



T.C.

SELÇUK ÜNİVERSİTESİ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

TİP-II YARIİLETKEN KUANTUM NOKTA NANOKRİSTALLERİNDE EKZİTONLAR

Fatih KOÇ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Fizik Anabilim Dalı

Ocak-2013

KONYA

Her Hakkı Saklıdır

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

TİP-II YARIİLETKEN KUANTUM NOKTA NANOKRİSTALLERİNDE EKZİTONLAR

Fatih KOÇ

Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü
Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Mehmet ŞAHİN

2012, 82 Sayfa

Jüri
Prof. Dr. Ülfet ATAV
Prof. Dr. Haluk ŞAFAK
Doç. Dr. Mehmet ŞAHİN

Bu tez çalışmasında, tip-II çekirdek-kabuk kuantum nokta heteroyapılardaki ekziton, pozitif ve negatif yüklü ekziton ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri, kuramsal olarak sistematik bir şekilde incelenmiştir. Göz önüne alınan yapıların elektronik özellikleri, etkin kütle yaklaşımında Poisson ve Schrödinger denklemlerinin öz-uyumlu bir şekilde çözülmesiyle belirlenmiştir. Hesaplamalarda, kuantum mekaniksel değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri, yerel yoğunluk yaklaşımı (Local Density Approximation (LDA)) altında göz önüne alınmıştır. Enerji özdeğerleri ve dalga fonksiyonlarının belirlenmesiyle ilgili sayısal hesaplamalar, sonlu farklar ve matris köşegenleştirme tekniği kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Elde edilen enerji değerleri ve dalga fonksiyonları kullanılarak ekziton, yüklü ekziton ve çift ekzitonların bağlanma enerjileri, soğurma dalga boyları, örtüşme integralleri, osilatör şiddetleri, ışınımsal hayat süreleri gibi bazı optik parametreleri belirlenmiştir. Ayrıca, kuantum noktasını çevreleyen ligandın ve kuantum noktasının kabuk bölgesi ile ligand arasına eklenen üçüncü bir yarıiletken malzemenin, elektronik ve optik özellikler üzerindeki etkisi de ayrıntılı bir biçimde araştırılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Ekziton, Hartree Yaklaşımı, Ekziton Hayat Süreleri, Çift Ekziton, Tip-II Kuantum Noktaları, Yerel Yoğunluk Yaklaşımı, Yüklü Ekzitonlar

ABSTRACT

M.S. THESIS

EXCITONS IN TYPE-II SEMICONDUCTOR QUANTUM DOT NANOCRYSTALS

Fatih KOÇ

THE GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCE OF SELÇUK UNIVERSITY
THE DEGREE OF MASTER OF SCIENCE
IN DEPARTMENT OF PHYSICS

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Mehmet ŞAHİN

2012, 82 Pages

Jury
Prof. Dr. Ülfet ATAV
Prof. Dr. Haluk ŞAFAK
Assoc. Prof. Dr. Mehmet ŞAHİN

In this thesis, the electronic and optical properties of excitons, positively and negatively charged excitons and biexcitons in type-II core-shell quantum dot heterostructures have been theoretically investigated. Poisson-Schrödinger equations have been solved self-consistently in the effective mass approximation to determine the electronic properties of the structures considered. The quantum mechanical exchange-correlation potentials have been taken into account in the Local Density Approximation (LDA). Numerical computations have been performed using finite differences and matrix diagonalization methods to obtain the energy eigenvalues and corresponding wavefunctions. Some optical properties of the exciton, charged exciton and biexciton such as, binding energies, absorption wavelengths, overlap integrals, oscillator strengths, radiative lifetimes etc. have been determined using the energy eigenvalues and wavefunctions obtained. Moreover, the effects of ligand that surrounds the quantum dot and the buffer materials between the ligand and quantum dot on the electronic and optical properties have been investigated in a detail.

Keywords: Exciton, Hartree Approximation, Exciton Lifetime, Biexciton, Type-II Quantum Dots, Local Density Approximation, Trions

ÖNSÖZ

Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsüne Yüksek Lisans tezi olarak sunulan bu çalışmada, tip-II bir kuantum nokta heteroyapıda bulunan ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri incelenmiştir.

İlerleyen teknoloji ile birlikte kuantum nokta heteroyapıların üretimi mümkün hale gelmiştir. Kuantum nokta heteroyapılarda bulunan ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların ilginç elektronik ve optik özellikleri, son yıllarda bu konu üzerinde yapılan çalışmaların artmasına sebep olmuştur. Tip-II kuantum noktaları özellikle ayarlanabilir optik ve elektronik özellikleri nedeniyle, lazerler, biyolojik işaretleme, ledler, fotovoltaik vb. alanlarda kullanılmaya başlanan yapılar haline gelmişlerdir.

Bu çalışma süresince, bilgi ve deneyimleriyle bana her konuda ve her istediğim an yardımcı olan danışman hocam Doç. Dr. Mehmet ŞAHİN'e en içten teşekkürlerimi sunarım.

Ayrıca bu çalışmamda, bana bilgi ve tecrübesiyle yardımcı olan Yrd. Doç. Dr. Koray KÖKSAL'a ve çeşitli safhalarda bilgi ve tecrübelerinden istifade ettiğim bölüm hocalarıma teşekkür ederim.

Yine bu çalışmamda bana her an maddi ve manevi destek olan aileme şükranlarımı sunarım.

Bu tez çalışması TÜBİTAK tarafından TBAG-109T729 nolu proje kapsamında desteklenmiştir.

Fatih KOÇ
KONYA-2013

İÇİNDEKİLER

ÖZET ..... **iv**

ABSTRACT ..... **v**

ÖNSÖZ ..... **vi**

SİMGELER VE KISALTMALAR ..... **ix**

1. GİRİŞ **1**

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI **5**

3. YARIİLETKEN KUANTUM HETEROYAPILAR **8**

3.1. Giriş 8
3.2. Katıların Enerji-Bant Yapısı 8
3.2.1. Katkılı yarıiletkenler 9
3.3. Boyutlarına Göre Kuantum Heteroyapılar 10
3.3.1 Kuantum kuyuları 10
3.3.2 Kuantum telleri 13
3.3.3 Kuantum noktaları 15
3.4. Tip-I ve Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapılar 17

4. EKZİTONLAR **19**

4.1. Giriş 19
4.2. Ekzitonların Temel Özellikleri 19
4.2.1. Yüklü ekzitonlar 20
4.2.2. Çift ekzitonlar 21
4.3. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapılarda Yüksüz, Yüklü ve Çift Ekziton Yapılar 22
4.3.1. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton 22
4.3.2. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Yüklü Ekzitonlar 23
4.3.3. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Çift Ekziton 24
4.4. Ekziton, Yüklü Ekzitonlar ve Çift Ekzitonun Elektronik ve Optik Özellikleri ... 25
4.4.1. Toplam enerji 26
4.4.2. Bağlanma enerjisi 26
4.4.3. Geçiş Enerjisi 27
4.4.4. Örtüşme İntegrali 27
4.4.5. Osilatör Şiddeti 28
4.4.6. Hayat süresi 29

5. HESAPLAMA YÖNTEMLERİ **31**

5.1. Giriş 31
5.2. Etkin Kütle Yaklaşımı 31
5.3. Hartree Yaklaşımı 32
5.4. Heteroyapılarda Etkin Kütle Uyumsuzluğu 33
5.5. Dielektrik Uyumsuzluğu 34

5.6. Yerel Yoğunluk Yaklaşımı 35
5.7. Matris Köşegenleştirme Yöntemi 37
5.8. Küresel Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton, Yüklü Ekziton ve Çift Ekziton 39

6. SONUÇLAR 46

6.1 Giriş 46
6.2. Hesaplama Parametreleri 46
6.3. CdTe/CdSe Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton ve İkili Ekzitonların Elektronik ve Optik Özellikleri 48
6.4. Kuantum Noktası ile Ligand Arasına Konulan Farklı Malzemenin Etkileri 53
6.5. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS ve CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de X, X^+, X^- ve XX'in Elektronik ve Optik Özellikleri 57

7. SONUÇLAR VE ÖNERİLER 64

7.1. Sonuçlar 64
7.2. Öneriler 66

KAYNAKLAR 67

ÖZGEÇMİŞ 72

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

a_0	Bohr yarıçapı
ε_0	Boşluğun dielektrik geçirgenliği
m_0	Elektronun boşluktaki kütlesi
q_h	Deşiğin yükü
q_e	Elektronun yükü
m^*	Etkin kütle
c	Işığın boşluktaki hızı
μ	İndirgenmiş kütle
$\hbar$	İndirgenmiş Planck sabiti
κ	Malzemenin dielektrik katsayısı

1. GİRİŞ

Fizik alanında, üzerinde yoğun olarak araştırmalar yapılan konuların başında, ışık-madde etkileşimi gelir. Üzerine ışık gönderilen bir madde, fiziksel ya da kimyasal özelliklerine göre bu ışığı soğurabilir, yansıtılabilir ya da geçirebilir. Üzerinde yaygın olarak çalışılan konulardan biri de, ışığın yarıiletken malzemeler ile olan etkileşmesidir. Bilindiği gibi yarıiletkenler, belirli şartlarda iletken ya da yalıtkan özellik sergileyen maddelerdir. Bir yarıiletken malzeme üzerine ışık gönderildiğinde, ışık yarıiletken malzeme tarafından soğrulup iletkenliğe katkıda bulunabilir. Işık, yarıiletken malzemenin değerlik bandında bulunan bir elektron tarafından soğrulduğunda, bu elektron, yapının değerlik bandından iletim bandına geçiş yapar ve değerlik bandında bir boşluk bırakır (Omar, 1999; Manasreh, 2005). Değerlik bandında oluşan bu boşluğa deşik adı verilmektedir. Deşikler, pozitif yüklü parçacıklar gibi davranırlar.

Uyarılan yarıiletken malzemede oluşan elektron ve deşiğin zıt yüklerinden dolayı, aralarında bir çekici Coulomb potansiyeli meydana gelebilir. Bunun neticesinde elektron ve deşik birbirlerine bağlı olarak, kütle merkezleri etrafında tek bir parçacık gibi hareket etmeye başlarlar. Oluşan bu yapıya ekziton ismi verilir. Ekzitonlar yüksüz parçacıklar oldukları için akım iletmezler (Kittel, 2004). Teknolojik uygulamaları ve ilginç fiziksel özellikleri nedeniyle ekzitonlar, bilim insanlarının her zaman ilgisini çeken yapılardır.

Bir yarıiletken malzemenin boyutları küçültülmeye başlandığında, yapının enerji seviyelerinde değişimler gözlemlenir. Makroskopik boyutlarda kübik bir yarıiletken malzemenin, başlangıçta enerji seviyeleri sürekli iken, kenar uzunlukları nanometre (10^{-9} m) mertebelerine indirildiğinde, kuantum etkileri görülmeye başlar ve enerji seviyeleri kesikli hale gelir. Yani elektronlar ve deşikler, sadece belli enerji seviyelerinde bulunabilirler. Göz önüne alınan yarıiletken malzemenin, boyutlarından sadece birisi küçültülerek elde edilen yapıya kuantum kuyusu, boyutlarından ikisi küçültülerek elde edilen yapıya kuantum teli, her üç boyutu da nanometre ölçeğinde küçültülerek elde edilen yapıya da kuantum noktaları adı verilmektedir (Jacak ve ark. 1998; Harrison, 1999; Sattler, 2011). Kuantum noktaları, elektron, deşik ve ekziton gibi temel taşıyıcıları üç boyutta hapsetmek için oldukça uygun yapılardır. Son zamanlarda yapılan çalışmalarda kuantum noktalarındaki ekzitonların, sıra dışı optik özelliklere ve kuantum mekaniksel etkilere sahip oldukları görülmüştür (Bimberg ve ark. 1999;

Achermann ve ark., 2003; Kim ve ark., 2003; Fonoberov ve Balandin, 2004; Meulenberg ve ark., 2009; Ivanov ve Achermann., 2010; Brovelli ve ark., 2011).

Elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme, ekzitonların optik özelliklerinin belirlenmesinde kullanılan önemli parametrelerden birisidir. Bir yapıdaki elektron ve deşik arasındaki örtüşmeye bağlı olarak, yapının optik özelliklerinde ayarlama yapabilmek mümkün olmaktadır. Kuantum noktalarının kenar uzunlukları ya da geometrileri değiştirilerek elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme belli oranda kontrol edilebilmektedir (Oron ve ark., 2007; Piryatinski ve ark., 2007).

