稱為量子侷限效應 (quantum confinement effect)，此時塊材便可稱為量子點(quantum dot)。

自組式量子點(self-assembled quantum dot, SAQD)形成的原因是由於基板材料(substrate material)與沉積材料(epitaxial material)的晶格不匹配(lattice mismatch)，當沉積材料的晶格常數大於基板時，沉積材料會去壓縮自己去符合基板，造成應力(strain)的累積，如圖(2.1.1)所示，最後會在基板上產生如圖(2.1.2)的島狀隆起。



圖(2.1.1)、自組式量子點的形成示意圖

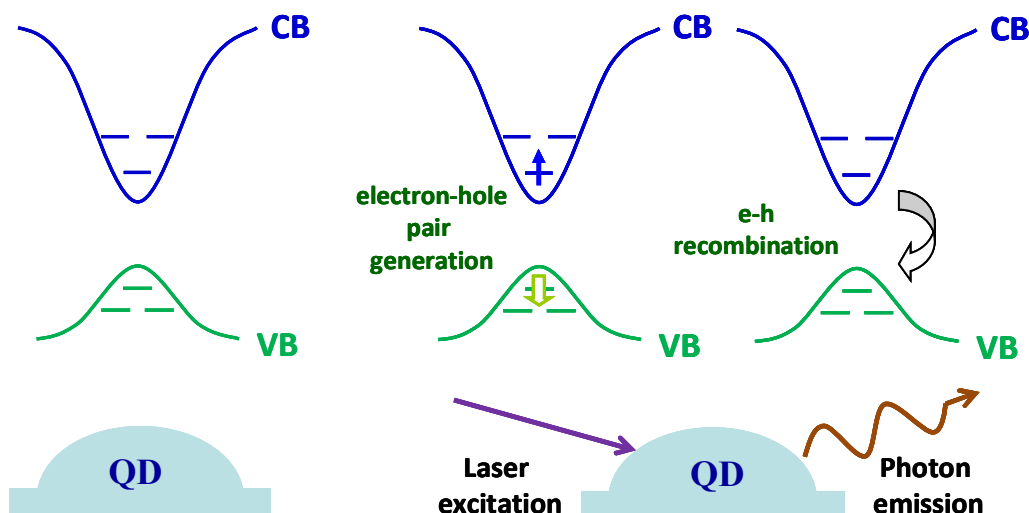
當沉積材料的晶格常數大於基板時，為了符合基板，會擠壓自己，形成如圖(2.1.2)島狀隆起。



圖(2.1.2)、利用三維STM所得自組式量子點的形狀

資料來源：J. Marquez, *et al*, Appl. Phys. Lett. **78**, 2309 (2001). [10]

在量子點裡，移動一個價電帶(valence band, VB)的電子到導電帶(conduction band, CB)後，會在價電帶上留下一個被稱為電洞(hole)的空軌域，它被視為帶有正電荷的電子，而導電帶的電子與價電帶的電洞會經由相互的庫倫作用力吸引，形成稱為激子(exciton)的電子—電洞對，如圖(2.1.3)所示。因此要了解激子的電子結構前，要先了解量子點內電子與電洞的結構。



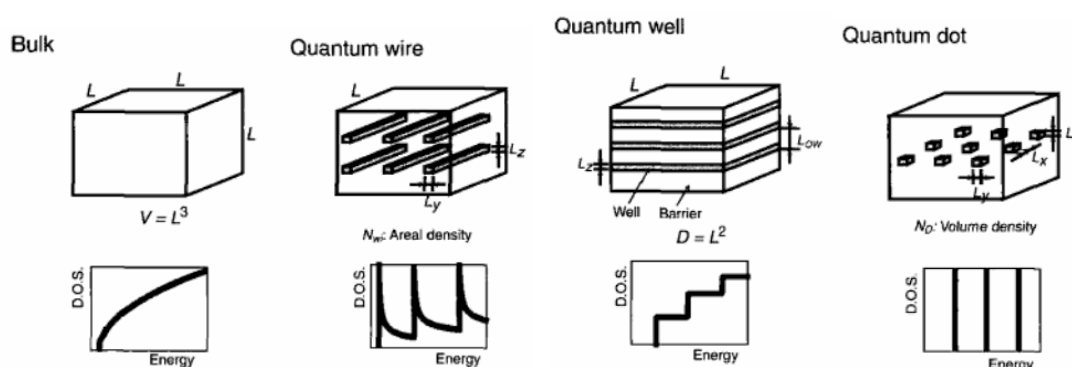
圖(2.1.3)、量子點發光示意圖

當價電帶的電子被激發到導電帶後，會在價電帶上留下帶正電的電洞，而導電帶的電子與價電帶的電洞會經由相互的庫倫作用力吸引，形成稱為激子的電子－電洞對。當電子－電洞再次結合後，就會放出一個光子。

2.2 電子與電洞的電子結構

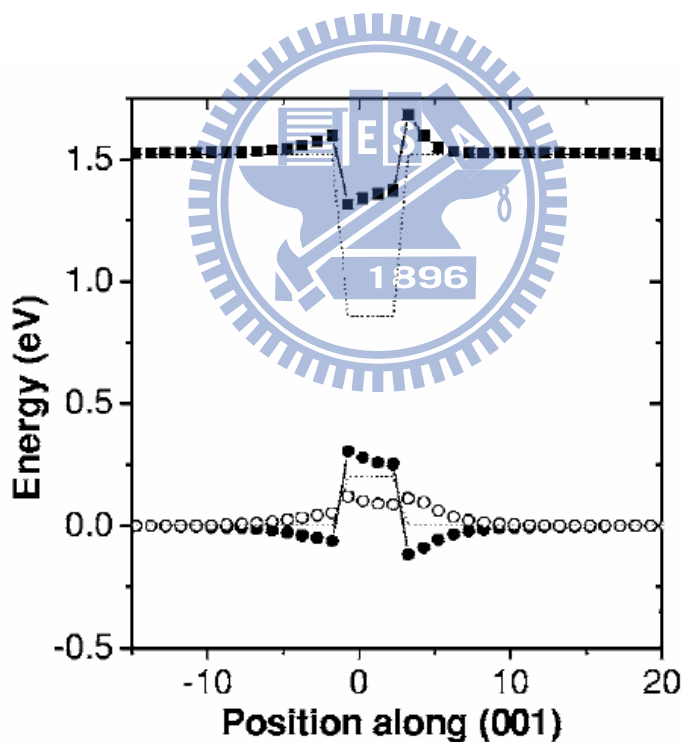
大多數的半導體，其導電帶與價電帶間的能隙足夠大，例如砷化銦(InAs)塊材的能隙有 413meV[11]，可忽略導電帶與價電帶之間的交互作用，因此我們使用單能帶模型(one bane model)來描述導電帶。當材料的尺寸逐漸縮小形成量子點時，除了連續的能帶將變成不連續的能階外，還會造成價電帶中重電洞(heavy hole, HH)與輕電洞(light hole, LH)能階的匹裂，如圖(2.2.1)所示。而自組式量子點中的應力會加大重電洞與輕電洞的匹裂程度，匹裂的能量尺度約為 100meV，遠大於交換作用的尺度(10~100 μ eV)[3,5,12]，如圖(2.2.2)所示，因此對

價電帶而言，可以只考慮重電洞。



圖(2.2.1)、連續的能帶變成量化的能階示意圖

資料來源：M. Sugawara, Self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots, Academic Press (1999). [12]



圖(2.2.2)、利用緊束縛法模擬透鏡形狀量子點的位能剖面圖

其中，虛線代表沒受到應力影響的位能，實心方格代表價電帶受到應力影響後的變化，實心圓點代表重電洞受到應力影響後的變化，空心圓點代表輕電洞受到應力影響後的變化。可以發現，當量子點受到應力作用的時候，價電帶的能量會提升，而輕、重電洞因為有效質量的不同，被提升的程度也不同，因此造成匹裂。

資料來源：W. Jaskólski, *et al*, Phys. Rev. B **74**, 195339 (2006). [13]

根據波包近似法(envelope function approximation)寫下電子與重電洞在半導體內的波函數：

$$\Psi_{i\sigma}^c(\vec{r}) = \phi_i^c(\vec{r}) u_{\sigma}^c(\vec{r}) \quad (2.2.1a)$$

$$\Psi_{j\chi}^v(\vec{r}) = \phi_j^v(\vec{r}) u_{\chi}^v(\vec{r}) \quad (2.2.1b)$$

這裡 $\phi_i^c(\vec{r})$ 為電子在狀態 $|i\rangle$ 的波包函數，而 $u_{\sigma}^c(\vec{r})$ 則表示自旋為 $|\sigma\rangle$ 的電子，在導帶的 Bloch 函數；同樣的， $\phi_j^v(\vec{r})$ 為電洞在狀態 $|j\rangle$ 的波包函數， $u_{\chi}^v(\vec{r})$ 表示 pseudo spin 為 $|\chi\rangle$ 的電洞，在價帶的 Bloch 函數。

為了方便起見，首先定義電子與重電洞的符號表示法如下表
(2.2.1)、(2.2.2)所示[14]：

符號表示式	Bloch function	原子對應的軌道型態
$ \uparrow\rangle_e$	$u_{+1/2}^c(\vec{r}_e)$	$ S\rangle \otimes \uparrow\rangle$
$ \downarrow\rangle_e$	$u_{-1/2}^c(\vec{r}_e)$	$ S\rangle \otimes \downarrow\rangle$

表(2.2.1)、電子 Bloch function 的符號表示法

電洞觀點	電子觀點	
符號表示式	Bloch function	原子對應的軌道型態
$ \downarrow\rangle_h$	$u_{+3/2}^v(\vec{r}_h)$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}(P_x\rangle + i P_y\rangle) \otimes \uparrow\rangle$
$ \uparrow\rangle_h$	$u_{-3/2}^v(\vec{r}_h)$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(P_x\rangle - i P_y\rangle) \otimes \downarrow\rangle$

表(2.2.2)、電洞 Bloch function 的符號表示法

值得注意的是，表(2.2.2)中，電洞符號表示式的箭頭方向與對應

Bloch function 的角動量值(j_z)不一樣，因為前者所使用的是電洞觀點(hole picture)，而後者則為電子觀點(electron picture)。而在本文裡的計算，全都是以電子觀點為主。

根據單能帶的有效質量理論(single band effective mass theory)，描述電子與重電洞行為的薛丁格方程(Schrodinger equation)可以寫成：

$$\left(\frac{\bar{P}^2}{2m_0 m_e^*} + V_{QD}^e(\bar{r}_e) \right) \phi_i^e(\bar{r}_e) = E_i^e \phi_i^e(\bar{r}_e) \quad (2.2.2a)$$

$$\left(\frac{\bar{P}^2}{2m_0 m_{HH}^*} + V_{QD}^{HH}(\bar{r}_h) \right) \phi_j^v(\bar{r}_h) = E_j^{HH} \phi_j^v(\bar{r}_h) \quad (2.2.2b)$$

這裡 m_e^* 為電子的有效質量，而 m_{HH}^* 則為重電洞的有效質量。接著只要決定 $V_{QD}^e(\bar{r}_e)$ 、 $V_{QD}^{HH}(\bar{r}_h)$ 便可以藉著有限差分法(finite difference method)，求出單一電子或單一重電洞的能階以及相對應的波包函數[15]。

2.3 激子的電子結構與交互作用

若考慮電子與電洞間的交互作用，電子與電洞會因為彼此的庫倫吸引力而形成被稱為激子的電子－電洞對。描述一對被侷限在量子點系統內激子的行為，可以用一個包含其動能與交互作用的漢米頓方程(Hamiltonian)來表示[16]，其二次量子化的形式，如下所示：

$$\hat{H} = \sum_i \varepsilon_e^i c_i^+ c_i + \sum_j \varepsilon_h^j h_j^+ h_j - \sum_{ijkl} V_{ijkl}^{\sigma\chi\chi'\sigma'} c_{i,\sigma}^+ h_{j,\chi}^+ h_{k,\chi'} c_{l,\sigma'} + \sum_{ijkl} \delta_{ijkl}^{\sigma\chi\chi'\sigma'} c_{i,\sigma}^+ h_{j,\chi}^+ h_{k,\chi'} c_{l,\sigma'} \quad (2.3.1)$$

其中， $c_{l,\sigma'}$ 、 $h_{k,\chi'}$ 表示電子與電洞的湮滅算符(annihilation operator)，功用為消滅一個在狀態 $|l\rangle$ 、帶有自旋 $|\sigma'\rangle$ 的電子，以及消滅一個在狀態 $|k\rangle$ 、帶有 pseudo spin $|\chi'\rangle$ 的電洞。同樣的， $c_{i,\sigma}^+$ 、 $h_{j,\chi}^+$ 表示電子與電洞的創造算符(creation operator)，功用是在狀態 $|i\rangle$ 產生一個帶有自旋 $|\sigma\rangle$ 的電子，以及在狀態 $|j\rangle$ 產生一個帶有 pseudo spin $|\chi\rangle$ 的電洞。而 ε_e^i 為在狀態 $|i\rangle$ 電子的動能， ε_h^j 為在狀態 $|j\rangle$ 電洞的動能。

觀察式(2.3.1)可以發現，第一與第二項為電子跟電洞的動能，第三項為電子－電洞間的直接庫倫作用，而第四項為電子－電洞間的交換作用。直接庫倫作用矩陣元定義為[17]：(以下均採用 SI 單位)

$$V_{ijkl}^{\sigma\chi\chi'\sigma'} = \iint d\bar{r}_1 d\bar{r}_2 \Psi_{i\sigma}^{c*}(\bar{r}_1) \Psi_{j\chi'}^{v*}(\bar{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\bar{r}_1 - \bar{r}_2|} \Psi_{k\chi}^v(\bar{r}_2) \Psi_{l\sigma}^c(\bar{r}_1) \quad (2.3.2)$$

交換作用矩陣元定義為[17]：

$$\delta_{ijkl}^{\sigma\chi\chi'\sigma'} = \iint d\bar{r}_1 d\bar{r}_2 \Psi_{i\sigma'}^{c*}(\bar{r}_2) \Psi_{j\chi'}^v(\bar{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\bar{r}_1 - \bar{r}_2|} \Psi_{k\chi}^{v*}(\bar{r}_1) \Psi_{l\sigma}^c(\bar{r}_1) \quad (2.3.3)$$

其中， e 代表電子電量、 ϵ 代表材料的介電常數(dielectric constant)，而 $\Psi(\bar{r})$ 如式(2.2.1a)、(2.2.1b)所示，代表電子或電洞在位置 \bar{r} 的波函數。