Heteroyapılar, birden fazla ve farklı yasak enerji aralığına sahip yarıiletken malzemelerin kullanılarak oluşturulduğu yapılardır. Eğer bu yapılar, kuantum noktası formunda üretilmiş ise, bunlar çekirdek-kabuk yapılar olarak da bilinirler. Bu yapıların dikkat çeken özelliği, kendisini oluşturan yarıiletkenlerin boyutu ve cinsi değiştirilerek, yapının elektronik ve optik özelliklerine etkin bir şekilde müdahale edilebilmesidir (Kortan ve ark, 1990; Kim ve ark., 2003; Balet ve ark., 2004; Oron ve ark., 2007; Piryatinski ve ark., 2007; Tyrrell ve Smith., 2011). Heteroyapılar, yapı içindeki elektron ve deşiğin hapsolma durumlarına göre, tip-I, tip-II ve sanki tip-II olarak sınıflandırılırlar. Tip-I heteroyapılarda elektron ve deşik aynı malzeme içinde hapsolmaktadırlar. Tip-II heteroyapılarda ise, elektron ve deşik ayrı malzemelerde hapsolurlar. Örnek olarak CdTe/CdSe heteroyapıda elektron CdSe'de hapsolurken, deşik CdTe'de hapsolmaktadır. Sanki tip-II heteroyapılarda ise, taşıyıcılardan biri heteroyapının tamamında hapsolurken, diğeri sadece bir malzemede hapsolmaktadır (Klimov ve ark., 2007; Garcia-Santamaria ve ark., 2009).

Tip-I kuantum nokta heteroyapılarda, Auger etkisinin olumsuz sonuçları, Auger etkisinden kurtulma tekniklerinin araştırılmasına neden olmaktadır. Auger etkisi, örneğin çift ekziton yapısında olduğu gibi, yapıda birden fazla ekzitonun olması durumunda, bir ekzitonun yeniden birleşmesi sonucu açığa çıkan fotonun, yapıdaki diğer taşıyıcılar tarafından soğrulması ve daha üst seviyelere geçmesi olayıdır. Auger etkisinin temel sebebinin, elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki yüksek örtüşme oranı olduğu bilinmektedir. Bunu önlemek için öne çıkan yapılardan biri, kuantum çubuk yapılardır. Bu yapılarda taşıyıcıların dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme oranı, yapının bir boyutu serbest bırakılarak düşürülüp, Auger etkisinin azalması sağlanır. Fakat bu durumda, yapının kenarlarından biri kuantum ölçeklerinden çıkarıldığı için, kuantum verimliliği düşük olmaktadır (Piryatinski ve ark., 2007).

Ön plana çıkan bir diğer yapı ise, tip-II kuantum nokta heteroyapılardır. Bu yapı-

larda elektron ve deşik, ayrı malzemelerde hapsoldukları için, taşıyıcıların uzaysal ayrımından dolayı, elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme, yapının boyutları ile oynanarak istenilen seviyeye getirilebilmektedir. Bu da, Auger yeniden birleşmesinin baskılanması anlamına gelmektedir. Tip-II kuantum nokta heteroyapılarda, taşıyıcıların uzaysal ayrımından dolayı, çoklu ekziton durumunda itici Coulomb etkileşmesinin artması sebebiyle, elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme oranı küçük olmaktadır. Buna bağlı olarak ekzitonların yaşam süresi uzamaktadır. Yine aynı etki, elektron ve deşiğin enerjilerinde bir miktar artışa sebep olarak, ekzitonların yeniden birleşmesi esnasında, her bir ekziton için optik kazanç sağlamaktadır (Klimov ve ark., 2007).

Tip-II kuantum heteroyapıların, taşıyıcı-taşıyıcı etkileşimleri ayarlanabilir olduğundan, lazer, optik modülatör, fotodedektör ve fotovoltaik hücre uygulamalarında yeni avantajlar sunması beklenmektedir. Örnek olarak, lazer uygulamalarında zorluklara sebep olan çok parçacık Auger yeniden birleşmesi, elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşmenin azaltılabilmesi sayesinde, tip-II hetero-yapılarda kontrol altına alınabilmektedir (Klimov ve ark., 2007).

Tip-II kuantum nokta heteroyapılarda elektron ya da deşikten biri kabukta bulunduğundan ligand ile direkt etkileşmekte olduğu için, kabuktaki parçacık bir miktar ligand içersine nüfuz etmekte ve bu da, nüfuz etme miktarına bağlı olarak kuantum verimliliğinde azalmaya sebep olmaktadır. Bu nüfuz miktarını azaltmak için kuantum noktasının kabuk kısmının üçüncü bir yarıiletken malzemeyle kaplanması, uygulamada kullanılan yöntemlerden birisidir. Kim ve ark. (2003) tarafından yapılan bir çalışmada, CdTe/CdSe heteroyapı ZnTe ile kaplandığında kuantum verimliliğinde artışa sebep olduğu gözlemlenmiştir.

Bu tez çalışmasında öncelikle, tip-II bir CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıdaki ekziton, pozitif ve negatif yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri incelenmiştir. Ayrıca kuantum nokta yapının dışında bulunan ligandın, elektronik ve optik özelliklere etkisi de araştırılmıştır. Literatürdeki diğer çalışmalardan farklı olarak, yeniden birleşme osilatör şiddeti ve dolayısıyla ışınımsal hayat sürelerinin hesaplanmasında, pozitif ve negatif yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların, bağlı olma ya da bağlı olamama durumlarına göre farklı bir yaklaşım yapılmıştır. Çalışmamızda bundan farklı olarak, CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıyı üçüncü bir malzeme (ZnTe veya CdS) ile kaplayarak, elektronik ve optik özellikler üzerinde nasıl bir etkiye sahip olduğu araştırılmıştır. Son olarak, CdTe ve CdSe' nin

yerleri değiştirilerek, CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS ve CdSe/CdTe/ZnTe kuantum nokta heteroyapılardaki ekziton, pozitif ve negatif yüklü ekziton ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri incelenmiştir.

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

Yarı iletken kuantum noktalarındaki ekzitonlar ile ilgili ilk teorik çalışma, Efros ve Efros (1982) tarafından yapılmıştır. Bu araştırmacılar, çalışmalarında sonsuz potansiyel duvarlı ideal mikro küreler kullanmışlardır. Daha sonra, Takagahara (1987) iyileştirilmiş varyasyonel şemalarını kullanarak, ekzitonların taban durumlarını daha detaylı olarak incelemiştir. Bu çalışmanın ardından, Banyai ve ark. (1988), Efros ve Efros'un çalışmasını, çift ekziton sistemlerine genişletmişlerdir. Sonraki yıllarda ise Ekimov ve ark. (1993), CdSe kuantum noktalarındaki ekzitonların optik özellikleriyle ilgili, deneyin ve teorinin birlikte gerçekleştirildiği bir çalışma yayınlamışlardır. Aynı yıl Takagahara (1993), dielektrik sınırlandırma ve değiş-tokuş etkileşmelerinin, yarıiletken kuantum noktalarındaki ekzitonlar üzerindeki etkilerini araştırdığı bir çalışma yapmıştır. Sonraki yıllarda, Nair ve Takagahara (1997), büyük boyutlu yarıiletken kuantum noktalarındaki ekziton ve çift ekzitonun enerjilerinin ve osilatör şiddetlerinin hesaplandığı bir çalışma yayınlamışlardır. Franceschetti ve ark. (1999), CdSe ve InP yarıiletken kuantum noktalarındaki ekziton hesaplamaları için psödopotansiyel yaklaşımının yapıldığı bir çalışma yapmışlardır. Daha sonrasında Meulenberg ve ark. (2009), X ışınları soğurma ve ışıma spektroskopisi kullanarak, CdSe kuantum noktasının yasak enerji aralığını ölçmüşler ve CdSe kuantum kuyusundaki ekzitonun bağlanma enerjisini belirlemişlerdir. Yine aynı çalışmada elde edilen sonuçlar, optik spektroskopi ile elde edilen sonuçlar ile karşılaştırmışlar ve sonuçların birbirleri ile uyumlu olduğunu rapor etmişlerdir. Aynı yıl Rajadell ve ark. (2009), farklı boyutlardaki kuantum noktalarındaki ekziton, pozitif ve negatif yüklü ekziton ve çift ekzitonların yeniden birleşme enerjilerini ve olasılıklarını hesaplamışlardır. Bu çalışmada, yüklü ekzitonların yeniden birleşme olasılığının ekzitonunkinden 2 kat, çift ekzitonların yeniden birleşme olasılığının ise ekzitonunkinden 4 kat daha yüksek olduğu görülmüştür. Fakat bu oranların kuantum noktasının boyutunun büyütülmesiyle düştüğü gözlemlenmiştir.

21. yüzyıla gelindiğinde ekzitonlar, üzerinde hala yoğun bir şekilde çalışılan konu olmaya devam etmektedir. Yarıiletken hetero-nanoyapılar, boyutları değiştirilerek dalga fonksiyonlarına müdahele edilebilmesi ve buna bağlı olarak elektronik ve optik özelliklerinin kontrol edilebilmesi noktasında ilginç avantajlar sağlamaktadır. Üretim teknolojisindeki gelişmeler sonucunda, bu yapıların kimyasal olarak sentezi mümkün hale gelmiştir (Klimov, 2010). Heteroyapılarda ekziton ve çoklu ekzitonların elektronik

ve optik özellikleri, son zamanlarda değişik yöntemler kullanılarak hesaplanmaya başlanmıştır. Bu konuda Tsuchiya (2000), CuCl/NaCl ve GaAs/$Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ küresel kuantum noktalarındaki çift ekziton ve yüklü ekzitonların bağlanma enerjilerini, difüzyon Monte Carlo yöntemini kullanarak hesaplamıştır. Bu çalışmada, negtif yüklü ekzitonun bağlanma enerjisinin çift ekzitonun bağlanma enerjisinden daha yüksek olduğu ve küçük GaAs noktalarında pozitif yüklü ekziton ve çift ekzitonun bağlanma enerjisinin, elektron ve deşik arasındaki kuantum sınırlandırması farkından dolayı negatif olduğu görülmüştür. Sonraki yıl, etkin kütle yaklaşımı (EMA), Kuantum Monte Carlo (QMC) ve Konfügürasyon Etkilşemesi (CI) yöntemlerini kullanarak, Shumway ve ark. (2001) ekziton ve çift ekzitonun taban durumlarını ayrıntılı bir biçimde incelemişlerdir. Bundan sonra Mlinar ve Zunger (2009) tarafından, çoklu ekzitonların s ve p seviyelerinin incelendiği detaylı bir çalışma yayınlanmıştır. Yine aynı sene, Jha ve Guyot-Sionnest (2009), farklı çekirdek ve kabuk kalınlığına sahip CdSe/CdS çekirdek-kabuk kuantum noktalarındaki yüklü ekzitonların ışınımsal ve ışınımsal olmayan yeniden birleşmelerini ölçtükleri deneysel bir çalışma yapmışlardır.

Kimyasal sentezleme ve kristal büyütme teknolojisindeki gelişmeler, çok tabakalı kuantum noktaların büyütülmesini mümkün hale getirmiştir (Eychmüller ve ark. 1993; Mews ve ark., 1994; Dorfs ve Eychmüller, 2001; Klimov, 2010). Çok tabakalı çekirdek-kabuk-kabuk-kabuk yapılı kuantum noktasındaki tek ekzitonun, elektronik ve optik özellikleri, Chang ve Xia (1998) tarafından teorik olarak araştırılmıştır. Bir sonraki yıl, Uozumi ve ark. (1999) tarafından, küresel bir kuantum noktası içindeki elektron ve deşiğin, uyarılmış durum optik soğurma spektrumu hesaplanmış ve deneysel verilerle karşılaştırılmıştır. Son birkaç yıl içinde çok tabakalı kuantum noktaları üzerine yapılmış birçok çalışma rapor edilmiştir. Nizamoglu ve Demir (2008), çok tabakalı CdSe/ZnS kuantum noktasındaki bir ekzitonun 1s ve 2s durumunu ayrıntılı bir biçimde araştırmışlardır. Şahin ve ark. (2012), çok tabakalı küresel bir kuantum noktasının kabuk yapısını ve tek bir ekzitonun 1s, 1p, 1d ve 2s elektronik ve optik özelliklerini tabaka kalınlıklarına bağlı olarak sistematik bir şekilde incelemişlerdir.

Diğer taraftan, tip-II kuantum nokta heteroyapılar, son senelerde üzerinde daha çok çalışılan alanlardan birisi olmuştur. Piryatinski ve ark. (2007), tip-II bir kuantum nokta heteroyapı içerisindeki ekzitonun elektron ve deşik dalga fonksiyonlarının örtüşme oranlarını, kuantum ve dielektrik sınırlandırma etkilerini göz önüne alarak, detaylı bir şekilde incelemişlerdir. Yine tip-II bir yarıiletken kuantum nokta heteroyapıda, tek ekzitonun optik kazancı Klimov ve ark. (2007) tarafından detaylı

olarak incelenmiştir. Balet ve ark. (2004) başka bir çalışmalarında, ters çevrilmiş (inverted) çekirdek/kabuk yapılı kuantum nokta nano kristallerinde, çekirdek kısmı sabit tutulurken kabuk kısmının artırılması durumunda, ışımalı yeniden birleşme hayat sürelerinde, hem elektron hem de deşik dalga fonksiyonlarında tip-I'den tip-II'ye sonra tekrar tip-I'e sürekli bir geçiş gözlemlemişlerdir. Aynı çalışmada bu gözlemlerini teorik olarak da doğrulamışlardır. Tip-II kuantum nokta heteroyapılardaki ekzitonlarla ilgili göze çarpan çalışmalardan biri de, Oron ve ark.'nın (2007) yaptığı, kolloidal yarıiletken bir kuantum noktasındaki çoklu ekzitonların soğurma katsayılarının ve bağlanma enerjilerinin incelendiği deneysel çalışmadır. Sonraki senelerde, Ivanov ve Achermann (2010) tarafından yapılan bir çalışmada, CdS/ZnTe tip-II bir yarıiletken nanokristaldeki ekziton ve çift ekzitonların spektral ve dinamik özellikleri incelenmiştir. Bu çalışmada, ekzitonun ışıma enerjisinin ve yeniden birleşme süresinin, ZnTe kabuk kalınlığından çok az etkilendiği, fakat çift ekzitonun spektral ve dinamik özelliklerinin ZnTe kabuk kalınlığına sıkı bir şekilde bağlı olduğu gözlemlenmiştir. Aynı zamanda, çift ekziton durumunda, CdS çekirdek bölgesinde bulunan elektronların arasındaki itici Coulomb etkileşiminden dolayı, kabuk kalınlıklarının büyük olması durumunda, ışınım enerjisinde yüksek miktarda maviye kayma gözlemlenmiştir. Son olarak, etkin kütle yaklaşımı ile tekli ekzitonun, tek-bant modeli ve (2,6)-bant modeli ile enerji seviyelerinin ve soğurma katsayılarının detaylı olarak hesaplandığı bir çalışma, Tyrrell ve Smith (2011) tarafından yayınlanmıştır.

3. YARIİLETKEN KUANTUM HETEROYAPILAR

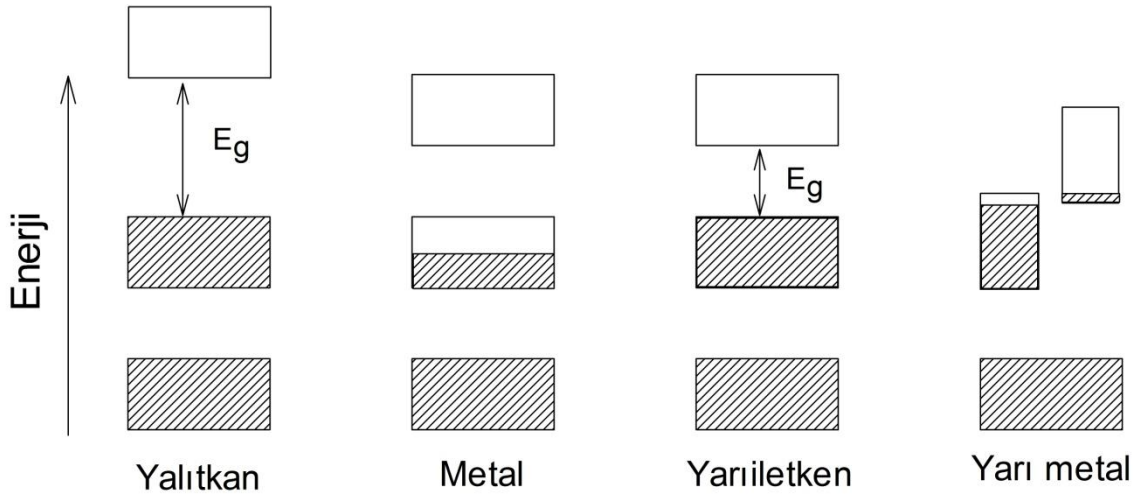
3.1. Giriş

İlerleyen teknoloji ile birlikte kuantum heteroyapılar daha kolay üretilebilir duruma gelmiştir. Kuantum heteroyapılar, farklı bant aralıklarına sahip iki ya da daha fazla yarıiletken malzemenin bir araya getirilmesi ile elde edilir. Bu yapılar, yüksek kuantum verimi ve yapıyı oluşturan yarıiletken malzemelerin cinsi ve uzunlukları değiştirilerek elektronik ve optik özellikleri değiştirilebildiği için son yıllarda üzerinde yoğun olarak çalışılmaktadır. Özellikle tip-II kuantum heteroyapılar, ayarlanabilir elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme nedeniyle son zamanlarda üzerinde yoğun olarak çalışılmaya başlanan konuların başında gelmektedir. Bu bölümde, enerji-bant yapılarına göre katılar, katkılı yarıiletkenler ve boyutlarına göre kuantum heteroyapılar hakkında bilgi verilecektir.

3.2. Katıların Enerji-Bant Yapısı

Enerji bant yapısı, bir katının elektronik, optik ve manyetik özelliklerini belirler. Bir atomda elektronlar, çekirdeğin etrafında belirli yörüngelerde hareket ederler. Birden fazla atom birbirine yaklaştırıldığında, dış elektronik yörüngeler üst üste gelmeye başlar ve atomlar birbiriyle bağlı hale gelir. Atom sayısı arttırıldıkça dış yörüngeler bir enerji bandı oluştururlar. Birden fazla atomun, mesela bir kristal oluşturmak için bir araya geldiği bir yapıda, elektronlar artık bu enerji bantlarında bulunurlar. Enerji bantları, elektronların bulunmadığı bölgelerle birbirinden ayrılır. Bu bölgelere enerji aralığı ya da bant aralığı denir.

Bir kristal yapıda, elektronlarla dolu olan en üst banda değerlik bandı, en düşük boş banda ise iletim bandı denir. Değerlik bandının doluluk oranı ve enerji aralığı, kristalin iletkenlik, yalıtkanlık ve yarıiletkenlik durumunu belirler. Şekil 3.1'de görüldüğü gibi, metallerde değerlik bandı tam olarak dolu değildir. Yarı metallerde ise değerlik ve iletim bandı üst üste binmiş durumdadır. Yalıtkanlarda ise değerlik bandı tam olarak dolu iken, iletim bandı tamamen boştur. Yarıiletkenler, belli şartlar altında yalıtkanlar ile aynı bant yapısına sahiptir. Yani bir yarıiletken, belli şartlarda yalıtkan veya iletken olabilir. Yarı iletkenlerin enerji aralığı, yalıtkanlara göre daha küçük



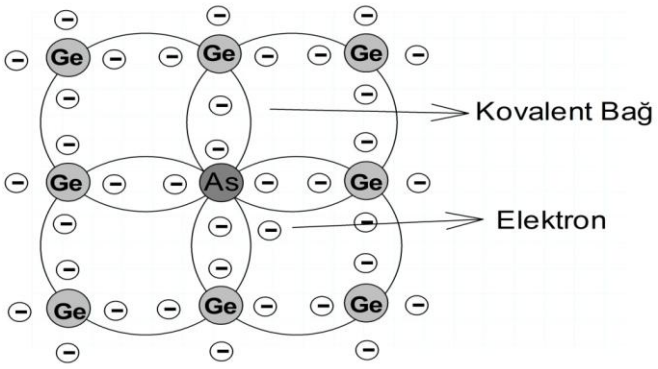
Şekil 3.1. Yalıtkan, metal, yarıiletken ve yarı metalin izinli enerji bantlarının elektron doluluğunun şematik gösterimi. Taralı kısımlar elektron ile dolu olan bölgeleri temsil etmektedir.

olduğu için, elektronlar, elektrik alan, termal enerji ve elektromanyetik ışıma ile iletim bandına geçirilip yarıiletken iletken haline getirilebilmektedir (Kittel, 2004).

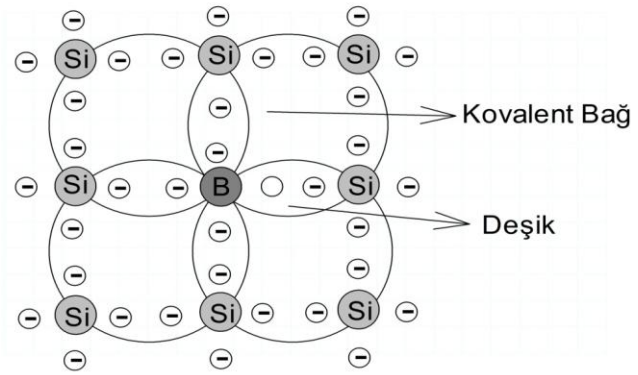
3.2.1. Katkılı yarıiletkenler

Saf yarıiletkenlere, periyodik cetvelin III. ve V. sütunlarından atomlar ekleyerek, iletkenlikleri arttırılabilmektedir. Uygulanan bu işleme katkılama işlemi ve yeni oluşan yapıya da katkılı yarıiletken denilmektedir. Katkılı yarıiletkenler n-tipi ve p-tipi olmak üzere iki çeşittirler.

n-tipi yarıiletkenler, saf bir yarıiletkene, periyodik cetvelin 5A grubunda bulunan bir atomun katkılanması ile elde edilirler. 5A grubundaki atomlar 5 değerlik elektronuna sahiptirler. Bu atomlar, 4A grubunda bulunan bir yarıiletkene katkılandığı zaman, 4 değerlik elektronu yarıiletkenin kabuğunu doldurur ve geriye kalan 1 elektron yapıya



Şekil 3.2. Ge yarıiletkene As katkılanarak elde edilen n-tipi yarıiletkenin şematik gösterimi.



Şekil 3.3. Si yarıiletkenine B atomu katkılanarak elde edilen p-tipi yarıiletkenin şematik gösterimi.

zayıf bir şekilde bağlıdır. Şekil 3.2'de örnek bir n-tipi yarıiletkenin şematik gösterimi verilmiştir. Bu yapıya bir elektrik alan uygulandığında bu zayıf bağlı elektronlar akıma katkıda bulunurlar (Omar, 1999; Kittel, 2004).

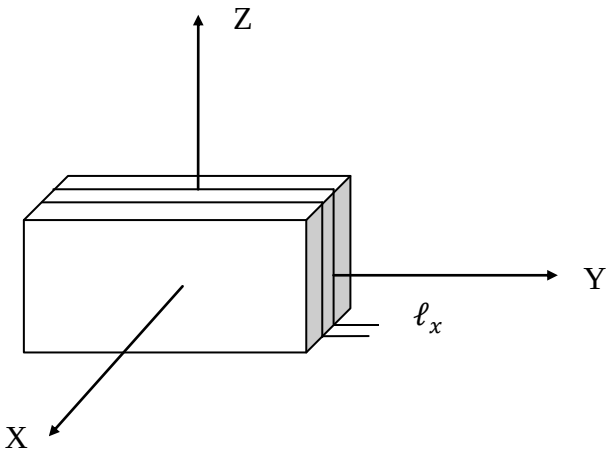
p-tipi yarıiletkenler, periyodik cetvelin 4A grubunda bulunan bir yarıiletkene, 3A grubunda bulunan bir atomun katkılanması ile elde edilir. 3A grubundaki bir atom 3 değerlik elektronuna sahiptir. Bu atomlar 4A grubundaki bir yarıiletkene katkılandığında, 3 değerlik elektronu yapının dış kabuğunu doldurur ve 1 elektronun eksikliğinden kaynaklanan bir boşluk oluşur. Bu boşluğa deşik adı verilir. Şekil 3.3'de örnek bir p-tipi yarıiletkenin şematik gösterimi verilmiştir. Bu yapıya bir elektrik alan uygulandığında, elektronlar yapıdaki boşluğu doldurmak suretiyle yer değiştirerek akıma katkıda bulunurlar (Omar, 1999; Kittel, 2004).