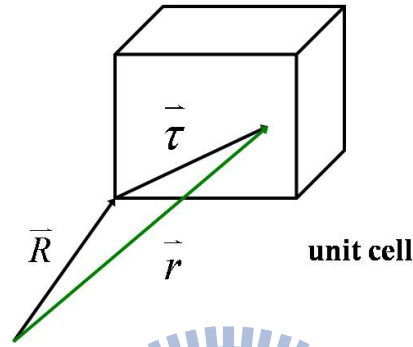
接著使用緩變函數近似法(envelope function approximation)

[18,19]，將位置向量 \bar{r} 分解，如圖(2.3.1)所示：

$$\vec{r}_1 = \vec{R}_1 + \vec{\tau}_1 \quad \vec{r}_2 = \vec{R}_2 + \vec{\tau}_2 \quad (2.3.4a)$$

$$\Delta \vec{R} = \vec{R}_1 - \vec{R}_2 \quad (2.3.4b)$$

\vec{R} 為指向布拉菲晶格(Bravais lattice)的向量， $\vec{\tau}$ 為在單位晶胞(unit cell)內的向量。



圖(2.3.1)、位置向量分解示意圖

考慮波包函數在空間中是緩慢變化的，因此可以假設波包函數在單位晶胞裡為定值，以及 Bloch 函數在晶格結構裡的週期性，即：

$$\phi(\vec{R} + \vec{\tau}) = \phi(\vec{R}) \quad (2.3.5a)$$

$$u(\vec{R} + \vec{\tau}) = u(\vec{\tau}) \quad (2.3.5b)$$

於是式(2.3.2)與式(2.3.3)分別可以改寫為：

$$\begin{aligned} V_{ijkl}^{\sigma\chi\chi\sigma} = & \iint d\vec{R}_1 d\vec{R}_2 \phi_i^{c*}(\vec{R}_1) \phi_j^{v*}(\vec{R}_2) \phi_k^v(\vec{R}_2) \phi_l^c(\vec{R}_1) \\ & \times \iint d\vec{\tau}_1 d\vec{\tau}_2 u_{\sigma}^{c*}(\vec{\tau}_1) u_{\chi}^{v*}(\vec{\tau}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\Delta\vec{R} + \vec{\tau}_1 - \vec{\tau}_2|} u_{\chi}^v(\vec{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\vec{\tau}_1) \end{aligned} \quad (2.3.6)$$

$$\begin{aligned} \delta_{ijkl}^{\sigma\chi'\chi\sigma} = & \iint d\vec{R}_1 d\vec{R}_2 \phi_i^{c*}(\vec{R}_2) \phi_j^v(\vec{R}_2) \phi_k^{v*}(\vec{R}_1) \phi_l^c(\vec{R}_1) \\ & \times \iint d\vec{\tau}_1 d\vec{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\vec{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\vec{\tau}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\Delta\vec{R} + \vec{\tau}_1 - \vec{\tau}_2|} u_{\chi}^{v*}(\vec{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\vec{\tau}_1) \end{aligned} \quad (2.3.7)$$

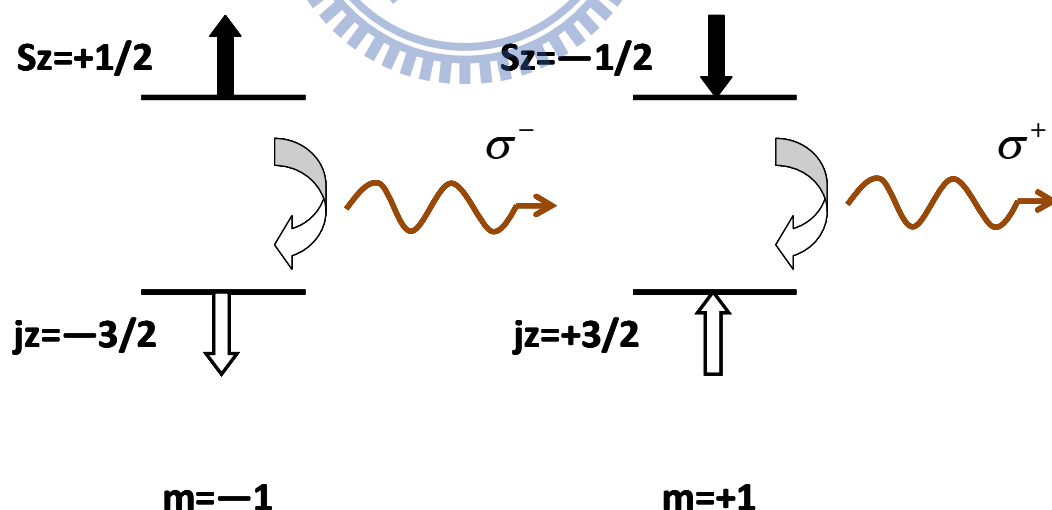
在進行電子－電洞間直接庫倫作用與交換作用的討論前，先簡單

的說明激子組態與發光極化的關係。因為電子與重電洞各自的角動量分別為 $\pm 1/2$ 與 $\pm 3/2$ ，所以激子原本有四種組態，但我們在此只考慮光激子組態，如表(2.3.1)所示，當這兩種組態各自發生電子電洞再結合(recombination)時，會分別輻射出左右旋光，如圖(2.3.2)所示。

Bloch function	符號	電子角動量 (s_z)	重電洞角動量 (j_z)	激子總角動量 ($m = s_z + j_z$)
$u_{+1/2}^c(\vec{r}_e)u_{-3/2}^v(\vec{r}_h)$	$ \uparrow\rangle_e \otimes \downarrow\rangle_h$	+1/2	-3/2	-1
$u_{-1/2}^c(\vec{r}_e)u_{+3/2}^v(\vec{r}_h)$	$ \downarrow\rangle_e \otimes \uparrow\rangle_h$	-1/2	+3/2	+1

表(2.3.1)、光激子組態所對應的 Bloch function 與符號

接著便以光激子組態為基底，開始討論電子－電洞間的直接庫倫作用與交換作用。



圖(2.3.2)、單激子的發光極化示意圖

2.4 電子－電洞的直接庫倫作用

電子－電洞直接庫倫作用的矩陣元定義如式(2.3.6)所示，若考慮 $\Delta\bar{R} \gg \bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2$ ，則式(2.3.6)可以近似成

$$V_{ijkl}^{\sigma\chi\chi\sigma} \approx \iint d\bar{R}_1 d\bar{R}_2 \phi_i^{c*}(\bar{R}_1) \phi_j^{v*}(\bar{R}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\Delta\bar{R}|} \phi_k^v(\bar{R}_2) \phi_l^c(\bar{R}_1) \times \iint d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma}^{c*}(\bar{\tau}_1) u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi}^v(\bar{\tau}_2) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \quad (2.4.1)$$

由波函數歸一化條件(normalization condition)可知，Bloch 函數部分的積分值為一，所以式(2.4.1)變成

$$V_{ijkl}^{\sigma\chi\chi\sigma} \approx \iint d\bar{R}_1 d\bar{R}_2 \phi_i^{c*}(\bar{R}_1) \phi_j^{v*}(\bar{R}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\Delta\bar{R}|} \phi_k^v(\bar{R}_2) \phi_l^c(\bar{R}_1) \quad (2.4.2)$$

表示在半導體中，電子－電洞間的直接庫倫作用可以只考慮波包函數為基底，這跟電子與電洞在真空中的直接庫倫作用行為相同。

2.5 電子－電洞的交換作用

電子－電洞交換作用的矩陣元定義如式(2.3.7)所示，首先進行座標轉換：令 $\bar{R}_1 = \bar{R}$ 、 $\bar{R}_2 = \bar{R} - \Delta\bar{R}$ ，則式(2.3.7)可以表示為：

$$\delta_{ijkl}^{\sigma'\chi'\chi\sigma} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \iint d\bar{R} d\Delta\bar{R} \phi_i^{c*}(\bar{R} - \Delta\bar{R}) \phi_j^v(\bar{R} - \Delta\bar{R}) \phi_k^{v*}(\bar{R}) \phi_l^c(\bar{R}) \times \iint d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{1}{|\Delta\bar{R} + \bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2|} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_2)$$

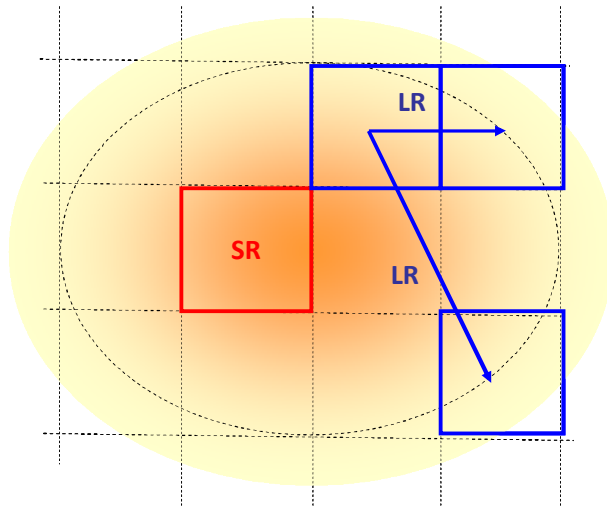
$$= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \iint d\bar{R} d\Delta\bar{R} \phi_i^{c*}(\bar{R}-\Delta\bar{R}) \phi_j^v(\bar{R}-\Delta\bar{R}) \phi_k^{v*}(\bar{R}) \phi_l^c(\bar{R}) \times W^{\sigma'\chi'\chi\sigma}(\Delta\bar{R}) \quad (2.5.1)$$

其中，

$$W^{\sigma'\chi'\chi\sigma}(\Delta\bar{R}) = \iint d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{1}{|\Delta\bar{R} + \bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2|} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \quad (2.5.2)$$

式(2.5.2)把 Bloch 函數積分的部份令為 $W^{\sigma'\chi'\chi\sigma}(\Delta\bar{R})$ ，這是個與 $\Delta\bar{R}$ 有關的函數，我們可以分成 $\Delta\bar{R}=0$ 與 $\Delta\bar{R}\neq 0$ 兩種不同的狀況來討論，前者是電子與電洞處於同一個單位晶胞裡的交換作用，稱為短程作用(short-range interaction, SR)，後者則被稱為長程作用(long-range interaction, LR)，如圖(2.5.1)所示，因此電子—電洞的交換作用可以表示成：

$$\delta_{ijkl}^{\sigma'\chi'\chi\sigma} = \delta_{ijkl}^{\sigma'\chi'\chi\sigma, SR} + \delta_{ijkl}^{\sigma'\chi'\chi\sigma, LR} \quad (2.5.3)$$



圖(2.5.1)、長程作用與短程作用示意圖

當電子與電洞處於同一個單位晶胞內時，稱為短程作用，而電子與電洞分處於不同單位晶胞時，則稱為長程作用。

文獻[5,7]說明了造成精細結構匹裂的原因：由於自旋激子的不同組態間受到電子－電洞交換作用的影響，造成各組態的混成，這些組態重新組合後，使得對應的能階產生了匹裂。當電子與電洞處於同一單位晶胞裡的交換作用稱為短程作用，如式(2.5.4)所示，

$$W^{\sigma'\chi'\chi\sigma,SR} = \int \int_{uc\ uc} d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{1}{|\bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2|} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \quad (2.5.4)$$

當價電帶的 Bloch function 為純重電洞(pure heavy hole)時，式(2.5.4)的積分結果約等於零，對精細結構匹裂沒有貢獻，所以在此我們只考慮長程作用。

長程作用指的是電子與電洞在不同晶格時的交換作用，即：

$$W^{\sigma'\chi'\chi\sigma,LR}(\Delta\bar{R}) = \int \int d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{1}{|\Delta\bar{R} + \bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2|} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \quad (2.5.5)$$

因為 $\Delta\bar{R} \gg \bar{\tau}_1 - \bar{\tau}_2$ ，所以我們可以使用偶極－偶極近似法(dipole－dipole approximation)展開式(2.5.5)[20]，

$$\begin{aligned} W^{\sigma'\chi'\chi\sigma,LR}(\Delta\bar{R}) = & \int \int d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{\bar{\tau}_1 \cdot \bar{\tau}_2}{|\Delta\bar{R}|^3} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \\ & - \int \int d\bar{\tau}_1 d\bar{\tau}_2 u_{\sigma'}^{c*}(\bar{\tau}_2) u_{\chi'}^v(\bar{\tau}_2) \frac{3(\Delta\bar{R} \cdot \bar{\tau}_1)(\Delta\bar{R} \cdot \bar{\tau}_2)}{|\Delta\bar{R}|^5} u_{\chi}^{v*}(\bar{\tau}_1) u_{\sigma}^c(\bar{\tau}_1) \end{aligned} \quad (2.5.6)$$

此近似法的精神是把激子中的電子與電洞視為一個偶極矩，因此起始態(initial state)與終止態(final state)可以被當成兩個偶極矩，其庫倫作用等同於式(2.5.6)的積分。

接著，將表(2.2.1)與(2.2.2)所定義的 Bloch function 代入式

(2.5.6)，並且考慮 $|S\rangle$ 、 $|P_x\rangle$ 、 $|P_y\rangle$ 與 $|P_z\rangle$ 的正交性，則，

$$\int_{u.c.} d\bar{\tau} S^*(\bar{\tau}) P_x(\bar{\tau}) \bar{\tau} = \int_{u.c.} d\bar{\tau} S(\bar{\tau}) P_x^*(\bar{\tau}) \bar{\tau} \equiv \bar{P}_x = |\bar{P}| \hat{x} \quad (2.5.7a)$$

$$\int_{u.c.} d\bar{\tau} S^*(\bar{\tau}) P_y(\bar{\tau}) \bar{\tau} = \int_{u.c.} d\bar{\tau} S(\bar{\tau}) P_y^*(\bar{\tau}) \bar{\tau} \equiv \bar{P}_y = |\bar{P}| \hat{y} \quad (2.5.7b)$$

$$\int_{u.c.} d\bar{\tau} S^*(\bar{\tau}) P_z(\bar{\tau}) \bar{\tau} = \int_{u.c.} d\bar{\tau} S(\bar{\tau}) P_z^*(\bar{\tau}) \bar{\tau} \equiv \bar{P}_z = |\bar{P}| \hat{z} \quad (2.5.7c)$$

\bar{P}_α 為 Bloch function 在 α 方向 ($\alpha = x, y, z$) 所引發的偶極矩，其中，

$|\bar{P}|^2 = \frac{\hbar^2 E_p}{2m_0 E_g^2}$ 稱為 interband dipole matrix element[6,20]， E_p 為導電帶與