3.3. Boyutlarına Göre Kuantum Heteroyapılar

Heteroyapılar, farklı iki yarıiletken malzemenin birleştirilmesi ile elde edilen yapılara verilen isimdir. Kontrol edilebilen elektronik ve optik özellikleri nedeniyle son yıllarda üzerinde yoğun olarak çalışılmaya başlanan yapılardır. Gelişen üretim teknikleri ile bu yapılar nano ölçeklerde de üretilebilir hale gelmiştir.

3.3.1 Kuantum kuyuları

Parçacıkların hareketlerinin sadece bir boyutta sınırlandırıldığı, diğer iki boyutta serbestçe hareket edebildikleri yapılara kuantum kuyuları denir. Bu tür yapılar, bir yarıiletken malzemenin, daha büyük bant aralıklı malzeme arasında sandviç



Şekil 3.4. Bir kuantum kuyusunun şematik gösterimi

yapılmasıyla elde edilir. Tipik bir kuantum kuyusunun şematik gösterimi Şekil 3.4'de verilmiştir.

x-doğrultusunda sınırlandırılmış bir kuantum kuyusunda bulunan m^* etkin kütleli bir parçacık için Schrödinger denklemi,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{\partial^2}{\partial x^2}\psi(x) + V(x)\psi(x) = E\psi(x) \tag{3.1}$$

şeklindedir. Burada, $\psi(x)$ parçacığın dalga fonksiyonudur. Sonsuz yükseklikteki kuyularda, kuyu dışındaki potansiyel, $V(x) = \infty$, kuyu içindeki potansiyel ise, $V(x) = 0$, olarak kabul edilir. Bu durumda Denk. (3.1) yeniden yazılırsa,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{\partial^2}{\partial x^2}\psi(x) = E\psi(x) \tag{3.2}$$

halini alır. Denk. (3.2)'nin genel çözümü,

$$\psi(x) = Asink_x x + Bcosk_x x \tag{3.3}$$

şeklindedir. Burada,

$$k_x = \left(\frac{2m^*E}{\hbar^2}\right)^{1/2} \tag{3.4}$$

dir. Sonsuz derin potansiyel kuyusu için sınır şartları, $\psi(x=0)=0$ ve $\psi(x=l_x)=0$ şeklindedir. Bu sınır şartları uygulandığında $B=0$ olur. Denk. (3.3)'den,

$$sink_x l_x = 0 \quad ya\ da \quad k_x l_x = n_x \pi \qquad n_x = 1,2,3\ldots \tag{3.5}$$

elde edilir. Bu değerler Denk. (3.4)'te yerine yazılırsa, sonsuz derin potansiyel kuyusu için enerji ifadesi

$$E_{n_x} = \frac{n_x^2 \pi^2 \hbar^2}{2m^* l_x^2} \qquad n_x = 1,2,3\ldots \tag{3.6}$$

şeklinde olur. İletim bandında bulunan bir elektron için enerji-momentum bağıntısı,

$$E = E_c + E_{n_x} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m_e^*} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_e^*}; \quad n_x = 1,2,3\ldots \tag{3.7}$$

Benzer şekilde, değerlik bandında bulunan bir deşik için enerji-momentum bağıntısı,

$$E = E_v - \left[E_{n_x} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m_h^*} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_h^*}\right]; \quad n_x = 1,2,3\ldots \tag{3.8}$$

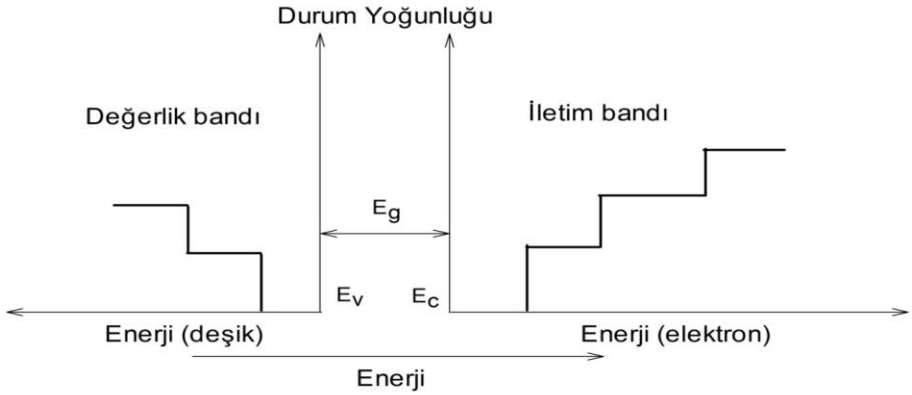
şeklindedir. Burada E_c iletim bant kenarı enerjisi, E_v ise değerlik bant kenarı enerjisidir.

Kuantum kuyularındaki elektron ve deşik için durum yoğunluğu sırasıyla $\rho_c(E)$ ve $\rho_v(E)$

$$\rho_c(E) = \begin{cases} \dfrac{m_e^*}{l_x \pi \hbar^2} \displaystyle\sum_{n_x} \theta(E - E_{n_x}); & E > E_c + E_{n_x} \\ 0; & E < E_c + E_{n_x} \end{cases} \tag{3.9}$$

$$\rho_v(E) = \begin{cases} \dfrac{m_h^*}{l_x \pi \hbar^2} \displaystyle\sum_{n_x} \theta(E - E_{n_x}); & E < E_v - E_{n_x} \\ 0; & E > E_v - E_{n_x} \end{cases} \tag{3.10}$$

ifadesiyle verilip, enerji ile değişimi Şekil 3.5'te görüldüğü gibidir. Burada θ adım fonksiyonudur (Davies, 1998; Manasreh, 2005; Sattler, 2011).



Şekil 3.5. Bir kuantum kuyusunun durum yoğunluğu.

3.3.2 Kuantum telleri

Kuantum telleri adından da anlaşılacağı üzere, 2 doğrultuda, kenar uzunluğu de Broglie dalga boyuna yaklaşık olarak eşit ya da daha küçük olan bir yarıiletken malzemenin, daha büyük band aralığına sahip bir yerıiletken malzeme ile kaplanması ile elde edilen tel benzeri yapılardır. Kuantum telleri, parçacıklar için 2 boyutta sınırlandırma etkisine sahiptir. Şekil 3.6'da bir kuantum telinin şematik gösterimi verilmiştir.

x-doğrultusunda ve y-doğrultusunda sınırlandırılmış sonsuz derinlikte bir kuantum teli için Schrödinger denklemi,

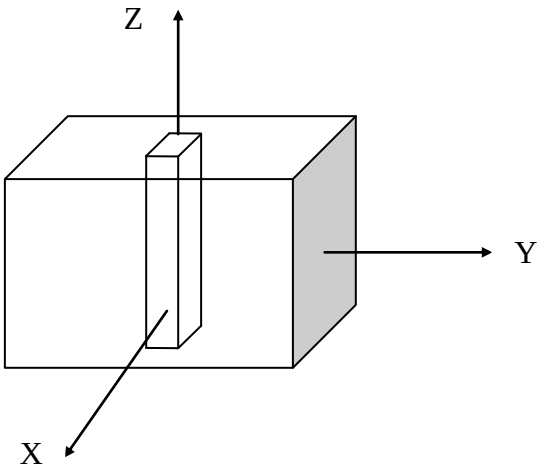
$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial y^2}\right]\psi(x,y) = E\psi(x,y) \tag{3.11}$$

şeklindedir. Burada $V(x,y) = 0$ olarak alınmıştır. x ve y doğrultusunda sınır koşulları uygulandığında,

$$k_x l_x = n_x\pi \qquad ve \qquad k_y l_y = n_y\pi \qquad n_x, n_y = 1,2,3\ldots \tag{3.12}$$

olarak bulunur. Bu yapı için kesikli enerji değerleri,

$$E_{n_x} = \frac{n_x^2\pi^2\hbar^2}{2m^* l_x^2} \qquad En_y = \frac{n_y^2\pi^2\hbar^2}{2m^* l_y^2} \qquad n_x, n_y = 1,2,3\ldots \tag{3.13}$$



Şekil 3.6. Kuantum telinin şematik gösterimi.

olarak elde edilir. Bir kuantum telinde elektron için toplam enerji ifadesi,

$$E = E_c + E_{n_x} + E_{n_y} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_e^*} \tag{3.14}$$

deşik için,

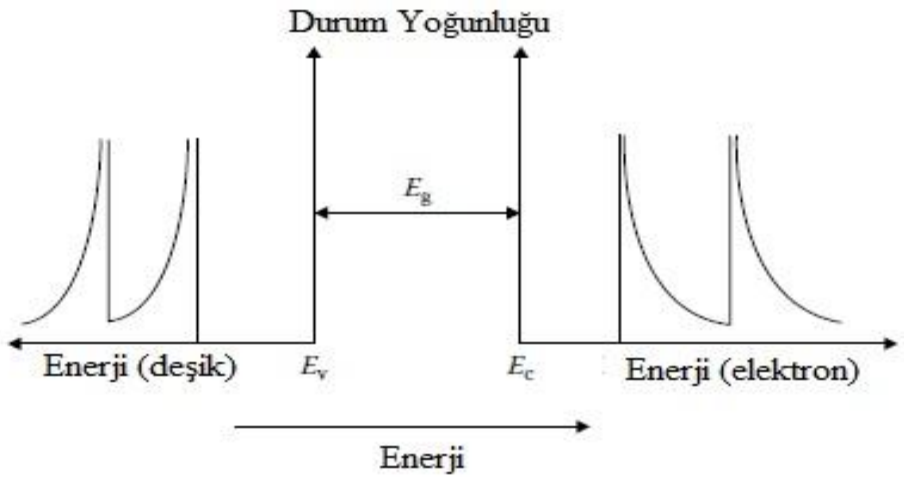
$$E = E_v - \left[E_{n_x} + E_{n_y} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_h^*}\right] \tag{3.15}$$

şeklinde verilir. Kuantum tellerinin durum yoğunluğu

$$\rho_c(E) = \begin{cases} \dfrac{1}{\pi l_x l_y}\sqrt{\dfrac{2m_e^*}{\hbar^2}} \displaystyle\sum_{n_x,n_y} \frac{1}{\sqrt{E - E_c - E_{n_x,n_y}}}; & E > E_c + E_{n_x} + E_{n_y} \\ 0; & E < E_c + E_{n_x} + E_{n_y} \end{cases} \tag{3.16}$$

$$\rho_v(E) = \begin{cases} \dfrac{1}{\pi l_x l_y}\sqrt{\dfrac{2m_h^*}{\hbar^2}} \displaystyle\sum_{n_x,n_y} \frac{1}{\sqrt{E_v - E - E_{n_x,n_y}}}; & E < E_c - E_{n_x} - E_{n_y} \\ 0; & E > E_c - E_{n_x} - E_{n_y} \end{cases} \tag{3.17}$$

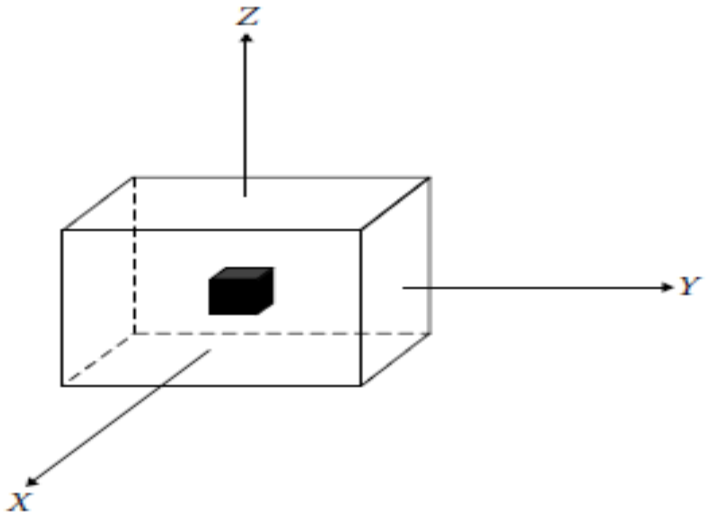
ifadesiyle tanımlı olup, grafiği Şekil 3.7'de görüldüğü gibidir (Davies, 1998; Manasreh, 2005; Sattler, 2011).



Şekil 3.7. Bir kuantum telinin durum yoğunluğu

3.3.3 Kuantum noktaları

Bir kuantum nokta yapı, 3 doğrultuda kenar uzunlukları de Broglie dalga boyuna yaklaşık olarak eşit ya da daha küçük olan yarıiletken malzemenin daha büyük bant aralığına sahip bir yarıiletken malzeme ile kaplanması elde edilir. Her 3 doğrultuda da kenar uzunlukları çok küçük olduğu için kuantum noktaları olarak adlandırılırlar. Bu yapılar, taşıyıcılar için üç boyutlu potansiyel kuyusu gibi davranır. Tipik bir kuantum nokta yapısının görünümü Şekil 3.8' de gösterildiği gibidir.



Şekil 3.8. Kuantum nokta yapının şematik gösterimi

Bir kuantum noktasında taşıyıcılar, üç doğrultuda da sınırlandırılmış durumdadırlar. Bu nedenle taşıyıcıların enerjileri, tüm yönlerde kesiklidir. Yani, taşıyıcılar ancak izinli enerji seviyelerinde bulunabilir. Bunun sonucunda, nano boyutlu yarıiletkenlerde bant aralığı enerjisi, hacimsel yarıiletkenlerin bant aralığı enerjisine göre daha yüksektir. Bir kuantum noktası için Schrödinger denklemi,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial y^2}+\frac{\partial^2}{\partial z^2}\right]\psi(x,y,z) = E\psi(x,y,z) \tag{3.18}$$

şeklindedir. İletim bandında bulunan bir elektronun enerji ifadesi,

$$E = E_c + E_{n_x} + E_{n_y} + E_{n_z} \tag{3.19}$$

ve değerlik bandında bulunan bir deşiğin enerji ifadesi,

$$E = E_v - \left[E_{n_x} + E_{n_y} + E_{n_z}\right] \tag{3.20}$$

şeklinde ifade edilir. Her bir doğrultudaki kesikli enerji değerleri,

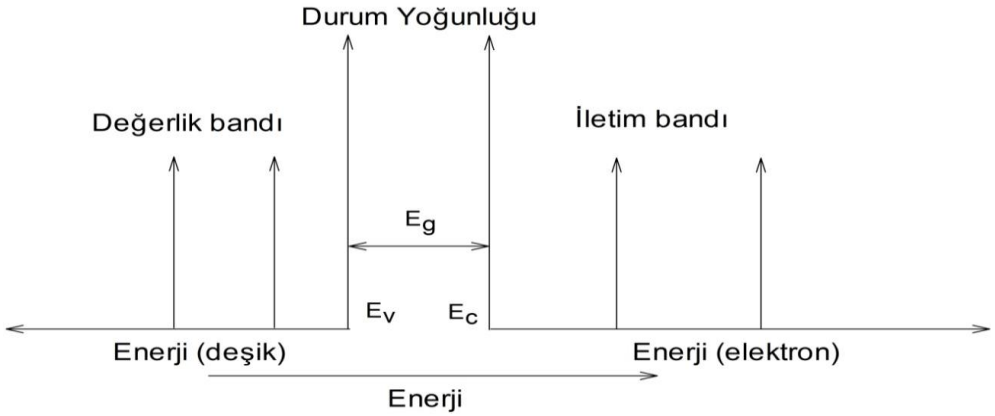
$$E_{n_x} = \frac{n_x^2\pi^2\hbar^2}{2m^* l_x^2} \qquad E_{n_y} = \frac{n_y^2\pi^2\hbar^2}{2m^* l_y^2} \qquad E_{n_z} = \frac{n_z^2\pi^2\hbar^2}{2m^* l_z^2} \tag{3.21}$$

n_x,n_y,n_z = 1,2,3… ve $m^* = m_e^*$ elektron için $m^* = m_h^*$ deşik için

Kuantum noktalarında elektron ve deşik durum yoğunlukları ise Dirac-Delta fonksiyonu ile

$$\rho_e(E) = \frac{2}{l_x l_y l_z}\sum_{n_x,n_y,n_z}\delta\left(E - E_c - E_{n_x,n_y,n_z}\right) \tag{3.22}$$

$$\rho_h(E) = \frac{2}{l_x l_y l_z}\sum_{n_x,n_y,n_z}\delta\left(E_v - E - E_{n_x,n_y,n_z}\right) \tag{3.23}$$



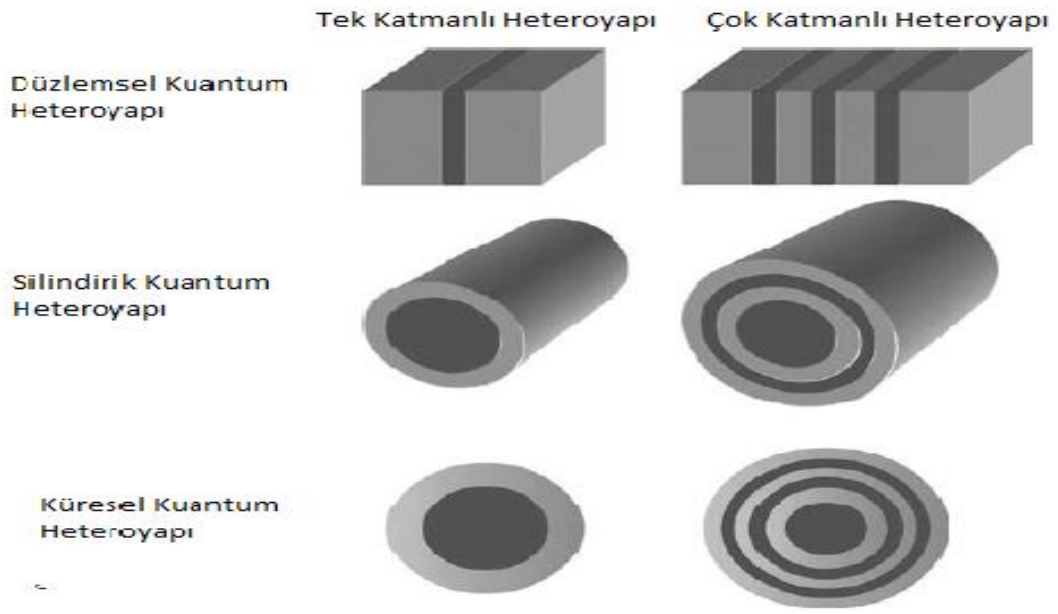
Şekil 3.9. Bir kuantum nokta yapıda durum yoğunluğu

şeklinde ifade edilip, grafiği Şekil 3.9'da görüldüğü gibidir (Davies, 1998; Manasreh, 2005; Sattler, 2011).

3.4. Tip-I ve Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapılar

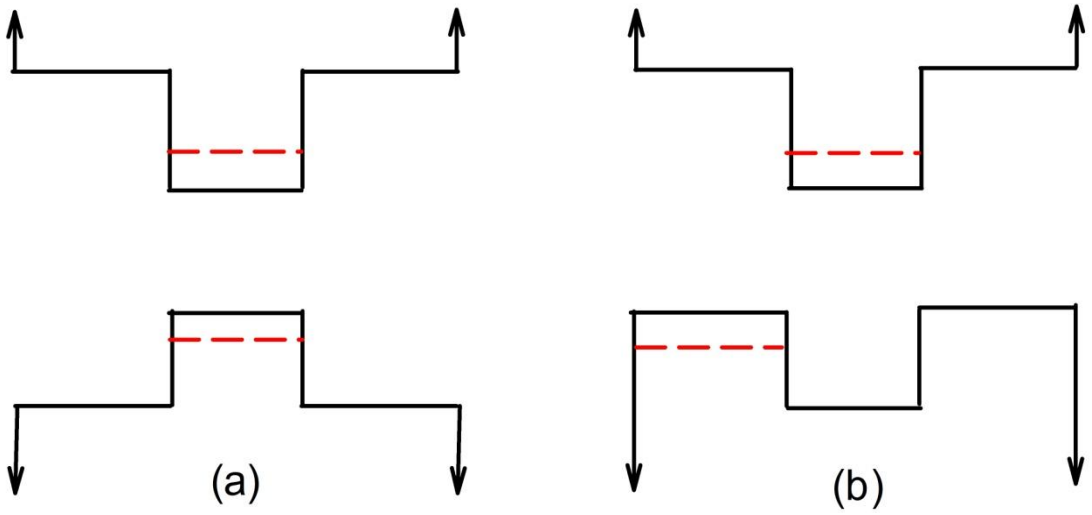
Kuantum nokta heteroyapılar (KNH), Şekil 3.10'dan da görüldüğü gibi farklı geometrilerde tek ve çok katmanlı şekillerde üretilebilmektedirler.

Tek katmanlı kuantum noktalar, çekirdek-kabuk kuantum noktalar (core-shell quantum dots) olarak da bilinirler. Çekirdek-kabuk kuantum noktalar, her biri farklı bant yapısına sahip iki farklı malzemeden oluştukları için, birleşme noktasında bant yapısının nasıl değiştiğini anlamak önemlidir. Malzemelerin aynı oldukları düşünüldüğünde, elektron soldaki malzemeden sağdaki malzemeye doğru hareket ederken, malzemelerin birleştikleri noktada herhangi bir etki hissetmez. Fakat malzemeler farklı ise, elektron bir potansiyel duvarı ile karşılaşır. Eğer soldaki malzemenin iletim bandının en alt noktası, sağdaki malzemenin iletim bandının en alt noktasından yukarıda ise elektron sağdaki malzemede enerji kazanır. Tersi durumda elektron sağdaki malzemede tünelleme yapar ya da potansiyel yeterince yüksekse geri yansır. Aynı durum deşikler için de geçerlidir.



Şekil 3.10. Farklı geometrik yapıdaki tek katmanlı (solda), çok katmanlı (sağda) kuantum heteroyapılar.

Bant yapısına bağlı olarak elektron ve deşik, aynı veya farklı malzemelerde lokalize olabilirler. Eğer elektron ve deşik, Şekil 3.11 (a)'da görüldüğü gibi aynı malzemede lokalize olmuşlarsa yapı tip-I kuantum noktası, Şekil 3.11 (b)'de görüldüğü gibi farklı malzemelerde lokalize olmuşlarsa yapı tip-II kuantum noktası olarak adlandırılır (Sattler, 2011).



Şekil 3.11. Tip-I (a) ve Tip-II (b) yarıiletkenlerde sınırlandırma profilleri.

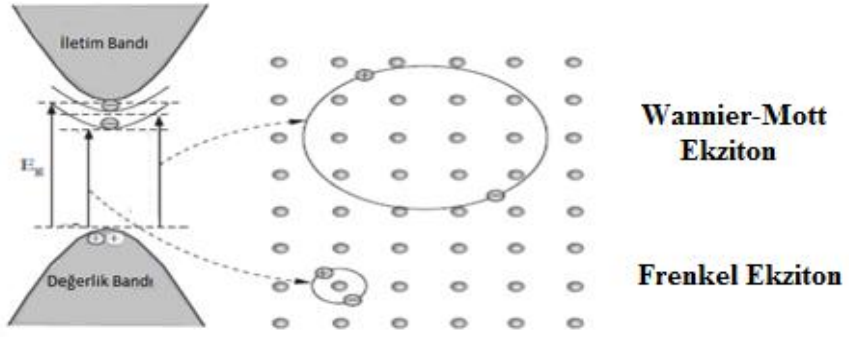
4. EKZİTONLAR

4.1. Giriş

Bir yarıiletken malzeme, elektromanyetik ışıma, ısı ya da elektrik alan gibi bir etkenle uyarıldığında, değerlik bandında bulunan elektron iletim bandına geçiş yapar ve arkasında bir boşluk bırakır. Değerlik bandında oluşan bu boşluğa deşik adı verilir ve pozitif yüklü bir parçacık gibi davranır. Eğer elektron iletim bandına geçtikten sonra, geride bıraktığı deşik ile arasında, çekici Coulomb etkileşmesi sonucu bir bağ oluşursa, elektron ve deşik kütle merkezi etrafında, sanki tek parçacıkmış gibi birlikte hareket etmeye başlar. Oluşan bu yapıya ekziton denir. Ekziton yüksüz parçacık olma özelliği taşır. Fakat kuantum yapılara fazladan elektron ya da deşik eklenerek yüklü ekziton yapılar elde edilebilir.