價電帶間的交互作用能(conduction-valence band interaction energy)，

E_g 為導帶與價帶頂端的能隙(energy gap)。

為了方便起見，在此定義：

$$w_{\alpha\beta}^{LR}(\Delta\bar{R}) = \frac{\bar{P}_\alpha \cdot \bar{P}_\beta}{|\Delta\bar{R}|^3} - \frac{3(\Delta\bar{R} \cdot \bar{P}_\alpha)(\Delta\bar{R} \cdot \bar{P}_\beta)}{|\Delta\bar{R}|^5}, \quad \alpha, \beta = x, y, z \quad (2.5.8)$$

表示相距為 $\Delta\bar{R}$ 的兩偶極矩 \bar{P}_α 與 \bar{P}_β 間的交互作用。

最後對光激子組態而言，就可以整理出電子—電洞間的長程交換

作用如式(2.5.9)所示：

$$\delta_{ijkl}^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_e \uparrow_e, LR} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \iint d\bar{R} d\Delta\bar{R} \phi_i^c(\bar{R} - \Delta\bar{R}) \phi_j^v(\bar{R} - \Delta\bar{R}) \phi_k^v(\bar{R}) \phi_l^c(\bar{R}) \\ \times W^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_e \uparrow_e, LR}(\Delta\bar{R}) \quad (2.5.9)$$

其中，

$$W^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR}(\Delta \bar{R}) = \frac{1}{2} \left[-w_{xx}^{LR}(\Delta \bar{R}) + iw_{xy}^{LR}(\Delta \bar{R}) + iw_{yx}^{LR}(\Delta \bar{R}) + w_{yy}^{LR}(\Delta \bar{R}) \right] \quad (2.5.10)$$

且，

$$w_{xx}^{LR}(\Delta \bar{R}) = |\bar{P}|^2 \left(\frac{1}{|\Delta \bar{R}|^3} - \frac{3\Delta x}{|\Delta \bar{R}|^5} \right) \quad (2.5.11a)$$

$$w_{yy}^{LR}(\Delta \bar{R}) = |\bar{P}|^2 \left(\frac{1}{|\Delta \bar{R}|^3} - \frac{3\Delta y}{|\Delta \bar{R}|^5} \right) \quad (2.5.11b)$$

$$w_{xy}^{LR}(\Delta \bar{R}) = -\frac{3\Delta x \Delta y |\bar{P}|^2}{|\Delta \bar{R}|^5} \quad (2.5.11c)$$

從 2.3 節～2.5 節，建立了電子－電洞間庫倫交互作用，包括直接庫倫作用與長程交換作用的理論基礎，觀察理論公式可以發現，接著只需決定波包函數，就可以更進一步討論電子－電洞庫倫交互作用。



第三章：電子與電洞的直接庫倫作用與交換作用

3.1 三維非等向性拋物線位能

由式(2.4.2)與式(2.5.9)可知，想要定量的計算電子與電洞間的直接庫倫作用以及交換作用，可以先經由有限差分的數值方法得到電子與電洞的波包函數，再代入式(2.4.2)與式(2.5.9)計算，這需要相當大的計算量才能得到較可靠的結果[6]。但由於量子點在成長的過程中磊晶層和覆蓋層或緩衝層間可能發生交互擴散(interdiffusion)以及偏析作用(segregation)造成分子組成漸變的量子點邊界[9]，因此可以將量子點內的位能用三維非等向性拋物線位能模型來近似，如圖(3.1.1.)所示，便可以化簡問題，得到電子—電洞交換作用的解析結果[6,16]。

描述電子或電洞受到三維非等向性拋物線位能作用下的行為，其漢米頓量如式(3.1.1)所示：

$$\hat{H} = \frac{\hat{P}^2}{2m_{\beta}^*} + \frac{1}{2}m_{\beta}^* (\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2), \quad \beta = e/h \quad (3.1.1)$$

其中， m_{β}^* 代表電子或電洞的有效質量，而 ω_{α} ($\alpha = x, y, z$)表示拋物線侷限位能在各個方向上的特徵頻率(characteristic frequency)。利用分離變數法，可解得電子與電洞基態波函數如式(3.1.2a)、(3.1.2b)所示，可以發現這是高斯函數的形式：

$$\phi^c(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x^e l_y^e l_z^e}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x}{l_x^e} \right)^2 + \left(\frac{y}{l_y^e} \right)^2 + \left(\frac{z}{l_z^e} \right)^2 \right) \right] \quad (3.1.2a)$$

$$\phi^v(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x^h l_y^h l_z^h}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x}{l_x^h} \right)^2 + \left(\frac{y}{l_y^h} \right)^2 + \left(\frac{z}{l_z^h} \right)^2 \right) \right] \quad (3.1.2b)$$

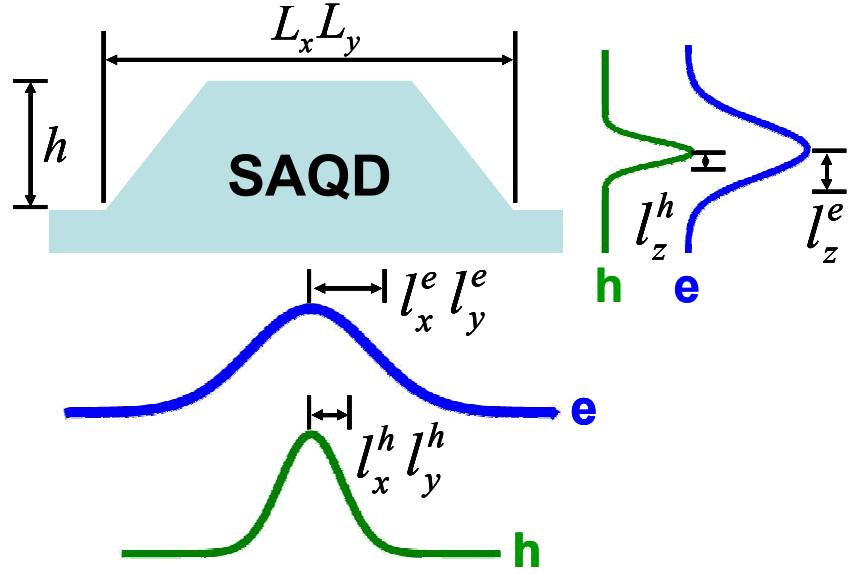
其中，

$$l_\alpha^\beta = \sqrt{\frac{\hbar}{m_\beta^* \omega_\alpha}}, \quad \alpha = x, y, z, \quad \beta = e/h \quad (3.1.3)$$

為電子與電洞波函數在各個方向的特徵長度(characteristic length)，其物理意義為電子與電洞在各個方向分布範圍的方均根值(root mean square, rms)的 $\sqrt{2}$ 倍，如式(3.1.4)所示，可以用來估算電子與電洞的分布範圍，如圖(3.1.2)所示。

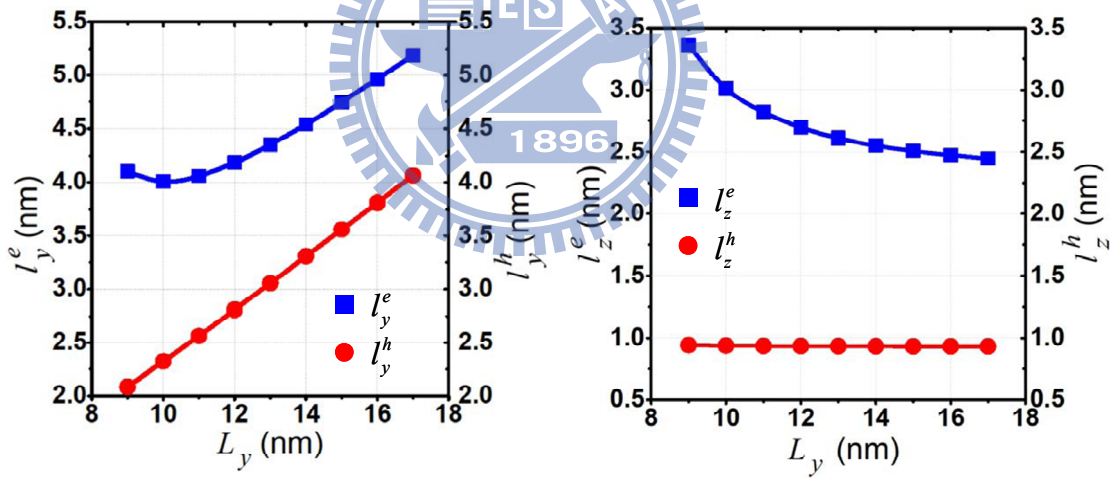
$$l_\alpha^\beta = \sqrt{2 \langle \alpha^2 \rangle_\beta}, \quad \alpha = x, y, z, \quad \beta = e/h \quad (3.1.4)$$

對一個長寬高分別為 L_x 、 L_y 、 h 的量子點而言，量子點尺寸與特徵長度的關係如圖(3.1.3)所示，可以發現，當量子點的高度為 $h=1.8(\text{nm})$ ，底部寬度 L_y 為 $9(\text{nm}) \sim 17(\text{nm})$ 時，電子的特徵長度 l_y^e 約為 $4(\text{nm}) \sim 5.5(\text{nm})$ ， l_z^e 約為 $2.5(\text{nm}) \sim 3.5(\text{nm})$ ，而電洞的特徵長度 l_y^h 約為 $4(\text{nm}) \sim 5.5(\text{nm})$ ， l_z^h 約為 $1(\text{nm})$ 。值得注意的是，當量子點的尺寸變小的時候，會提高電子的基態能量，以至於電子會有更多成分擴散到量子點的外部，因此產生了特徵長度反轉的現象[7]。



圖(3.1.2)、用三維非等向性拋物線位能模擬 SAQD 內的基態波函數

其中， L_x 、 L_y 、 h 代表量子點的長寬高，而 l_α^β ，($\alpha = x, y, z$ 、 $\beta = e/h$) 稱為電子或電洞的特徵長度，可用來估算電子或電洞的分布範圍。

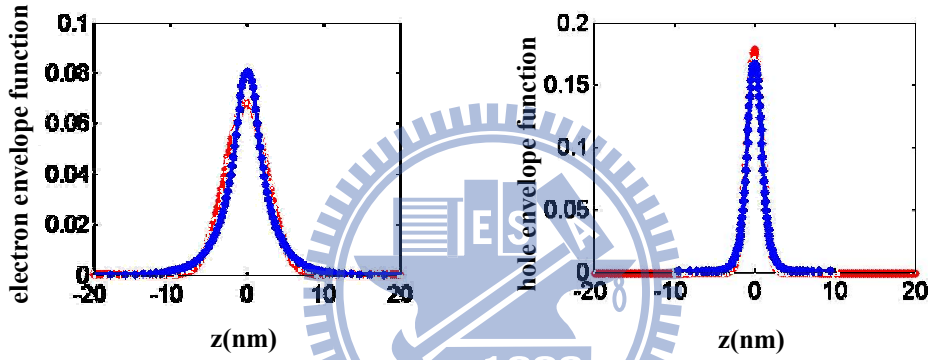


圖(3.1.3)、特徵長度隨量子點尺寸改變的關係圖

藍色方格為電子的特徵長度，紅色圓點為電洞的特徵長度。可以發現，電子的特徵長度 l_y^e 約為 4(nm)~5.5(nm)， l_z^e 約為 2.5(nm)~3.5(nm)，而電洞的特徵長度 l_y^h 約為 4(nm)~5.5(nm)， l_z^h 約為 1(nm)。值得注意的是，當量子點的尺寸變小時，會提高電子的基態能量，以至於電子會有更多成分擴散到量子點的外部，因此產生了特徵長度反轉的現象。

資料來源：資料來源：H. Y. Ramirez, *et al*, Phys. Rev. B. **81**, 245324 (2010).

在自組式量子點內，由於強烈的量子局限效應，我們可以假設波包函數 $\phi(\bar{R})$ 處於最低能態，在本研究中，將使用有限差分法模擬出量子點電子與電洞的基態波函數後，再代入式(3.1.4)中，就可以計算出相對應的特徵長度。將使用有限差分法所模擬出來的基態波函數與式(3.1.1a)、(3.1.1b)作一比較，如圖(3.1.2)所示，發現當波函數集中時，式(3.1.1a)、(3.1.1b)近似的效果較好。



圖(3.1.2)、有限差分法模擬的基態波函數與高斯函數比較
其中紅線部分為高斯函數，藍線部分則為有限差分法所模擬出來的基態波函數。
量子點形狀為截角金字塔，底部長 $L_x=10.5(\text{nm})$ ，寬為 $L_y=10(\text{nm})$ ，高為 $L_z=1.8(\text{nm})$ ，其餘材料參數請參閱文獻[7]。(本圖由徐燁學弟所完成)

3.2 直接庫倫作用與交換作用解析結果

假設電子與電洞波函數對稱，即 $l_x^e = l_x^h = l_x$ 、 $l_y^e = l_y^h = l_y$ 、 $l_z^e = l_z^h = l_z$ ，則可由文獻[21]得到電子－電洞直接庫倫作用解析結果，由於真實的量子點在 $x-y$ 方向上有些微的不對稱，於是定義 $l_{\parallel} \equiv \sqrt{l_x l_y}$ 為電子與電洞在橫向的平均特徵長度，當量子點的高寬比分別為 $l_z/l_{\parallel} > 1$ 、 $l_z/l_{\parallel} = 1$ 、

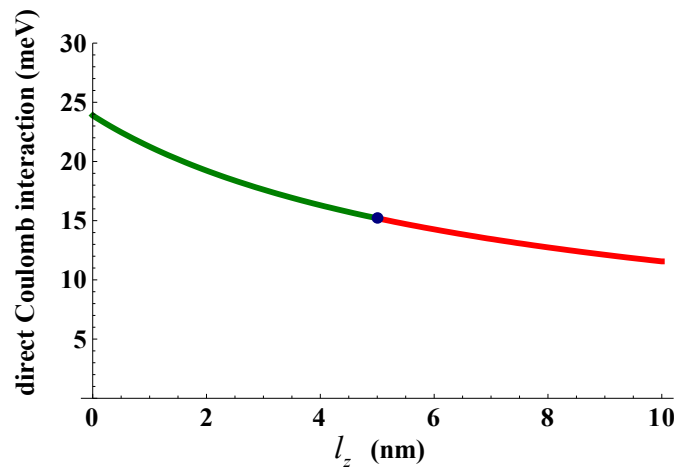
$l_z/l_{\parallel} < 1$ 時，對應的電子－電洞直接庫倫作用為式(3.2.1a)、式(3.2.1b)、式(3.2.1c)，詳細推導過程請參閱附錄一。

$$V \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_z} \times \frac{\tanh^{-1}\left(\sqrt{1-(l_{\parallel}/l_z)^2}\right)}{\sqrt{1-(l_{\parallel}/l_z)^2}}, \quad l_z/l_{\parallel} > 1 \quad (3.2.1a)$$

$$V \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_{\parallel}}, \quad l_z/l_{\parallel} = 1 \quad (3.2.1b)$$

$$V \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_{\parallel}} \times \frac{\sin^{-1}\left(\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}\right)}{\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}}, \quad l_z/l_{\parallel} < 1 \quad (3.2.1c)$$

今固定量子點的底部大小，只改變量子點的高度，可以發現，隨著量子點的高度增加，量子點內電子－電洞間的距離也因此增加，導致電子－電洞間的直接庫倫作用會變小，如圖(3.2.1)所示，這與直觀的物理圖像符合。



圖(3.2.1)、 l_z 與直接庫倫作用的關係

固定 $l_{\parallel} = 5(\text{nm})$ ，隨著 l_z 的增加，直接庫倫作用變小，圖中綠線部分為式(3.2.1c)，紅線部分為式(3.2.1a)，而藍色實心點為式(3.2.1b)的結果。

同樣的，也可以得到長程交換作用的解析結果[7]，如式(3.2.2)

所示：

$$\delta^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR} = K \times \xi (1 - \xi) \frac{\gamma_z}{l_y^3} \quad (3.2.2)$$

其中， $K = \frac{3\sqrt{\pi}e^2\hbar^2 E_p}{(4\pi\epsilon_0)16\sqrt{2}\epsilon m_0 E_g^2}$ 為與材料特性有關的常數， E_g 為塊材的能

隙(energy gap)、 ϵ 為材料的介電常數(dielectric constant)、 E_p 為導帶與價帶間的交互作用能(conduction-valence band interaction energy)，而

$\xi \equiv l_y/l_x$ 為波函數特徵長度的變形比例(deformation factor)，如圖(3.2.2)

所示。 γ_z 為 l_z 的函數，表示長程交換作用在三維模型時的修正項，

$$\gamma_z = \exp\left[\left(\frac{3\sqrt{\pi}l_z}{4l_y}\right)^2\right] \text{erfc}\left(\frac{3\sqrt{\pi}l_z}{4l_y}\right), \text{erfc}(x) \text{ 為補誤差函數(complementary}$$

error function)，當量子點為理想的二維系統時($l_z=0$)， $\gamma_z=1$ 。觀察式

(3.2.2)可知，影響長程交換作用的因素有下列三項：

(1)、材料特性：

包括用來表示導電帶與價電帶交互作用強弱的參數 E_p 、能隙 E_g 以及材料介電常數 ϵ 等。當 E_p 越小或 E_g 越大時，都可理解為電子－電洞間的能階距離變大，交互作用變小，因此長程交換作用的值越小。

(2)、量子點的尺寸：

長程交換作用本質上可視為偶極與偶極間的交互作用，因此跟距離的三次方成反比($\propto 1/l_y^3$)，當量子點的尺寸越大，電子、電洞在空間中的

距離也隨之變大，使得交互作用變小，長程交換作用變小。

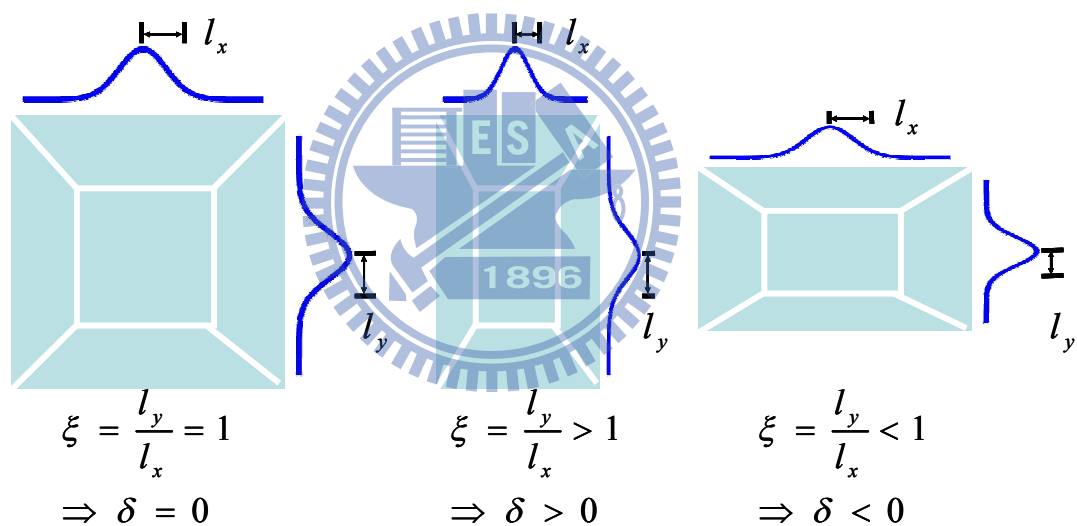
(3)、量子點的不對稱性：

當量子點平面旋轉對稱時，即 $l_x = l_y$ ，使得 $1 - \xi = 0$ ，長程交換作用為零，與文獻[5]的結果相同。

assume e-h symmetry

$$l_x^e = l_x^h = l_x$$

$$l_y^e = l_y^h = l_y$$

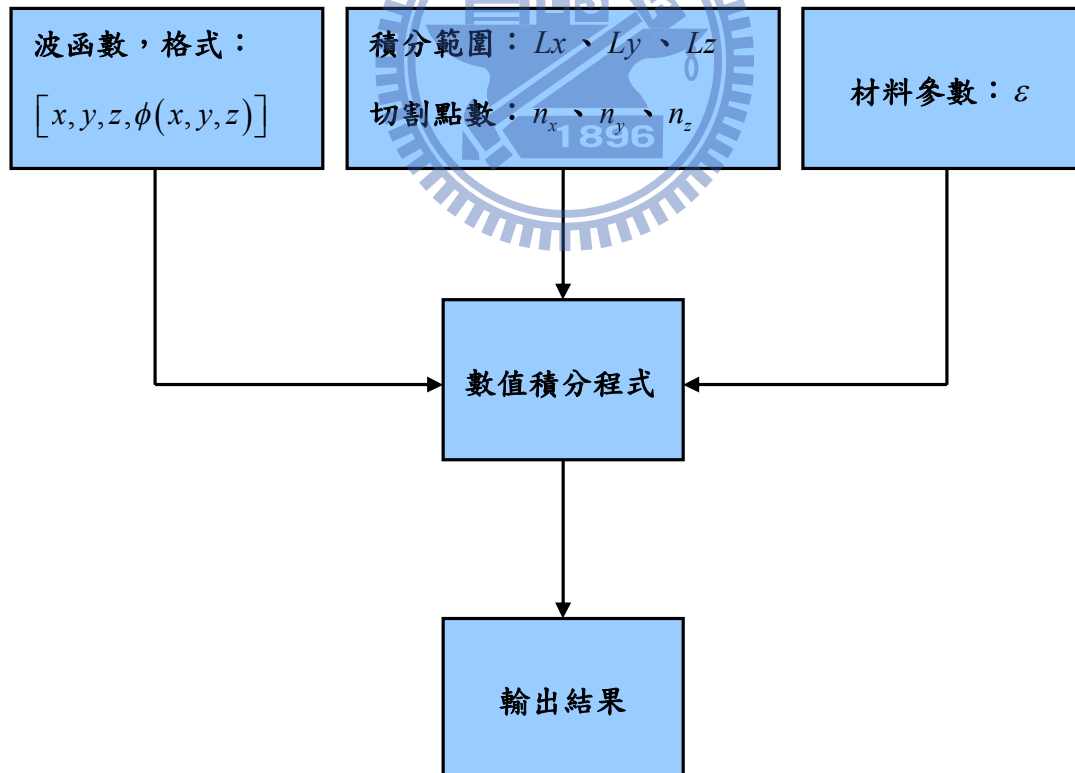


圖(3.2.2)、形變比例與長程交換作用的關係

第四章：數值方法

這一章首先介紹本文所使用的數值積分方法，以及驗證所寫的數值積分程式的準確性，接著利用數值程式探討解析公式的適用範圍，最後模擬各種不同特徵長度的電子－電洞交互作用。

在此所使用的數值積分方法為矩形法，並且使用 Fortran 來撰寫程式碼。程式的使用流程圖如圖(4.0.1)所示：首先輸入所需要的波函數檔案，接著決定積分範圍、材料參數以及每個維度要切割的格點數，最後本數值程式就可以輸出所需要的積分值。



圖(4.0.1)、數值程式流程圖

4.1 數值積分方法原理

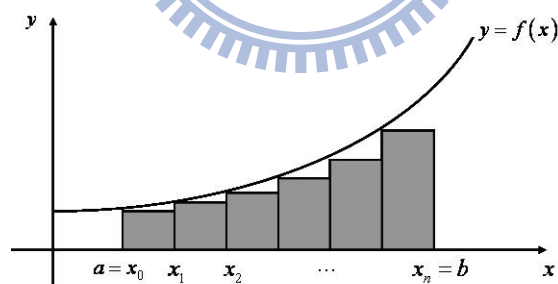
以一維定積分為例，如圖(4.1.1)所示，考慮區間 $x_a \leq x \leq x_b$ ，將此區間切割為 n 個寬度為 Δx_i 的子區間，則各子區間的座標為：

$$x_i = x_a + (i-1) \times \Delta x_i, \quad i=1, 2, 3, \dots, n \quad (4.1.1)$$

則求取定積分 $\int_{x_a}^{x_b} f(x) dx$ 的值即可近似為求 $x = x_a \sim x = x_b$ 間的矩形總面積，若以兩相鄰座標中點的函數值作為矩形的高，數學形式可表示為：

$$\int_{x_a}^{x_b} f(x) dx \approx \lim_{\Delta x_i \rightarrow 0} \sum_{i=1}^m f\left(x_a + \left(i - \frac{1}{2}\right) \Delta x_i\right) \Delta x_i \quad (4.1.2)$$

隨著切割的格點數變多，矩形的寬度越窄，矩形的總面積便與所求的定積分值越來越接近。



圖(4.1.1)、矩形法求定積分示意圖

今考慮均勻格點，即 $\Delta x_i = \Delta x = (x_b - x_a)/n$ ，則式(4.1.2)可以改寫為

$$\int_{x_a}^{x_b} f(x) dx \approx \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \sum_{i=1}^n f\left(x_a + \left(i - \frac{1}{2}\right) \Delta x\right) \Delta x \quad (4.1.3)$$

將上式推廣到三維的狀況，則數學形式可以表示為：

$$\int_{x_a}^{x_b} \int_{y_a}^{y_b} \int_{z_a}^{z_b} f(x, y, z) dx dy dz \approx \lim_{\Delta x, \Delta y, \Delta z \rightarrow 0} \sum_{i,j,k} f(x_i, y_j, z_k) \Delta x \Delta y \Delta z \quad (4.1.4)$$

其中，

$$x_i = x_a + \left(i - \frac{1}{2}\right) \times \Delta x \quad y_j = y_a + \left(j - \frac{1}{2}\right) \times \Delta y \quad z_k = z_a + \left(k - \frac{1}{2}\right) \times \Delta z \quad (4.1.5a)$$

$$\Delta x = \frac{x_a - x_b}{n_x} \quad \Delta y = \frac{y_a - y_b}{n_y} \quad \Delta z = \frac{z_a - z_b}{n_z} \quad (4.1.5b)$$

4.2 數值方法的收斂性與驗證討論

接著驗證本數值方法的效率與可信度，考慮電子－電洞的直接庫倫作用，在三維非等向性拋物線位能模型下，假設電子與電洞波函數對稱，則基態波函數為：

$$\phi^c(\vec{r}_1) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x l_y l_z}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x_1}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_z} \right)^2 \right) \right] \quad (4.2.1a)$$

$$\phi^v(\vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x l_y l_z}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \quad (4.2.1b)$$

因此直接庫倫作用可表示如式(4.2.2)所示：

$$\begin{aligned} V = & \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_x^2 l_y^2 l_z^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx_1 dy_1 dz_1 \exp \left[-\left(\left(\frac{x_1}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ & \times \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[-\left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ & \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \end{aligned} \quad (4.2.2)$$

式(4.2.2)是對整個空間作積分，這對數值積分而言是難以做到而

且沒效率的，因此將積分上下限設為有限值 $\pm L_\alpha$ ($\alpha = x, y, z$)，再根據問題的需要而調整上下限的值。在本研究裡，波包函數在三倍特徵長度時就幾乎衰減為零，如圖(4.2.1)所示，所以取積分上下限 $\pm L_\alpha = \pm 3l_\alpha$ ，

如式(4.2.5)所示：

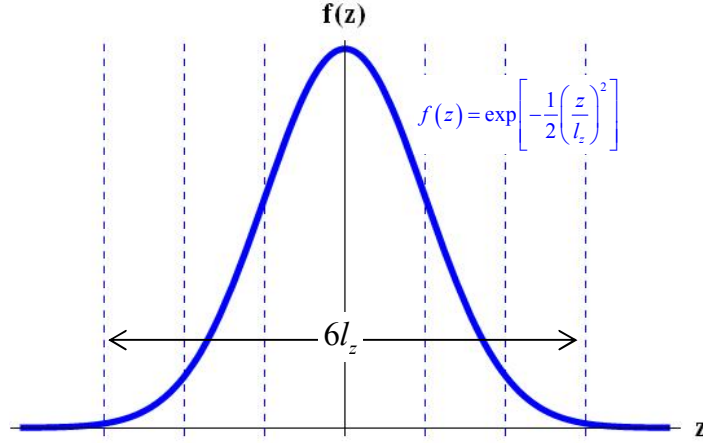
$$V \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_x^2 l_y^2 l_z^2} \int_{-L_x}^{L_x} \int_{-L_y}^{L_y} \int_{-L_z}^{L_z} dx_1 dy_1 dz_1 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_1}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times \int_{-L_x}^{L_x} \int_{-L_y}^{L_y} \int_{-L_z}^{L_z} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \quad (4.2.4)$$

$$\approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_x^2 l_y^2 l_z^2} \int_{-3l_x}^{3l_x} \int_{-3l_y}^{3l_y} \int_{-3l_z}^{3l_z} dx_1 dy_1 dz_1 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_1}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times \int_{-3l_x}^{3l_x} \int_{-3l_y}^{3l_y} \int_{-3l_z}^{3l_z} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \quad (4.2.5)$$

$$= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_x^2 l_y^2 l_z^2} \int_{-3l_x}^{3l_x} \int_{-3l_y}^{3l_y} \int_{-3l_z}^{3l_z} dx_1 dy_1 dz_1 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_1}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times F(x_1, y_1, z_1) \quad (4.2.6)$$