4.2. Ekzitonların Temel Özellikleri

Bir yarıiletken malzemede bulunan elektron, bir foton ile etkileştiğinde, elektron yarıiletkenin değerlik bandından iletim bandına geçiş yapar ve değerlik bandında pozitif yüklü bir deşik bırakır. Bu olayda oluşan elektron ve deşik birbirlerine Coulomb etkileşimi sonucu bağlanırlarsa, oluşan yapıya ekziton (X) adı verilir. Ekzitonlar yüksüz parçacıklardır. Ekziton kristal yapı içinde gezebiliyorsa, bu ekziton, serbest ekziton ya da Wannier-Mott ekzitonu olarak adlandırılır. Eğer ekziton, kristal içinde bir safsızlık ya da atom tarafından bağlanmışsa, bağlı ekziton ya da Frenkel ekzitonu olarak adlandırılır. Serbest ekzitonun bağlanma enerjisi genellikle bağlı ekzitonun bağlanma enerjisinden düşüktür (Manasreh, 2005).



Şekil 4.1. Hacimsel bir yapıda ekziton enerjileri (a) ve ekziton çeşitleri (b).

Serbest bir ekziton göz önüne alındığında elektron ve deşik birbirlerini Coulomb potansiyeli ile çekerler.

$$V(r) = \frac{-e^2}{\kappa|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \tag{4.1}$$

Burada r, elektron ve deşik arasındaki mesafe, κ ise malzemenin dielektrik sabitidir. Ekziton için Hamiltonyen ifadesi,

$$H = \frac{p_e^2}{2m_e^*} + \frac{p_h^2}{2m_h^*} - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \tag{4.2}$$

ile verilir (Kayanuma, 1988). Burada p_e ve p_h sırasıyla elektron ve deşiğin momentum ifadesi, m_e^* ve m_h^* sırasıyla elektron ve deşiğin etkin kütleleri, r_e ve r_h ise sırasıyla elektron ve deşiğin kuantum noktasının merkezden yüzeyine doğru olan konumlarıdır.

Brus (1984) ve Kayanuma (1988)'nın ekziton için türettikleri enerji ifadesi,

$$E_X = E_g + \frac{\hbar^2\pi^2}{2R^2}\frac{1}{\mu} - \frac{1.786e^2}{\varepsilon R} - 0.248\,\frac{\mu e^4}{2\hbar^2\varepsilon^2} \tag{4.3}$$

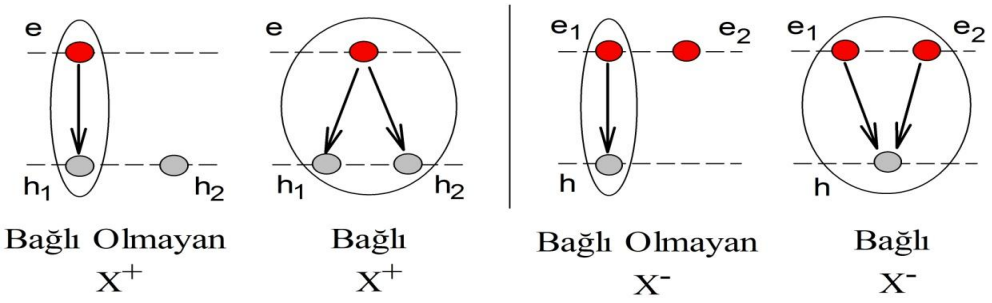
şeklindedir. Burada E_g bant aralığı enerjisi, R sınırlandırılmış elektron ve deşik arasındaki mesafe ve μ indirgenmiş etkin kütle ifadesi olup,

$$\mu = \frac{1}{\frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}} \tag{4.4}$$

şeklinde verilir (Sattler, 2011).

4.2.1. Yüklü ekzitonlar

Yüklü ekzitonlar, ekzitondan farklı olarak, adından da anlaşılacağı üzere negatif ya da pozitif yüklü olabilmektedirler. Bu yapılar özellikle güneş pilleri gibi uygulamalarda önemlidir. 2 elektron ve 1 deşikten oluşan yapıya negatif yüklü ekziton,

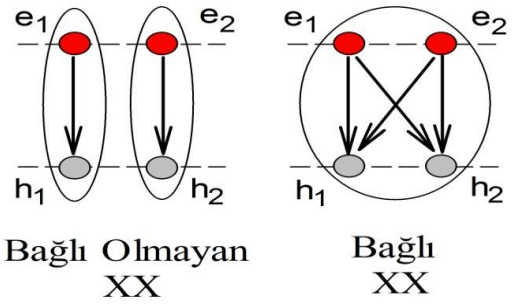


Şekil 4.2. Pozitif yüklü (solda) ve negatif yüklü (sağda) ekzitonun şematik gösterimi.

1 elektron ve 2 deşikten oluşan yapıya ise pozitif yüklü ekziton denilmektedir. Şekil 4.2'de pozitif yüklü ekziton (X^+) ve negatif yüklü ekzitonun (X^-) şematik gösterimi verilmiştir. Bu yapılar bağlanma enerjilerinin işaretine bakılarak bağlı X^+ve X^- ya da bağlı olmayan X^+ ve X^- olarak adlandırılırlar. Mesela, bağlı X^+ yapısının bağlanma enerjisi pozitiftir. Yani, 2 deşik ile 1 elektron arasındaki çekici Coulomb etkileşimi, deşiklerin kendi aralarındaki itici Coulomb etkileşiminden daha fazla olup, yapıdaki tüm parçacıklar birlikte hareket ederler. Bağlı olmayan X^+ yapısında ise, yapının bağlanma enerjisi negatiftir. Yani deşikler arasındaki itici Coulomb etkileşiminin büyüklüğü, 2 deşik ile 1 elektron arasındaki çekici Coulomb etkileşiminin büyüklüğünden daha fazladır. Bu durumda, itici Coulomb etkileşimi sonucunda, yapıdaki bir elektron ve bir deşik birlikte hareket ederken geriye kalan deşik bu elektron-deşik çiftinden ayrı hareket eder. Aynı durum negatif yüklü ekziton için de geçerlidir. (Combescot ve Betbeder-Matibet, 2009) X^+ ve X^-, hacimsel yapılarda gözlemlenmesi zor olan yapılardır.

4.2.2. Çift ekzitonlar

Çift ekziton (XX), iki elektron ve iki deşikten meydana gelen yapılara verilen isimdir. Şekil 4.3'de XX'in şematik gösterimi verilmiştir. Yüklü ekzitonlar gibi çift ekziton yapısı da bağlanma enerjisinin işaretine göre bağlı XX ya da bağlı olmayan XX olarak adlandırılırlar. Bağlı XX yapısında, bağlanma enerjisi pozitiftir. Yani, elektronlar ve deşikler arasındaki çekici Coulomb etkileşiminin büyüklüğü, elektron-elektron ve deşik-deşik arasındaki itici Coulomb etkileşiminin büyüklüğünden fazla olup, yapıdaki tüm parçacıklar birlikte hareket ederler. Bağlı olmayan XX yapısında ise aynı parçacıklar arasındaki itici Coulomb etkileşiminin büyüklüğü daha fazladır ve yapıdaki



Şekil 4.3. İkili ekzitonun şematik gösterimi.

her bir ekziton ayrı ayrı hareket ederler. Bu yapılar ekzitona göre daha kısa hayat süresine sahip yapılardır.

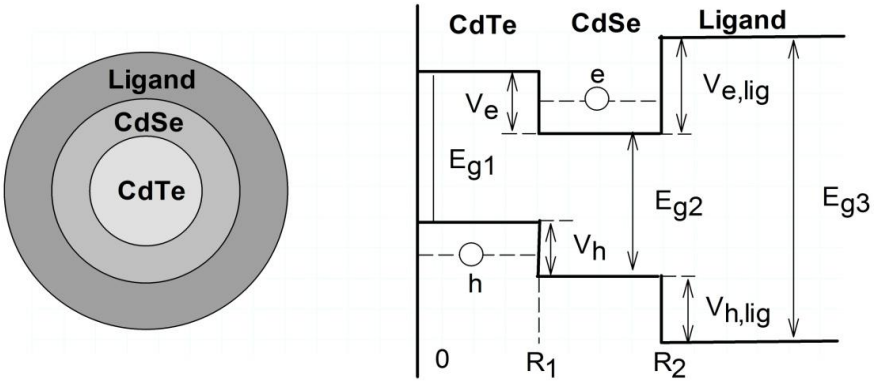
4.3. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapılarda Yüksüz, Yüklü ve Çift Ekziton Yapılar

Ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonlar, tip-II KNH'ya hapsedildiğinde ilginç elektronik ve optik özellikler sergilemeye başlarlar. Mesela küresel bir KNH'de, yapıyı oluşturan malzemelerin kalınlıkları ya da KNH'yi oluşturan malzemeler değiştirilerek elektronik ve optik özellikleri kontrol edilebilmektedir. Bu bölümde tip-II bir KNH'daki ekziton, yüklü ekziton ve çift ekzitonlar hakkında genel anlamda bilgi verilecektir.

4.3.1. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton

Tip-II kuantum nokta yapıda elektron ve deşik ayrı malzemelerde bulunurlar. Örneğin, CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda, elektron CdSe' de bulunurken, deşik CdTe'de bulunmaktadır. Bu özelliği ile yapı, Tip-I kuantum nokta yapılardan ayrılmaktadır.

Tip-II kuantum nokta yapıda, Tip-I kuantum nokta yapıdan farklı olarak hem çekirdek hem de kabuk kalınlığı, ekzitonun toplam enerjisi ve bağlanma enerjisi üzerinde etkilidir. Bunun nedeni elektron ve deşiğin ayrı malzemelerde bulunmasıdır. Şekil. 4.4'de görüldüğü gibi elektron kabukta bulunurken, deşik çekirdekte bulunmaktadır. Bunun neticesinde, hem çekirdek, hem de kabuk kalınlığı değiştiğinde, ekzitonun enerji seviyesinde ve bağlanma enerjisinde belirgin bir değişme görülecektir. Fakat elektronun enerjisi, deşiğin enerjisine göre fazla olduğundan, elektronun



Şekil 4.4. Tip-II bir kuantum nokta heteroyapıda ekziton

bulunduğu malzemenin kalınlığı ile oynamak ekzitonun toplam enerjisinin daha fazla değişimine sebep olacaktır.

Bir tip-II kuantum nokta yapıdaki ekzitonun toplam enerji ifadesi,

$$E_X = E_{g1} - V_e + E_e + E_h + E_B \tag{4.5}$$

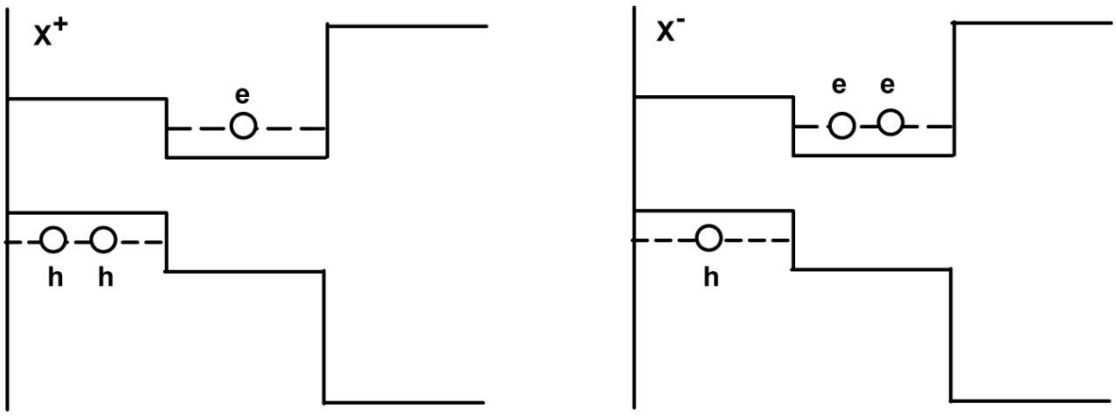
şeklindedir. Burada,

$$E_B = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 \kappa} \iint \frac{|\psi_e(r_e)|^2 |\psi_h(r_h)|^2}{|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} d\vec{r}_e \, d\vec{r}_h \tag{4.6}$$

şeklinde verilir (Harrison, 1999; Sattler, 2011). Burada $\psi_e(r_e)$ ve $\psi_h(r_h)$ sırasıyla elektron ve deşiğin konuma bağlı dalga fonksiyonları, r_e ve r_h sırasıyla elektron ve deşiğin konumlarıdır.

4.3.2. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Yüklü Ekzitonlar

Bir KNH'de bir ekziton mevcut iken, yapının fazladan bir elektron veya deşik içermesi, yapının elektronik ve optik özelliklerinde kritik değişimler yapabilmektedir. Bu etkiler, biyolojiden elektro-optik cihazlara kadar bir çok uygulamada belirleyici rol oynamaktadır (Jha ve Guyot-Sionnest, 2009). Şekil. 4.5'de tip-II bir KNH'deki X^+ ve X^- yapılarının şematik gösterimleri verilmiştir.