其中，

$$F(x_1, y_1, z_1) = \int_{-3l_x}^{3l_x} \int_{-3l_y}^{3l_y} \int_{-3l_z}^{3l_z} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \quad (4.2.7)$$



圖(4.2.1)、高斯函數分布範圍示意圖

觀察圖(4.2.1)可發現，波函數在三倍特徵長度時就衰減為零，因此可以調整積分上下限為 $\pm 3l_z$

觀察式(4.2.7)可以發現，當 $x_1 = x_2$ 、 $y_1 = y_2$ 、 $z_1 = z_2$ 時，函數 F 會有奇異點(singular point)產生，因此我們可以把式(4.2.7)分成奇異點部份積分 F_S 以及非奇異點部份積分 F_N 來處理：

$$F(x_1, y_1, z_1) = F_S(x_1 = x_2, y_1 = y_2, z_1 = z_2) + F_N(x_1 \neq x_2, y_1 \neq y_2, z_1 \neq z_2) \quad (4.2.8)$$

奇異點部份 F_S 可以視為在一個單位體積元裡的積分[17]，因為波包函數在積分範圍內的變化很小，可視為常數，則：

$$\begin{aligned} F_S(x_1, y_1, z_1) &= \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\ &\quad \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\ &\approx \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \times \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx_2 dy_2 dz_2 \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\
& = \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_z} \right)^2 \right) \right] \times 3s^2 \left[\frac{\pi}{6} + \log \left[\frac{(1 + \sqrt{3})^2}{2} \right] \right] \quad (4.2.9)
\end{aligned}$$

其中， s 代表在數值積分方法裡，兩相鄰格點的距離，而式(4.2.9)要求三個方向的格點距離都必須相同。關於式(4.2.9)的推導過程，可以參考附錄二。

最後把式(4.2.6)、(4.2.7)用數值積分方法進行計算，如式(4.2.10)

與(4.2.11)所示，這是直接庫倫作用的數值積分式。

$$V \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_x^2 l_y^2 l_z^2} \sum_{i,j,k} \Delta x \Delta y \Delta z \exp \left[- \left(\left(\frac{x_i}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_j}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_k}{l_z} \right)^2 \right) \right] \times F(x_i, y_j, z_k) \quad (4.2.10)$$

其中，

$$\begin{aligned}
F(x_i, y_j, z_k) \approx & \sum_{\substack{l,m,n \\ i \neq l, j \neq m, k \neq n}} \Delta x \Delta y \Delta z \exp \left[- \left(\left(\frac{x_l}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_m}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_n}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\
& \times \frac{1}{\sqrt{(x_i - x_l)^2 + (y_j - y_m)^2 + (z_k - z_n)^2}} \\
& + \sum_{\substack{l,m,n \\ i=l, j=m, k=n}} \exp \left[- \left(\left(\frac{x_l}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_m}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_n}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\
& \times \left[3s^2 \left[\frac{\pi}{6} + \log \left[\frac{(1 + \sqrt{3})^2}{2} \right] \right] \right] \quad (4.2.11)
\end{aligned}$$

接著將波函數分成(1)球型對稱($l_x = l_y = l_z = l_0$)、(2)平面旋轉對稱($l_x = l_y = l \neq l_z$)、(3)完全不對稱($l_x \neq l_y \neq l_z$)三種不同的狀況來討論。球型對稱與平面旋轉對稱已經有完整的解析結果 [21]，而必須使用近似才能得到完全不對稱的解析公式。於是利用前兩種狀況驗證數值方法的準確性與效率，而在下一節利用數值方法來探討當波函數完全不對稱時，其解析公式的適用範圍。

(1)波函數為球形對稱($l_x = l_y = l_z = l_0$)

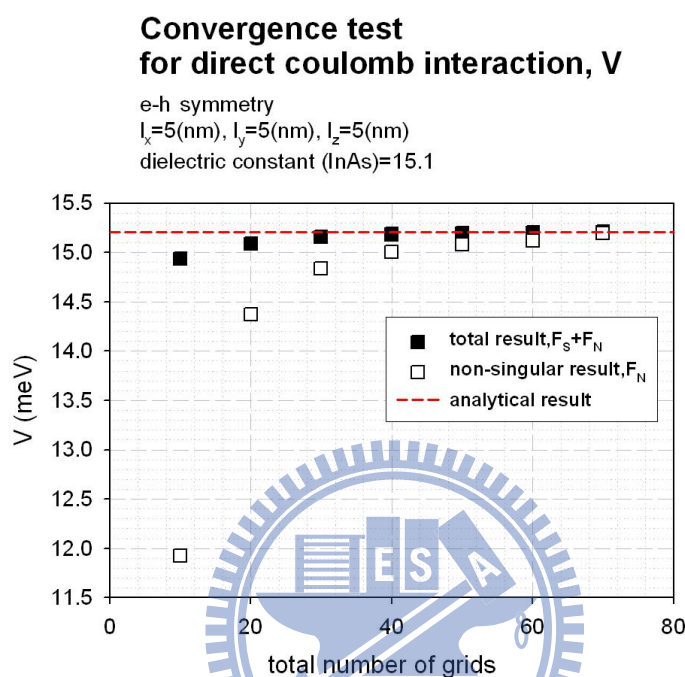
當波函數為球形對稱時，直接庫倫作用的解析公式如式(4.2.13)所示，詳細推導過程請參考附錄一。

$$V = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 l_0^6} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx_1 dy_1 dz_1 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_1}{l_0} \right)^2 + \left(\frac{y_1}{l_0} \right)^2 + \left(\frac{z_1}{l_0} \right)^2 \right) \right] \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left(\left(\frac{x_2}{l_0} \right)^2 + \left(\frac{y_2}{l_0} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{l_0} \right)^2 \right) \right] \\ \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \quad (4.2.12)$$

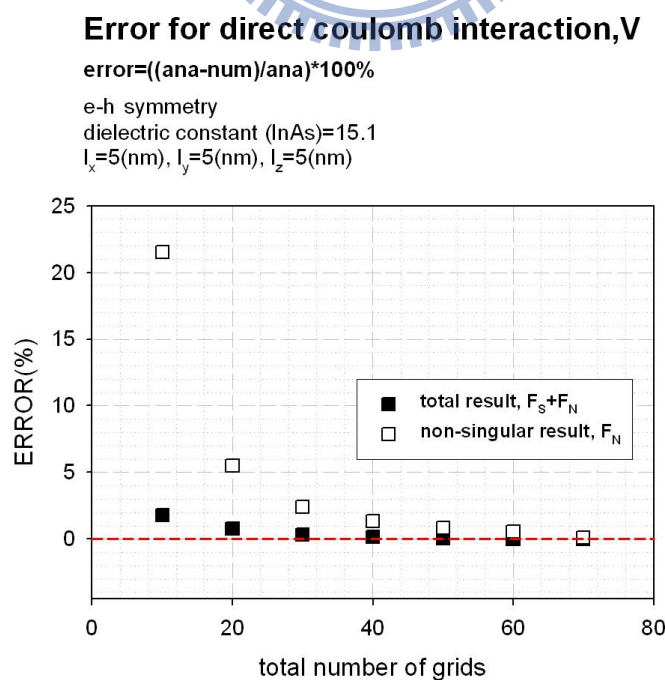
$$= \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi} l_0} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \quad (4.2.13)$$

在此選用的特徵長度 $l_x = l_y = l_z = l_0 = 5 \text{ (nm)}$ ，且材料介電常數為 15.1，但因為式(4.2.11)在使用上限制 $s = \Delta x = \Delta y = \Delta z$ ，也就是三個方向的格點必須一樣大，為了考慮程式的通用性，所以將不考慮奇異點部份的積分(F_N)與完整的積分結果($F_S + F_N$)，同時進行收斂分析以及不同

格點數所需的時間整理，如圖(4.2.2)、(4.2.3)、(4.2.4)所示，可以發現雖然不考慮奇異點時，數值積分的收斂比較慢，但大約只需半小時，兩種方式都可以得到滿意的收斂結果。



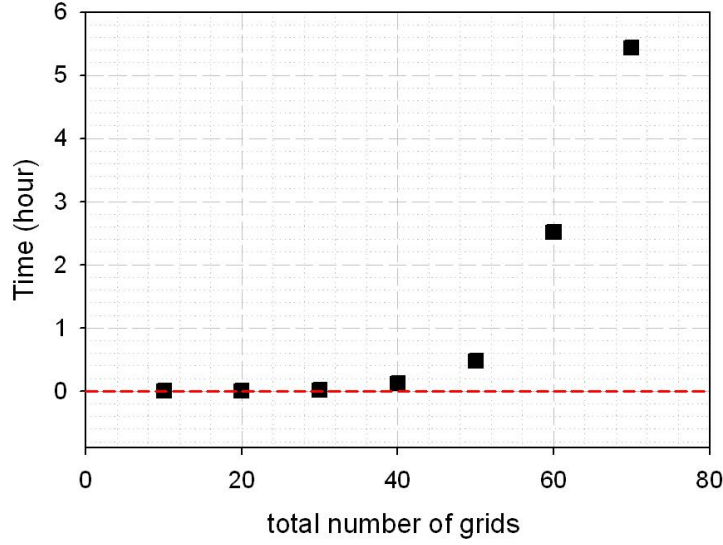
圖(4.2.2)、直接庫倫積分的收斂分析圖



圖(4.2.3)、直接庫倫積分的誤差比較圖

Time for direct coulomb interaction, V

e-h symmetry ,
 $l_x=5(\text{nm}), l_y=5(\text{nm}), l_z=5(\text{nm})$



圖(4.2.4)、直接庫倫積分所需時間整理

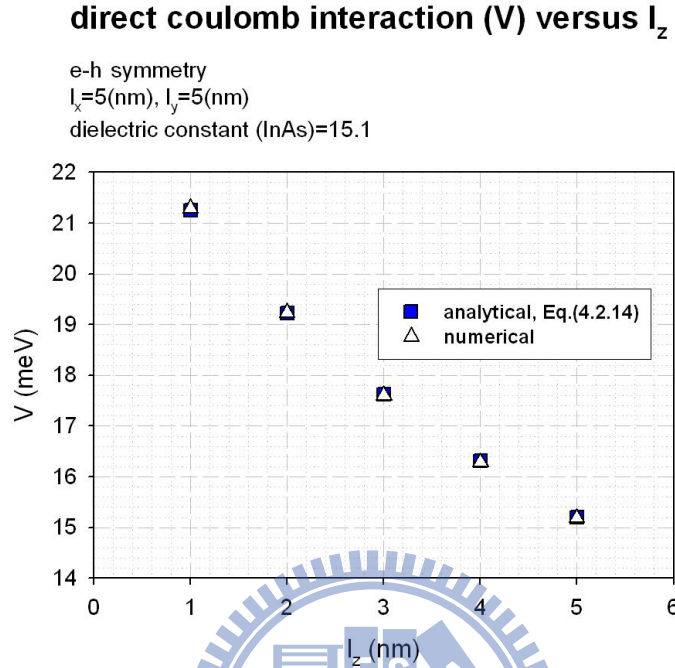
針對球型對稱的狀況，圖(4.2.2)、(4.2.3)、(4.2.4)分別為直接庫倫積分的收斂分析、誤差分析、以及所需的時間整理。其中空心方格為不考慮奇異點的積分結果(F_N)，實心方格為完整的積分結果(F_S+F_N)，不考慮奇異點的積分與完整的積分在每個維度切 50 個格點的時候都收斂至相同的結果，所需的時間大約為半個小時，使用的機器為國家高速電腦中心的 FORMOSA II pc cluster，使用的編譯器為 gfortran。

(2)波函數為平面旋轉對稱

自組式量子點的形狀多為島狀隆起，因此考慮波函數為平面旋轉對稱($l_x=l_y=l \neq l_z$)，由文獻[21]可知，當量子點的高寬比為 $l_z/l < 1$ 時，直接庫倫作用將如式(4.2.14)所示：

$$V_{eh} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon l} \frac{\sqrt{2} \sin^{-1}\left(\sqrt{1-(l_z/l)^2}\right)}{\sqrt{\pi}\left(\sqrt{1-(l_z/l)^2}\right)} \quad (4.2.14)$$

在此固定底部的特徵長度 $l_x = l_y = l = 5 \text{ (nm)}$ ，再針對不同的 l_z 與直接庫倫作用的關係作圖，材料介電常數為 15.1，如圖(4.2.5)所示，



圖(4.2.5)、平面旋轉對稱直接庫倫積分

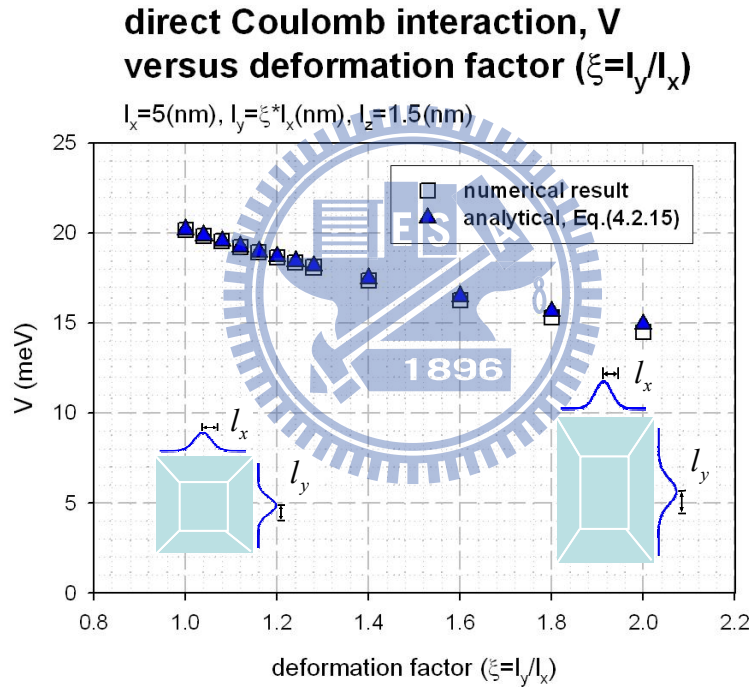
經由上述的驗證，可以確信數值積分方法是可信的，於是將利用數值積分式(4.2.10)與(4.2.11)，驗證波函數完全不對稱時解析公式的適用範圍。

4.3 直接庫倫作用數值驗證

實際上，量子點系統在 $x-y$ 平面上存在著些微的不對稱性，即， $l_x \neq l_y$ ，因此定義 $l_{||} \equiv \sqrt{l_x l_y}$ 為橫向平均特徵長度，修改平面旋轉對稱的解析結果式(4.2.14)為完全不對稱的情形，如式(4.2.15)所示：

$$V_{eh} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{l_{\parallel}} \frac{\sqrt{2} \sin^{-1}\left(\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}\right)}{\sqrt{\pi}\left(\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}\right)} \quad (4.2.15)$$

為了驗證此假設是否合理，在此對式(4.2.10)、(4.2.11)進行數值計算，將結果與解析式(4.2.15)作比較，如圖(4.3.1)所示，在此選定的特徵長度 $l_x=5(\text{nm})$ 、 $l_z=1.5(\text{nm})$ ，材料的介電常數為 15.1，可以發現，即使量子點在 $x-y$ 平面有相當大的不對稱性，式(4.2.15)仍然適用。



圖(4.3.1)、針對不同的長寬比，直接庫倫作用數值與解析結果比較可以發現，即使量子點在 $x-y$ 平面的不對稱性很大，式(4.2.15)仍可適用。

4.4 長程交換作用數值驗證

由附錄二可知，進行長程交換作用解析結果推導時，使用了 $1-\xi \ll 1$ 的假設，也就是說，量子點在 $x-y$ 平面的不對稱性不能太大，

因此將使用數值方法來驗證長程交換作用式(3.2.2)的適用範圍。使用數值程式對長程交換作用式(2.5.9)進行計算，並且將結果與解析式(3.2.2)作比較，但因式(2.5.9)為一六重積分，需要極長的時間才可以獲得較準確的結果，在此將式(3.1.2a)、(3.1.2b)代入式(2.5.9)，可以得到式(2.5.9)在直角座標下的表示式：

$$\delta^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 (l_x l_y l_z)^2} \times \iint d\bar{R}_1 d\bar{R}_2 \exp \left[- \left(\frac{x_1^2}{l_x^2} + \frac{y_1^2}{l_y^2} + \frac{z_1^2}{l_z^2} \right) \right] \exp \left[- \left(\frac{x_2^2}{l_x^2} + \frac{y_2^2}{l_y^2} + \frac{z_2^2}{l_z^2} \right) \right] \\ \times W^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR}(\Delta \bar{R}) \quad (4.4.1)$$

進行座標轉換，令 $\bar{R}_2 = \bar{R}_1 - \Delta \bar{R}$ ， $\bar{R}_1 = \bar{R}$ 則式(4.4.1)可改寫為：

$$\delta^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 (l_x l_y l_z)^2} \times \iint d\bar{R} d\Delta \bar{R} \exp \left[- \left(\frac{x^2}{l_x^2} + \frac{y^2}{l_y^2} + \frac{z^2}{l_z^2} \right) \right] \\ \times \exp \left[- \left(\frac{(x - \Delta x)^2}{l_x^2} + \frac{(y - \Delta y)^2}{l_y^2} + \frac{(z - \Delta z)^2}{l_z^2} \right) \right] \\ \times W^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR}(\Delta \bar{R}) \quad (4.4.2)$$

將指數項的次方部分進行配方，則式(4.4.2)可以整理如式(4.4.3)：

$$\delta^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{\pi^3 (l_x l_y l_z)^2} \iint d\bar{R} d\Delta \bar{R} \\ \exp \left[-2 \left(\frac{1}{l_x^2} \left(x - \frac{1}{2} \Delta x \right)^2 + \frac{1}{l_y^2} \left(y - \frac{1}{2} \Delta y \right)^2 + \frac{1}{l_z^2} \left(z - \frac{1}{2} \Delta z \right)^2 \right) \right] \\ \times \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{\Delta x}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{\Delta y}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{\Delta z}{l_z} \right)^2 \right) \right] \times W^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR}(\Delta \bar{R}) \quad (4.4.3)$$

對 \bar{R} 作積分，可以得到

$$\begin{aligned}
 & \int d\bar{R} \exp \left[-2 \left(\frac{1}{l_x^2} \left(x - \frac{1}{2} \Delta x \right)^2 + \frac{1}{l_y^2} \left(y - \frac{1}{2} \Delta y \right)^2 + \frac{1}{l_z^2} \left(z - \frac{1}{2} \Delta z \right)^2 \right) \right] \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} dx dy dz \exp \left[-2 \left(\frac{1}{l_x^2} \left(x - \frac{1}{2} \Delta x \right)^2 + \frac{1}{l_y^2} \left(y - \frac{1}{2} \Delta y \right)^2 + \frac{1}{l_z^2} \left(z - \frac{1}{2} \Delta z \right)^2 \right) \right] \\
 &= \left(\sqrt{\frac{\pi}{2}} \right)^3 l_x l_y l_z \quad (4.4.4)
 \end{aligned}$$

因此，式(4.4.4)便可以化簡為一個三重積分，

$$\begin{aligned}
 \delta_e^{\downarrow_e \downarrow_h \uparrow_h \uparrow_e, LR} &= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{(2\pi)^{3/2} l_x l_y l_z} \times \int d\Delta \bar{R} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{\Delta x}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{\Delta y}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{\Delta z}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\
 &\quad \times W_e^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e, LR}(\Delta \bar{R}) \quad (4.4.5)
 \end{aligned}$$

因此我們改對三重積分式(4.4.5)進行數值運算，只處理積分部

分：

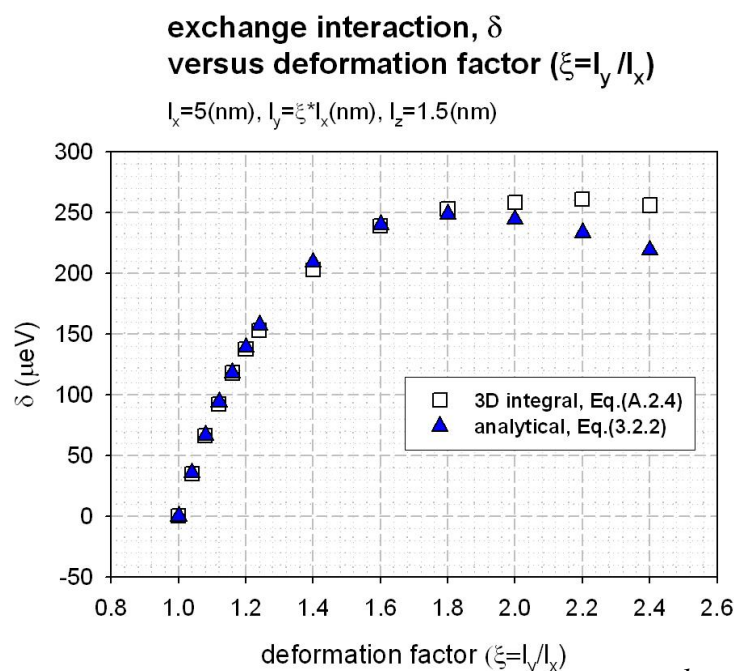
$$\begin{aligned}
 I &= \int dx dy dz \left(\frac{x^2 - y^2}{(x^2 + y^2 + z^2)^{5/2}} \right) \times \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z}{l_z} \right)^2 \right) \right] \\
 &\approx \sum_{i,j,k} \Delta x \Delta y \Delta z \left(\frac{x_i^2 - y_j^2}{(x_i^2 + y_j^2 + z_k^2)^{5/2}} \right) \times \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x_i}{l_x} \right)^2 + \left(\frac{y_j}{l_y} \right)^2 + \left(\frac{z_k}{l_z} \right)^2 \right) \right] \quad (4.4.6)
 \end{aligned}$$

值得注意的是，因為是計算長程交換作用項，所以只考慮 $x_i^2 + y_j^2 \geq a_0^2$ 部

份的積分值。在此所選定的特徵長度 $l_x=5(\text{nm})$ 、 $l_z=1.5(\text{nm})$ ，其他的

使用參數請參閱附錄四，將數值計算結果與解析結果整理如圖(4.4.1)

所示，可以發現 $1-\xi$ 在20%的範圍內是合理的近似。



圖(4.4.1)、針對不同的長寬比，長程交換作用數值結果與解析結果比較
可以發現，當 $1-\xi < 1$ 在 20% 的範圍內是合理的近似。

4.5 直接庫倫作用與長程交換作用數值模擬結果

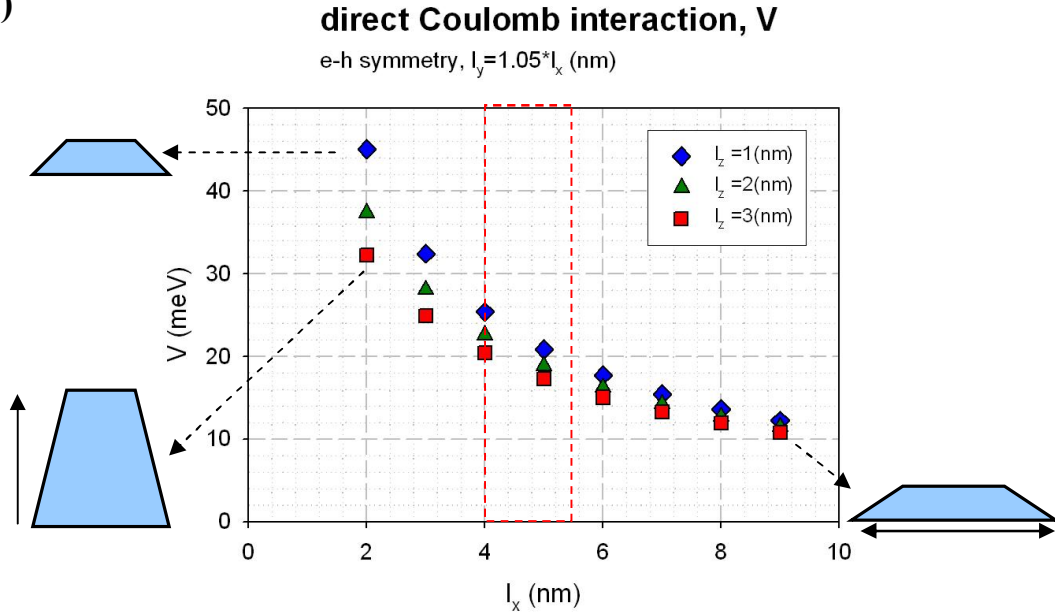
本節將針對各種不同的特徵長度，進行直接庫倫作用以及長程交換作用的數值模擬，在此假設電子－電洞的波函數對稱，固定量子點的長寬比 l_y/l_x 為 1.05，選定的特徵長度 l_x 為 2~9(nm)、 l_z 為 1~3(nm)，直接庫倫作用使用的材料介電常數為 15.1，而計算長程交換作用的材料參數請參閱附錄四。

首先來看直接庫倫作用的模擬結果，由圖(4.5.1)可以發現，對自

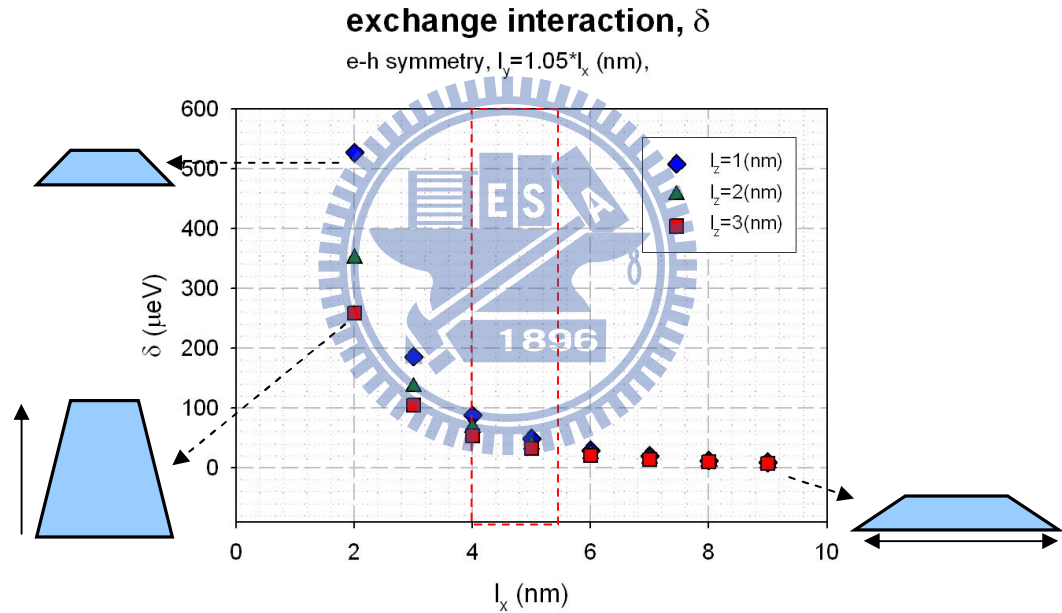
組式量子點而言，特徵長度 l_y 的範圍約為4~5(nm)， l_z 的範圍約為2~3(nm)[7]，所對應的直接庫倫作用範圍約15~20(meV)，當固定量子點底部的長寬時，隨著量子點的高度增加，直接庫倫作用隨之變小，而對於同一高度的量子點而言，隨著量子點的底部變大，電子—電洞重疊部分變少，直接庫倫作用也跟著變小。

接著看長程交換作用的模擬結果，由圖(4.5.2)可以發現，當量子點在x軸的長度比較長時，交換作用矩陣元為正值。對自組式量子點而言，特徵長度 l_y 的範圍約為4~5(nm)， l_z 的範圍約為2~3(nm)[7]，所對應的交換作用範圍約數十個 μeV ，由於長程交換作用微觀上可視為偶極間的交互作用，與距離的三次方成反比，所以對量子點的大小非常敏感，隨著量子點的尺寸增加，長程交換作用會更快的衰減。

(a)



(b)