Şekil 4.5. Tip-II kuantum nokta heteroyapıda pozitif yüklü ekziton (solda) ve negatif yüklü (sağda) ekzitonun şematik gösterimi.

Bir KNH'deki X^+ ve X^- için genel hamiltonyen ifadeleri,

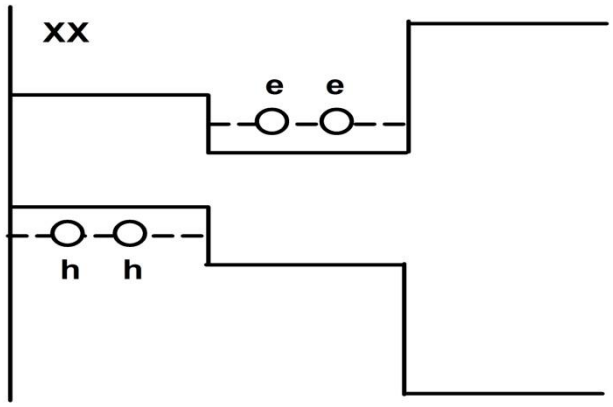
$$H_{X^+} = H_e + \sum_{j=1,2} H_h(j) + \sum_{j=1,2} \frac{-e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e - \vec{r}_h(j)|} + \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_h(1) - \vec{r}_h(2)|} \quad (4.7)$$

$$H_{X^-} = \sum_{j=1,2} H_e(j) + H_h + \sum_{j=1,2} \frac{-e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e(j) - \vec{r}_h|} + \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e(1) - \vec{r}_e(2)|} \quad (4.8)$$

şeklinde verilmektedir (Rajadell ve ark., 2009). Bu denklemlerde, ilk iki terimler sırasıyla, elektron ve deşiğin hamiltonyen ifadeleri, üçüncü terimler elektron ve deşik arasındaki çekici Coulomb potansiyeli, son terimler ise aynı tür parçacıklar arasındaki itici Coulomb potansiyelini temsil etmektedir.

4.3.3. Tip-II Kuantum Nokta Heteroyapıda Çift Ekziton

Çift ekziton yapılar, daha çok lazer uygulamaları açısından önemlidir. Çift ekzitonun kısa hayat süresi ve Auger yeniden birleşme etkisinin baskın olması, fotolüminesans kuantum verimliliği açısından dezavantajlı olmaktadır. Bu yüzden tip-II KNH'deki *XX* durumları son yıllarda dikkat çekmeye başlamıştır. Şekil 4.6'da tip-II KNH'deki çift ekziton yapısı görülmektedir. Tip-II KNH'de *XX* durumunda, ekziton-ekziton etkileşimi, belli malzeme kalınlıklarında elektron ve deşiğin uzaysal ayrışımından dolayı iticidir. Bunun sonucunda hem hayat sürelerinde uzama sağlanmakta, hem de yine parçacıkların uzaysal ayrışımının neden olduğu düşük örtüşme



Şekil 4.6. Tip-II kuantum nokta heteroyapıda çift ekzitonun şematik gösterimi.

integralleri sayesinde, Auger yeniden birleşme etkisi baskılanabilmektedir. (Klimov ve ark. 2007).

Çift ekziton için genel hamiltonyen ifadesi,

$$H_{XX} = \sum_{i=1,2} H_e(i) + \sum_{j=1,2} H_h(j) + \sum_{i,j} \frac{-e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e(i) - \vec{r}_h(j)|} + \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_e(1) - \vec{r}_e(2)|} + \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa|\vec{r}_h(1) - \vec{r}_h(2)|} \quad (4.9)$$

şeklinde iade edilir (Rajadell ve ark., 2009). Burada, ilk iki terim sırasıyla, elektron ve deşiğin enerji hamiltonyenleri, üçüncü terim elektronlar ve deşikler arasındaki çekici Coulomb potansiyeli, son iki terim ise sırasıyla, elektronlar arasındaki ve deşikler arasındaki itici Coulomb potansiyelleridir.

4.4. Ekziton, Yüklü Ekzitonlar ve Çift Ekzitonun Elektronik ve Optik Özellikleri

X, X^+, X^- ve *XX*'in elektronik ve optik özelliklerinin bilinmesi, lazerler, ledler, biyolojik işaretleme vb. uygulama alanlarında önemli olmaktadır. Özellikle yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların optik özellikleri son zamanlarda üzerinde yoğun olarak çalışılmaya başlanan konulardır (Klimov ve ark., 2007; Oron ve ark., 2007; Jha ve Guyot-Sionnest, 2009; Tyrrell ve ark., 2011). Burada elektronik ve optik hesaplar yapılırken kullanılan ifadelerden bahsedilecektir.

4.4.1. Toplam enerji

Tip-II KNH'de, X, X^+, X^- ve XX için toplam enerji ifadeleri,

$$E_X = E_{g1} - V_e + E_e + E_h - E_{e-h} \quad (4.10)$$

$$E_{X^+} = E_{g1} - V_e + E_e + 2E_h - 2E_{e-h} + E_{h-h} \quad (4.11)$$

$$E_{X^-} = E_{g1} - V_e + 2E_e + E_h - 2E_{e-h} + E_{e-e} \quad (4.12)$$

$$E_{XX} = E_{g1} - V_e + 2E_e + 2E_h - 4E_{e-h} + E_{e-e} + E_{h-h} \quad (4.13)$$

şeklindedir (Shumway ve ark., 2001; Piryatinski ve ark., 2007). Burada, E_{g1} çekirdek malzemesinin bant aralığı enerjisi, V_e elektron sınırlandırma potansiyeli, E_e elektronun enerjisi, E_h deşiğin enerjisi, E_{e-h} elektron-deşik arasındaki çekici Coulomb enerjisi, E_{e-e} elektron-elektron arasındaki itici Coulomb enerjisi ve E_{h-h} ise deşik-deşik arasındaki itici Coulomb enerjileridir.

4.4.2. Bağlanma enerjisi

Tip-II KNH'de, X, X^+, X^- ve XX için bağlanma enerjisi ifadeleri,

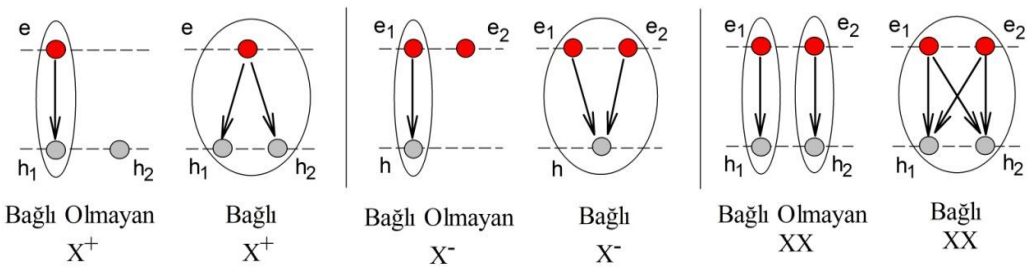
$$E_b(X) = (E_e^0 + E_h^0) - E_X \quad (4.14)$$

$$E_b(X^+) = (E_h^0 + E_X) - E_{X^+} \quad (4.15)$$

$$E_b(X^-) = (E_e^0 + E_X) - E_{X^-} \quad (4.16)$$

$$E_b(XX) = 2E_{XX} - E_X \quad (4.17)$$

şeklinde verilir (Narvaez ve ark., 2005; Rajadell ve ark., 2009). Burada, E_e^0 ve E_h^0 sırasıyla etkileşmeyen elektron ve deşiğin tek parçacık enerjileridir.



Şekil 4.7. Bağlı ve bağlı olmayan X^+, X^- ve XX'in şematik gösterimi.

Ekziton bağlanma enerjisinin pozitif olduğu durumda elektron ve deşik birlikte hareket etmektedir. X bağlanma enerjisi negatif olduğunda ise elektron ve deşik birbirinden bağımsız durumdadır. Bağlanma enerjisinin pozitif ya da negatif olması özellikle X^+, X^- ve XX'in optik hesaplamaları için önemli olmaktadır. X^+ bağlanma enerjisi pozitif ise, bu ekziton ile deşik arasındaki etkileşimin çekici olduğu anlamına gelir. Bu yapı bağlı X^+ (bound X^+) olarak adlandırılır. X^+ bağlanma enerjisi negatif ise, bu ekziton ile deşik arasındaki etkileşimin itici olduğu anlamına gelir. Bu yapı bağlı olmayan X^+ (unbound X^+) olarak adlandırılır. Aynı durum X^- için de geçerlidir. XX bağlanma enerjisi pozitif ise, ekziton-ekziton arasındaki etkileşim çekici etkileşimdir. Bu yapıya bağlı çift ekziton (bound biexciton) denir. Son olarak XX bağlanma enerjisi negatif ise ekziton-ekziton arasındaki etkileşim iticidir. Bu yapı da bağlı olmayan çift ekziton (unbound biexciton) denir (Combescot ve Betbeder-Matibet, 2009). Şekil 4.7'de bağlı olan ve bağlı olmayan X^+ , X^- ve XX'in şematik gösterimleri verilmiştir. Bağlanma enerjisinin pozitif ya da negatif olması, osilatör şiddeti ve dolayısıyla hayat sürelerini etkilemektedir.

4.4.3. Geçiş Enerjisi

Tip-II KNH'de, X, X^+ , X^- ve XX için geçiş enerjisi (transition energy) ifadeleri,

$$E_{tr}(X) = E_X \tag{4.18}$$

$$E_{tr}(X^+) = E_{X^+} - E_h^0 \tag{4.19}$$

$$E_{tr}(X^-) = E_{X^-} - E_e^0 \tag{4.20}$$

$$E_{tr}(XX) = E_{XX} - E_X \tag{4.21}$$

şeklinde ifade edilir (Rajadell ve ark., 2009).

4.4.4. Örtüşme İntegrali

Elektron ve deşik arasındaki konumsal farkın ifadesi olan, X için elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme integrali,

$$\Theta_{\mathrm{X}} = \left| \int_0^{\mathrm{R+H}} \mathrm{d}r\, r^2\, R_e^X(r) R_h^X(r) \right|^2 \tag{4.22}$$

şeklinde verilir (Oron ve ark., 2007; Piryatinski ve ark., 2007). Burada $R_e^X(r)$ ve $R_h^X(r)$ sırasıyla ekzitonu oluşturan elektron ve deşiğin dalga fonksiyonlarının radyal kısmıdır. (R+H) çekirdek ve kabuğun toplam kalınlığıdır. Aynı şekilde yüklü ekzitonlar ve çift ekziton için elektron ve deşik dalga fonksiyonları arasındaki örtüşme integralleri,

$$\Theta_{\mathrm{X}^+} = \left| \int_0^{\mathrm{R+H}} \mathrm{d}r\, r^2\, R_e^{X^+}(r) R_h^{X^+}(r) \right|^2 \tag{4.23}$$

$$\Theta_{\mathrm{X}^-} = \left| \int_0^{\mathrm{R+H}} \mathrm{d}r\, r^2\, R_e^{X^-}(r) R_h^{X^-}(r) \right|^2 \tag{4.24}$$

$$\Theta_{\mathrm{XX}} = \left| \int_0^{\mathrm{R+H}} \mathrm{d}r\, r^2\, R_e^{XX}(r) R_h^{XX}(r) \right|^2 \tag{4.25}$$

olarak verilir. Burada $R_e^{X^+}(r)$ ve $R_h^{X^+}(r)$ pozitif yüklü ekzitonu oluşturan elektron ve deşiğin dalga fonksiyonlarının radyal kısmı, $R_e^{X^-}(r)$ ve $R_h^{X^-}(r)$ negatif yüklü ekzitonu oluşturan elektron ve deşiğin dalga fonksiyonlarının radyal kısmı, $R_e^{XX}(r)$ ve $R_h^{XX}(r)$ ise çift ekzitonu oluşturan elektron ve deşiğin dalga fonksiyonlarının radyal kısmıdır.