圖(4.5.1)、針對不同特徵長度的模擬結果

觀察圖(4.5.1a)、(4.5.1b)可以發現，(1)隨著量子點的尺寸增加，電子—電洞間的距離也跟著變大，使得直接庫倫作用與長程交換作用都會變小。但由於長程交換作用微觀上可視為偶極間的交互作用，與距離的三次方成反比，長程交換作用會更快的衰減。(2)當量子點的x軸方向為長軸時，交換作用為正值。(3)對自組式量子點而言，特徵長度 l_y 的範圍約為4~5(nm)， l_z 的範圍約為2~3(nm)，所對應的直接庫倫作用與長程交換作用範圍分別為15~20(meV)與數十 μ eV。

第五章：結果與討論

5.1 結論

綜合前面幾章討論的結果，對於電子－電洞間的直接庫倫作用與交換作用的理論與數值模擬，歸納出以下結論：

(1)、在考慮完整波函數後，電子與電洞在半導體內的直接庫倫作用仍與在真空中的行為相同，但交換作用因為牽涉到自旋的交互作用，所以不能忽略 Bloch 函數的影響。

(2)、當量子點的形狀為球形對稱、平面旋轉對稱、甚至三個維度都不對稱，在三維非等向性拋物線位能下，直接庫倫作用的解析公式都可以適用。經由理論計算可以得知，當量子點越大時，直接庫倫作用會變小。

(3)、影響長程交換作用的因素包含了量子點的大小、量子點形狀的不對稱以及材料特性等，這對調控精細結構匹裂有相當大的幫助。在數值模擬與理論計算的結果比較後，當量子點的長寬差距在 20% 以內，解析公式都可以給出可信的結果。

5.2 未來展望

這個題目未來可以延伸的方向有二：

(1)、考慮電子與電洞波函數的不對稱性：在本文是假設電子與電洞的波函數對稱為基礎，推導出直接庫倫作用與長程交換作用的理論公式，但實際量子點裡的電子與電洞的波函數為不對稱，這對長程交換作用也會產生影響。

(2)、考慮四能帶模型(four band model)：將輕、重電洞的基底全部考慮進來，進而推導出新的直接庫倫作用以及交換作用的形式。但當考慮到輕電洞的基底時，重電洞與輕電洞的混成或是輕電洞與自旋波函數的不可分離，都可能造成理論推導的困難。

附錄一：直接庫倫作用解析公式推導

直接庫倫作用的定義如式(A.1.1)所示：

$$V_{ijkl}^{\downarrow_e \uparrow_h \downarrow_h \uparrow_e} = \iint d\vec{R}_1 d\vec{R}_2 \phi_i^{c*}(\vec{R}_1) \phi_j^{v*}(\vec{R}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon |\Delta\vec{R}|} \phi_k^v(\vec{R}_2) \phi_l^c(\vec{R}_1) \quad (\text{A.1.1})$$

若電子與電洞皆處於最低能態，在三維拋物線位能模型下，波包函數

可以用高斯函數表示為：

$$\phi^c(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x^e l_y^e l_z^e}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x}{l_x^e} \right)^2 + \left(\frac{y}{l_y^e} \right)^2 + \left(\frac{z}{l_z^e} \right)^2 \right) \right] \quad (\text{A.1.2a})$$

$$\phi^v(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2} l_x^h l_y^h l_z^h}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\left(\frac{x}{l_x^h} \right)^2 + \left(\frac{y}{l_y^h} \right)^2 + \left(\frac{z}{l_z^h} \right)^2 \right) \right] \quad (\text{A.1.2b})$$

其中， $l_x^e = \sqrt{2\langle x^2 \rangle_e}$ 、 $l_y^e = \sqrt{2\langle y^2 \rangle_e}$ 、 $l_z^e = \sqrt{2\langle z^2 \rangle_e}$ 、 $l_x^h = \sqrt{2\langle x^2 \rangle_h}$ 、 $l_y^h = \sqrt{2\langle y^2 \rangle_h}$ 、 $l_z^h = \sqrt{2\langle z^2 \rangle_h}$ 為電子與電洞在各個維度的特徵長度，可分別用來估算電子與電洞波函數在各個維度的分布範圍。

假設電子—電洞的波函數對稱，即 $l_x^e = l_x^h = l_x$ 、 $l_y^e = l_y^h = l_y$ 、 $l_z^e = l_z^h = l_z$ ，

若兩者的波函數分布皆為完美的球形對稱，即 $l_x = l_y = l_z = l_0$ ，則式(A.1.1)

在球座標下可以表示成：

$$V_{eh} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \left(\frac{1}{\pi^3 l_0^6} \right) \int_0^\infty r_1^2 dr_1 \int_0^\pi \sin\theta_1 d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\phi_1 \\ \times \int_0^\infty r_2^2 dr_2 \int_0^\pi \sin\theta_2 d\theta_2 \int_0^{2\pi} d\phi_2 \left[\exp \left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2} \right) \times \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \right] \quad (\text{A.1.2})$$

接著將 $1/|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ 項展開[19]：

$$\frac{1}{|r_1 - r_2|} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} P_l(\cos \beta) \quad (\text{A.1.3})$$

在此， $r_{>}$ 表示 r_1 或 r_2 中較大者，同樣的， $r_{<}$ 表示 r_1 或 r_2 中較小者， $P_l(x)$

為勒讓德多項式(Legendre polynomial)， β 為向量 r_1 與 r_2 的夾角，所以，

$$\cos \beta = \cos \theta_1 \times \cos \theta_2 + \sin \theta_1 \times \sin \theta_2 \times \cos(\phi_1 - \phi_2) \quad (\text{A.1.4})$$

因此，式(A.1.1)可改寫為：

$$\begin{aligned} V_{eh} = & \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \left(\frac{1}{\pi^3 l_0^6} \right) \sum_{l=0}^{\infty} \left[\int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2 \right] \\ & \times \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \int_0^{\pi} [\sin \theta_1 \sin \theta_2 P_l(\cos \beta)] d\theta_1 d\theta_2 d\phi_1 d\phi_2 \quad (\text{A.1.5}) \end{aligned}$$

考慮勒讓德多項式的正交性，

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \int_0^{\pi} [\sin \theta_1 \sin \theta_2 P_l(\cos \beta)] d\theta_1 d\theta_2 d\phi_1 d\phi_2 = \begin{cases} 16\pi^2 & \text{for } l = 0 \\ 0 & \text{for } l \neq 0 \end{cases} \quad (\text{A.1.6})$$

則式(A.1.5)可以整理成：

$$\begin{aligned} V_{eh} = & \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \left(\frac{16\pi^2}{\pi^3 l_0^6} \right) \left[\int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2 \right] \\ = & \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \left(\frac{16\pi^2}{\pi^3 l_0^6} \right) \int_0^{\infty} dr_1 \left[\int_0^{r_1} \left(\exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{1}{r_1} r_1^2 r_2^2 \right) dr_2 \right. \\ & \left. + \int_{r_1}^{\infty} \left(\exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{1}{r_2} r_1^2 r_2^2 \right) dr_2 \right] \quad (\text{A.1.7}) \end{aligned}$$

又因為，

$$\begin{aligned} & \int_0^{\infty} dr_1 \int_0^{r_1} \left(\exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{1}{r_1} r_1^2 r_2^2 \right) dr_2 \\ & = \int_0^{\infty} dr_1 \int_{r_1}^{\infty} \left(\exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{l_0^2}\right) \frac{1}{r_2} r_1^2 r_2^2 \right) dr_2 = \frac{l_0^5}{16} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \quad (\text{A.1.8}) \end{aligned}$$

最後可以得到在三維等向性拋物線模型下，電子－電洞的直接庫

倫作用的解析公式：

$$V_{eh} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{l_0} \quad (\text{A.1.9})$$

式(A.1.9)考慮的是波函數為完美球形對稱，若只考慮量子點的形狀為平面旋轉對稱，即 $l_x = l_y = l \neq l_z$ ，則由文獻[10]可知，當量子點的高寬比為 $l_z/l > 1$ 時，直接庫倫作用為：

$$\langle 000; 000 | V | 000; 000 \rangle = \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\pi l_z} \times \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)\Gamma(1)\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{3}{2}\right)} \times {}_2F_1\left(1, \frac{1}{2}; \frac{3}{2}; 1 - \left(\frac{l}{l_z}\right)^2\right) \quad (\text{A.1.10})$$

$$= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{l_z} \frac{\sqrt{2} \tanh^{-1}\left(\sqrt{1 - (l/l_z)^2}\right)}{\sqrt{\pi} \left(\sqrt{1 - (l/l_z)^2}\right)} \quad (\text{A.1.11})$$

而當量子點的高寬比 $l_z/l < 1$ 時，

$$\langle 000; 000 | V | 000; 000 \rangle = \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\pi l} \times \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)\Gamma(1)\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{3}{2}\right)} \times {}_2F_1\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}; \frac{3}{2}; 1 - \left(\frac{l_z}{l}\right)^2\right) \quad (\text{A.1.12})$$

$$= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{1}{l} \frac{\sqrt{2} \sin^{-1}\left(\sqrt{1 - (l_z/l)^2}\right)}{\sqrt{\pi} \left(\sqrt{1 - (l_z/l)^2}\right)} \quad (\text{A.1.13})$$

式(A.1.10)與式(A.1.12)中， $\Gamma(z)$ 為 Gamma 函數， ${}_2F_1(a, b; c; z)$ 為超幾何函數 (hypergeometric function)。

接著進一步探討其他的可能性，當量子點的形狀不是完全平面旋

轉對稱，即量子點的長寬比 $l_y/l_x \neq 1$ 時，若 $l_x \cong l_y$ ，定義：

$$l_{\parallel} = \sqrt{l_x l_y} \quad (\text{A.1.14})$$

為橫向的平均特徵長度，則電子－電洞間直接庫倫作用可以整理如表

(A.1.1)所示：

高寬比	直接庫倫作用
$\frac{l_z}{l_{\parallel}} > 1$	$V_{eh} \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_z} \times \frac{\tanh^{-1}\left(\sqrt{1-(l_{\parallel}/l_z)^2}\right)}{\sqrt{1-(l_{\parallel}/l_z)^2}}$
$\frac{l_z}{l_{\parallel}} = 1$	$V_{eh} \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_{\parallel}}$
$\frac{l_z}{l_{\parallel}} < 1$	$V_{eh} \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{l_{\parallel}} \times \frac{\sin^{-1}\left(\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}\right)}{\sqrt{1-(l_z/l_{\parallel})^2}}$

表(A.1.1)、不同高寬比所對應的直接庫倫作用解析公式整理

附錄二：直接庫倫作用的奇異點部份積分

當要進行式(4.2.6)的計算時，發現會有奇異點的產生，參考文獻[12]，可以知道奇異點部份 F_S 可以視為在一個單位體積元裡的積分，因為波包函數在積分範圍內的變化很小，可視為常數，則：

$$\begin{aligned}
 F_S(x_1, y_1, z_1) &= \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx_2 dy_2 dz_2 \exp \left[- \left((x_2/l_0)^2 + (y_2/l_0)^2 + (z_2/l_0)^2 \right) \right] \\
 &\quad \times \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\
 &\approx \exp \left[- \left((x_2/l_0)^2 + (y_2/l_0)^2 + (z_2/l_0)^2 \right) \right] \\
 &\quad \times \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx_2 dy_2 dz_2 \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \quad (A.2.1)
 \end{aligned}$$

所以我們只需處理式(A.3.1)裡面的積分，為了方便，令：

$$x = x_1 - x_2, \quad y = y_1 - y_2, \quad z = z_1 - z_2 \quad (A.2.2)$$

則，

$$\begin{aligned}
 &\int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx_2 dy_2 dz_2 \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\
 &= \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} \int_{-s/2}^{s/2} dx dy dz \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \\
 &= 8 \times \int_0^{s/2} \int_0^{s/2} \int_0^{s/2} dx dy dz \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \\
 &= 3s^2 \left(\frac{\pi}{6} + \log \left[\frac{(1 + \sqrt{3})^2}{2} \right] \right) \quad (A.2.3)
 \end{aligned}$$

其中 s 表示兩相鄰格點的距離，值得注意的是，式(A.3.3)僅適用於三

個維度的相鄰格點距離相同，即 $\Delta x = \Delta y = \Delta z$ 的狀況。

式(A.3.3)是使用套裝軟體 mathematica 所計算出來的結果，因此我們利用數值積分方法作再一次的確認，

$$\begin{aligned}
 & \int_0^{s/2} \int_0^{s/2} \int_0^{s/2} \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} dx dy dz \\
 & \approx \lim_{b \rightarrow 0} \int_b^{s/2} \int_b^{s/2} \int_b^{s/2} \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} dx dy dz \\
 & = \lim_{b \rightarrow 0} \sum_{i,j,k} \frac{1}{\sqrt{x_i^2 + y_j^2 + z_k^2}} \Delta x \Delta y \Delta z
 \end{aligned} \tag{A.2.4}$$

其中，

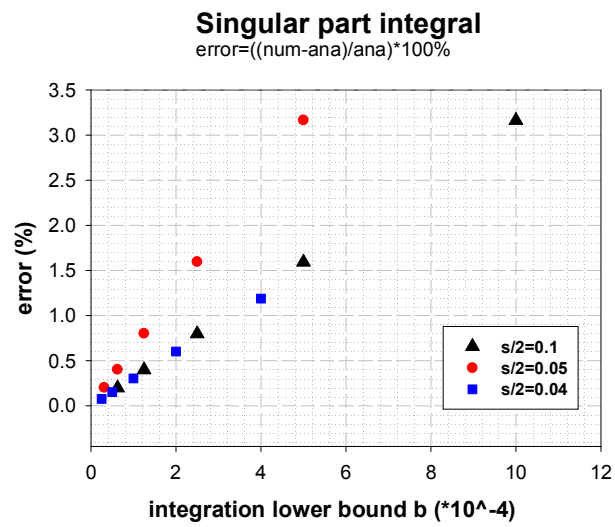
$$x_i = b + i \times \Delta x, \quad i = 0, 1, \dots, n_x \tag{A.2.5a}$$

$$y_j = b + j \times \Delta y, \quad j = 0, 1, \dots, n \tag{A.2.5b}$$

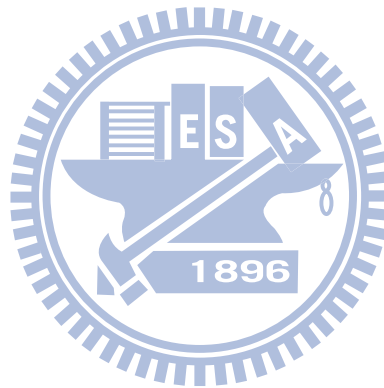
$$z_k = b + k \times \Delta z, \quad k = 0, 1, \dots, n \tag{A.2.5c}$$

$$\Delta x = \frac{s/2 - b}{n}, \quad \Delta y = \frac{s/2 - b}{n}, \quad \Delta z = \frac{s/2 - b}{n} \tag{A.2.5d}$$

在此取三個不同的條件：(1) $s = 0.1$ 、(2) $s = 0.05$ 、(3) $s = 0.04$ 來分析，我們將數值結果與式(A.2.3)的解析結果作比較，如圖(A.2.1)所示，可以發現當積分下限 $b \rightarrow 0$ 時，數值與解析結果的誤差百分比會越小，因此式(A.2.3)的結果是可以相信的。



圖(A.2.1)、利用數值方法驗證奇異點部份積分結果
 可以發現，當積分下限 $b \rightarrow 0$ 時，數值結果與解析式(A.3.3)的誤差越小。

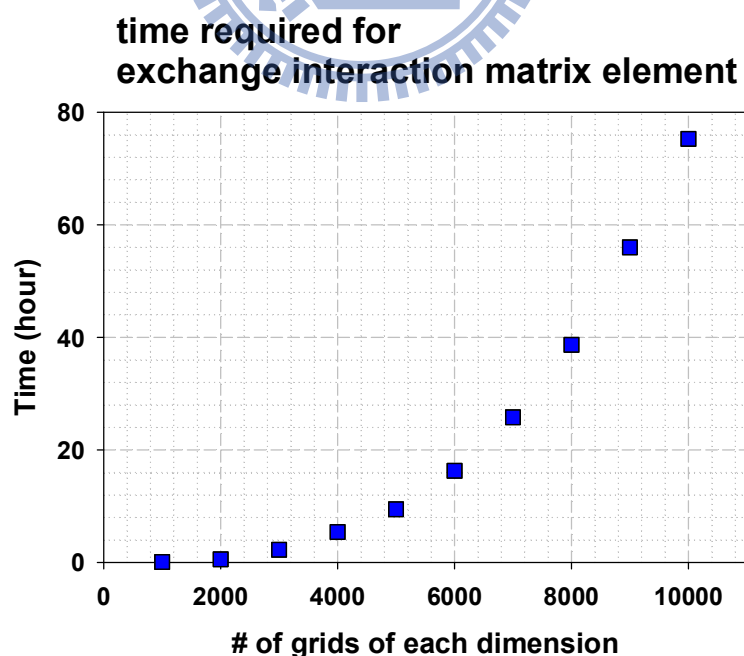


附錄三：長程交換作用數值模擬收斂性整理

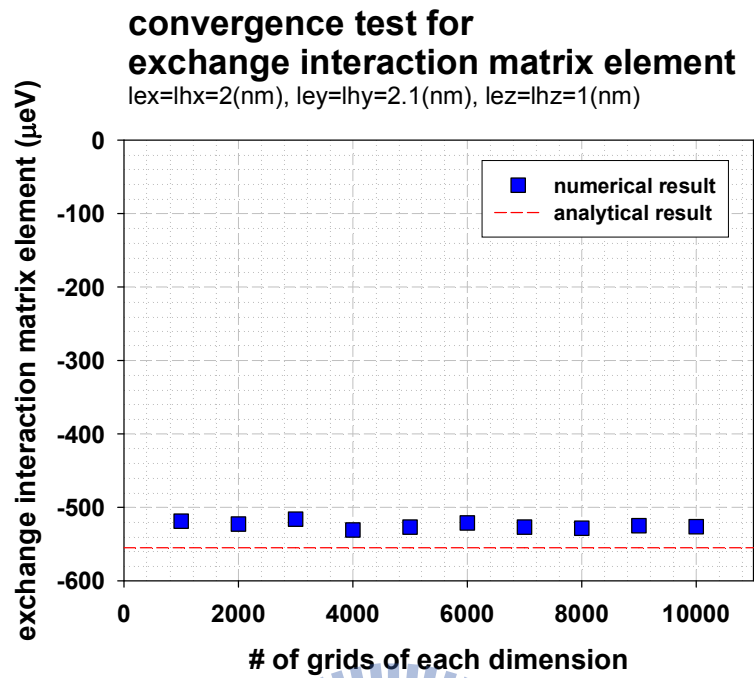
在本文的 4.5 節裡，進行了長程交換作用的數值模擬，在此將計算所需的參數整理如表(A.3.1)所示，計算三重積分式(4.4.6)所需的時間也整理於圖(A.3.1)以供參考，而數值程式收斂性則整理為圖(A.3.2)、(A.3.3)、(A.3.4)、(A.3.5)。

quantity			unit
bulk band gap	E_g	23300	meV
conduction-valence band interaction energy	E_p	670	meV
dielectric constant	ε	14.5	

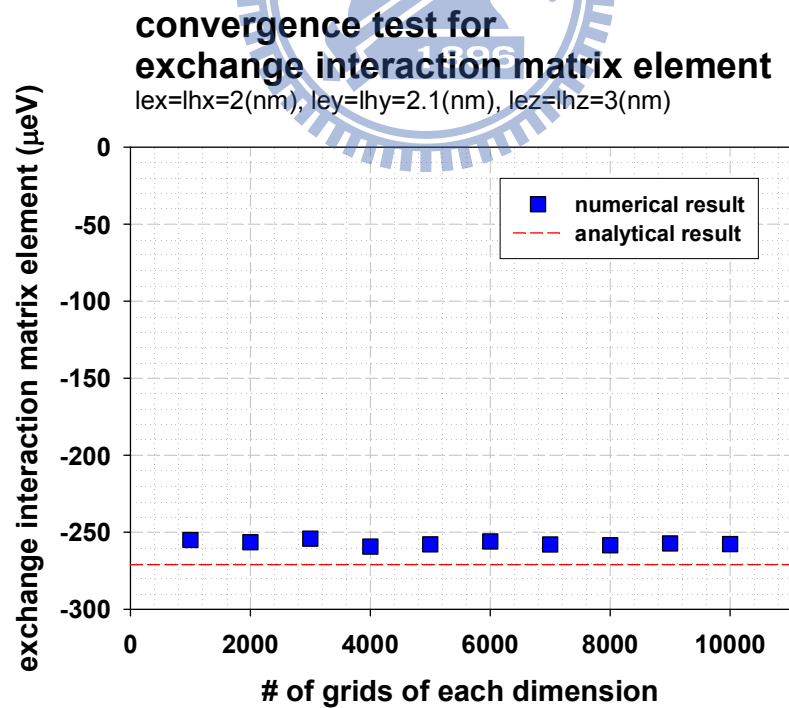
表(A.3.1)、計算長程交換作用所使用的參數
參考文獻[7]



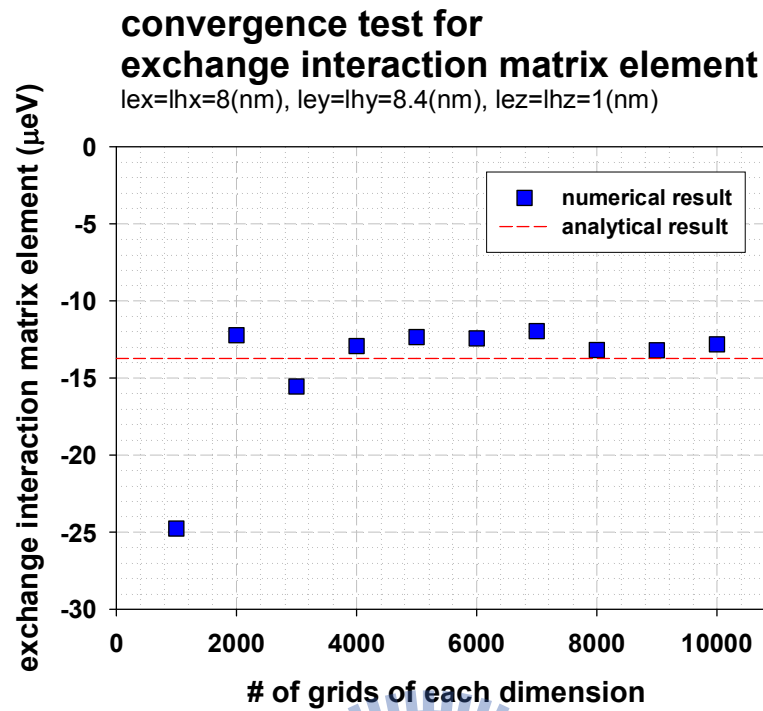
圖(A.3.1)、進行三重積分所需的時間整理
當每個維度都取 5000 點時，所需的時間約 12 小時，使用的機器為國家高速電腦中心的 FORMOSAII HPC Cluster，CPU 時脈為 2.2GHz



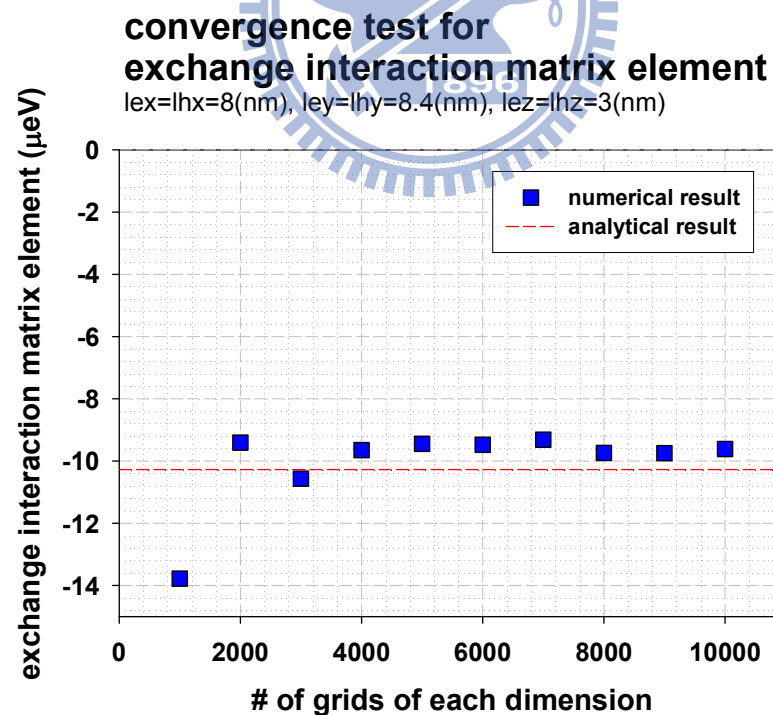
圖(A.3.2)、特徵長度 $l_x=2(\text{nm})$ 、 $l_y=2.1(\text{nm})$ 、 $l_z=1(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析



圖(A.3.3)、特徵長度 $l_x=2(\text{nm})$ 、 $l_y=2.1(\text{nm})$ 、 $l_z=3(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析



圖(A.3.4)、特徵長度 $l_x=8(\text{nm})$ 、 $l_y=8.4(\text{nm})$ 、 $l_z=1(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析



圖(A.3.5)、特徵長度 $l_x=8(\text{nm})$ 、 $l_y=8.4(\text{nm})$ 、 $l_z=3(\text{nm})$ 長程交換作用收斂分析

參考文獻：

- [1] 張為民，量子資訊科學：可能成為二十一世紀工業發展的核心，自然科學簡訊，第十五卷第四期，2003 年 11 月。
- [2] 蘇正耀，量子計算淺談，物理雙月刊，廿五卷四期，2003 年 8 月。
- [3] Hanz Y. Ramirez, Chia-Hsien Lin, Wen-Ting You, Shan-Yu Huang, Wen-Hao Chang, Sheng-Di Lin and Shun-Jen Cheng. *Size and Ga-diffusion effects on optical fine structure splitting of $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*. [unpublished]
- [4] H. Y. Ramirez, C.-H Lin, W.-T You, S.-Y Huang, C.-C Chao, Y. Hsu, W.-H Chang, S.-D Lin and S.-J Cheng. *Substantially reduced optical fine splitting of highly quantized $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*. [unpublished]
- [5] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, and A. Forchel. *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled $\text{In}(\text{Ga})\text{As}/(\text{Al})\text{GaAs}$ quantum dots*. Phys. Rev. B **65**, 195315 (2002).
- [6] E. Poem, J. Shemesh, I. Marderfeld, D. Galushko, N. Akopian, and D. Gershoni. *Polarization sensitive spectroscopy of charged quantum dots*. Phys. Rev. B **76**, 235304 (2007).
- [7] H. Y. Ramirez, C.H Lin, C.C Chao, Y. Hsu, W.T You, S.Y Huang, Y. T. Chen, W.H Chang, S.D Lin and S.J Cheng, *Optical fine structure of highly quantized $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*, accepted by PRB.
- [8] T. Takagahara. *Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots*. Phys. Rev. B **62**, 16840 (2000).
- [9] 蔡明福，砷化銦單量子點光激螢光之研究，碩士論文，交通大學電子工程學系電子研究所 (2007)。
- [10] J. Marquez, L. Geelhaar, and K. Jacobi, *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **78**, 2309 (2001)
- [11] J.H. Davies, *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors. An Introduction* (Cambridge University Press, Cambridge, 1998)
- [12] M. Sugawara, *Self-assembled $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ quantum dots*, Academic Press (1999).
- [13] W. Jaskólski, *et al*, *Strain effects on the electronic structure of strongly coupled self-assembled InAs/GaAs quantum dots: Tight-binding approach*, Phys. Rev. B **74**, 195339 (2006).
- [14] S. L. Chuang, *Physics of Optoelectronic Devices* (John Wiley & Sons, 1995)
- [15] 黃上瑜，利用 $k.p$ 法計算垂直耦合雙量子點的電子結構，碩士論文，交通大學電子物理研究所 (2008)。
- [16] M. Korkusinski, M. Zielinski, and P. Hawrylak. *Multiexciton complexes in InAs self-assembled quantum dots*. J. Appl. Phys. **105**, 122406 (2009).
- [17] Weidong Sheng, Shun-Jen Cheng, and Pawel Hawrylak, *Multiband theory of multi-exciton complexes in self-assembled quantum dots*. Phys. Rev. B **71**, 035316 (2005).
- [18] Pochung Chen, *Quantum Optical control of Spins and Excitons in Semiconductor Quantum dots*. (Ph. D. dissertation, University of California, San Diego, USA, 2002)

- [19] Cheng Shun-Jen (2007) [unpublished]
- [20] 張志彬，自組式量子點中電子－電洞交換作用理論研究，交通大學電子物理研究所 (2007)。
- [21] 陳彥廷，半導體奈米晶體與奈米柱系統之少電子理論，交通大學電子物理研究所 (2007)。