4.4.5. Osilatör Şiddeti

Tek bir ekziton için osilatör şiddeti bağıntısı,

$$f_X = \frac{E_p}{2E_{tr}(X)} \Theta_{\mathrm{X}} \tag{4.26}$$

şeklinde verilir (Şahin ve ark., 2009). Burada E_p Kane enerjisidir. Benzer şekilde, X^+, X^- ve XX osilatör şiddetleri,

$$f_{X^+} = \frac{kE_p}{2E_{tr}(X^+)} \Theta_{\mathrm{X}^+} \tag{4.27}$$

$$f_{X^-} = \frac{kE_p}{2E_{tr}(X^-)} \Theta_{\mathrm{X}^-} \tag{4.28}$$

$$f_{XX} = \frac{kE_p}{2E_{tr}(XX)}\Theta_{XX} \tag{4.29}$$

şeklinde verilebilir. Burada k bir sabitdir. Yüklü ekzitonlarda k sabiti, eğer yüklü ekziton bağlı durumda ise ≅2, bağlı olmayan durumda ise ≅1 olarak alınır. Bunun nedeni bağlı yüklü ekzitonda, bütün yükler birlikte hareket ettikleri için, yeniden birleşme sırasında birleşme X durumundakinin yaklaşık olarak iki katıdır. Mesela, X^+'da bir elektron iki deşik bulunduğu için elektronun her iki deşikle de birleşme olasılığı hemen hemen aynıdır. Bu da geçiş olasılığını arttırmaktadır. Fakat bağlı olmayan X^+'da ise, ekziton ile üçüncü yük bağımsız hareket ettikleri için, elektron geçiş yaparken kendisi ile bağlı durumda olan deşik ile birleşme olasılığı daha yüksektir. Bu yüzden geçiş olasılığı bağlı durumdaki yüklü ekzitonun yaklaşık yarısı kadardır ve bu durumda k≅1 olarak alınmıştır. Aynı durum negatif yüklü ekziton için de geçerlidir.

Çift ekzitonda ise, bağlı durumda k≅4, bağlı olmayan durumda ise k≅2 olarak alınır. Yüklü ekzitonlarla benzer şekilde, bağlı çift ekziton durumunda iki elektron ve iki deşik birlikte hareket ettiğinden, her iki elektronun her iki deşik ile birleşme ihtimali vardır. Yani geçiş ihtimali, Şekil 4.7'den de görüleceği gibi ekzitona göre ≅4 kat fazladır. Bu yüzden $k \cong 4$ alınır. Fakat bağlı olmayan çift ekziton durumunda, her bir elektronun kendisi ile bağlı olan deşik ile birleşme olasılığı daha yüksek olduğundan geçiş olasılığı, bağlı çift ekzitonun birleşme olasılığının yaklaşık olarak yarısı olmaktadır. Bu nedenle, k≅2 olarak alınmalıdır.

4.4.6. Hayat süresi

Tek bir ekziton için hayat süresi,

$$\tau_X = \frac{6\pi\varepsilon_0 m_0 c^3 \hbar^2}{e^2 n \beta_s (E_{tr}(X))^2 f_X} \tag{4.30}$$

ile tanımlanır (Şahin ve ark., 2012). Burada ε_0 boşluğun dielektrik geçirgenliği, m_0 ve e sırasıyla elektronun boşluktaki kütlesi ve yüküdür. c ışığın boşluktaki hızı, β_s perdeleme faktörü, n kırılma indisidir. β_s perdeleme faktörü,

$$\beta_s = \frac{3\varepsilon}{(\varepsilon_{NQD} + 2\varepsilon)} \tag{4.31}$$

şeklindedir (Şahin ve ark., 2012). Burada ε_{NQD} KNH'nin, ε ise yapının içinde bulunduğu çözücü ortamın dielektrik sabitleridir. X^+, X^- ve XX için hayat süresi,

$$\tau_{X^+} = \frac{6\pi\varepsilon_0 m_0 c^3 \hbar^2}{e^2 n \beta_s (E_{tr}(X^+))^2 f_{X^+}} \tag{4.32}$$

$$\tau_{X^-} = \frac{6\pi\varepsilon_0 m_0 c^3 \hbar^2}{e^2 n \beta_s (E_{tr}(X^-))^2 f_{X^-}} \tag{4.33}$$

$$\tau_{XX} = \frac{6\pi\varepsilon_0 m_0 c^3 \hbar^2}{e^2 n \beta_s (E_{tr}(XX))^2 f_{XX}} \tag{4.34}$$

ile ifade edilir.

5. HESAPLAMA YÖNTEMLERİ

5.1. Giriş

Kuantum nokta yapılarda bulunan ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların elektronik özelliklerini incelemek, diğer optik özelliklerin belirlenmesi açısından son derece önemlidir. Öte yandan, özellikle yüklü ekziton ve çift ekziton hesaplarının analitik olarak yapılması imkansızdır. Bu nedenle bu yapıların çözümleri belirli yaklaşımlar yapılarak bulunabilmektedir. Bu bölümde, genel olarak kuantum nokta yapıların elektronik ve optik özelliklerini belirlemek için kullanılan teknikler ele alınacaktır.

5.2. Etkin Kütle Yaklaşımı

Bir yarıiletken süper örgü, periyodik bir yapıya sahiptir. Bu nedenle, yarıiletken içinde hareket etmeye çalışan bir elektron için süper örgü, periyodik potansiyel davranışı gösterir.

Periyodik potansiyel sıfır olduğunda, örgü içinde kütlesi *m* olan serbest bir elektron bulunur. Eğer periyodik potansiyel sıfır değilse, elektron periyodik kristal içinde "etkin kütle (effective mass)" olarak bilinen farklı bir kütle ile hareket eder. Etkin kütle için bir ifade elde ederken, serbest elektron durumundan başlanır. **v** hızı ile hareket eden serbest bir elektronun kinetik enerji ifadesi

$$\mathrm{E} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \qquad \left(k^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2\right) \tag{5.1}$$

ile ifade edilir. Bu elektronun momentumu ise,

$$\boldsymbol{p} = \hbar \boldsymbol{k} \tag{5.2}$$

şeklinde verilir. Eğer elektron bir periyodik potansiyel içerisinde hareket ediyorsa, momentumu serbest halde hareket eden elektronun momentumundan farklıdır.

Periyodik bir örgü içinde hareket eden bir elektrona dışarıdan bir $\mathbf{F_{dış}}$ kuvveti uygulanırsa, bu elektronun hareket denklemi

$$\mathbf{F}_{\boldsymbol{iç}} + \mathbf{F}_{\mathbf{dış}} = m\frac{\mathrm{d}\mathbf{v}}{\mathrm{dt}} = m\mathbf{a} \tag{5.3}$$

şeklinde verilir. Burada $\mathbf{F}_{\mathbf{iç}}$, örgü atomları tarafından oluşturulan kristal potansiyelinin elektrona uyguladığı net kuvvettir. Bir $\mathbf{F}_{\mathbf{dış}}$ kuvveti altındaki elektronun hareket denklemini, iç kuvvetlerin etkisi de dahil ederek daha uygun bir şekilde,

$$\mathbf{F}_{\mathbf{dış}} = m^*\frac{d\mathbf{v}}{dt} = m^*\mathbf{a} \tag{5.4}$$

olarak ifade edilebilir. Burada m^* elektronun kristal yapı içindeki etkin kütlesidir ve bu ifade, kristal örgüdeki atomlar tarafından elektronun üzerine uygulanan iç kuvvetlerin etkisini de içerir. Bunun yanında enerji seviyeleri için hız ifadesi

$$\mathbf{v} = \frac{1}{\hbar}\frac{d\mathrm{E}}{d\mathbf{k}} \tag{5.5}$$

şeklinde verilir (Omar, 1999). Denk. (5.5)'in zamana göre türevi alınıp Denk. (5.4)'te yerine yazılarak etkin kütle ifadesi,

$$m^* = \left(\frac{1}{\hbar^2}\frac{\partial^2\mathrm{E}}{\partial\mathbf{k}^2}\right)^{-1} \tag{5.6}$$

şeklinde elde edilir (Harrison, 1999; Omar, 1999).

5.3. Hartree Yaklaşımı

Hartree yaklaşımı çok-parçacıklı sistemlerde kullanılan basit ama etkili bir yaklaşımdır. Bu yaklaşımda, çok parçacıklı sistem içerisindeki bir parçacığın, diğer parçacıkların oluşturduğu ortalama bir potansiyel alanı içindeki hareketi göz önüne alınır.

Hartree yaklaşımında tek parçacık Schrödinger denklemi,

$$\left\{\frac{\mathbf{p}^2}{2m^*} + V_H(\boldsymbol{r}) + V_0\right\}\psi_n(\boldsymbol{r}) = \mathrm{E}\psi_n(\boldsymbol{r}) \tag{5.7}$$

şeklindedir. Burada V_H Hartree potansiyeli olup Poisson denkleminin çözümü ile bulunur.

$$\nabla^2 V_H = \frac{n(\boldsymbol{r})}{\varepsilon \varepsilon_0} \tag{5.8}$$

Bu denklemde $\mathrm{n}(\mathbf{r})$ yük yoğunluğudur ve

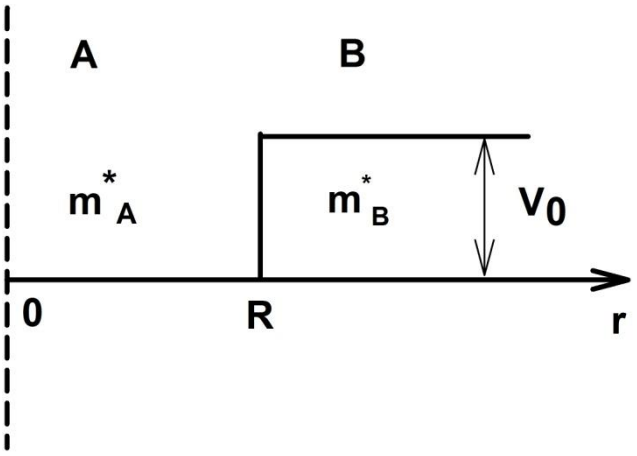
$$\mathrm{n}(\boldsymbol{r}) = \sum_{n=1}^{\mathrm{N}} |\psi_n(\boldsymbol{r})|^2 \tag{5.9}$$

ifadesinden elde edilir (Ihn, 2010).

5.4. Heteroyapılarda Etkin Kütle Uyumsuzluğu

Yarıiletken heteroyapılar, herbiri kendi bant aralığına, örgü yapısına ve etkin kütle değerlerine sahip iki farklı malzemenin birleştirilmesi ile elde edildiği için, iki malzemenin birleşme noktasında, dalga fonksiyonu ve türevinin sürekliliğinin sağlanmasında, etkin kütlelerin bu farklılığı da göz önünde bulundurulmalıdır.

Şekil 5.1'de görüldüğü gibi A ve B malzemelerinden oluşturulmuş bir heteroyapının r = R noktasında birleştiğini varsayarsak, bu yapı için her iki malzeme içindeki tek parçacık Schrödinger denklemleri,



Şekil 5.1. A ve B malzemelerinden meydana gelen bir heteroyapının şematik gösterimi.

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_A^*}\nabla_r^2\right)\psi(r) = \mathrm{E}\psi(\mathrm{r}) \qquad r \leq \mathrm{R} \tag{5.10}$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_B^*}\nabla_r^2 + \mathrm{V}_0\right)\psi(r) = \mathrm{E}\psi(\mathrm{r}) \qquad r > R \tag{5.11}$$

şeklindedir. Burada m_{A}^* ve m_{B}^* sırasıyla elektronun A ve B malzemelerindeki etkin kütlesidir. İki malzemenin bant aralığı değerlerinin farklı olması, malzemelerin birleşme noktasında sonlu potansiyel engeli gibi davranmasına sebep olur. Eğer iki malzeme aynı ise, dalga fonksiyonu ve dalga fonksiyonunun türevinin sürekliliğini veren genel sınır şartları,

$$\psi(\mathrm{A}) = \psi(\mathrm{B}), \qquad ve \qquad \left.\frac{\partial\psi(r)}{\partial r}\right|_{r=R^-} = \left.\frac{\partial\psi(r)}{\partial r}\right|_{r=R^+} \tag{5.12}$$

şeklindedir. Fakat bu koşullar, etkin kütlenin farklı olduğu durumlarda tam doğru değildir. Bu durum için daha doğru sınır koşulu ifadeleri,

$$\psi(\mathrm{A}) = \psi(\mathrm{B}), \qquad ve \qquad \left.\frac{1}{m_A}\frac{\partial\psi(r)}{\partial r}\right|_{r=R^-} = \left.\frac{1}{m_B}\frac{\partial\psi(r)}{\partial r}\right|_{r=R^+} \tag{5.13}$$

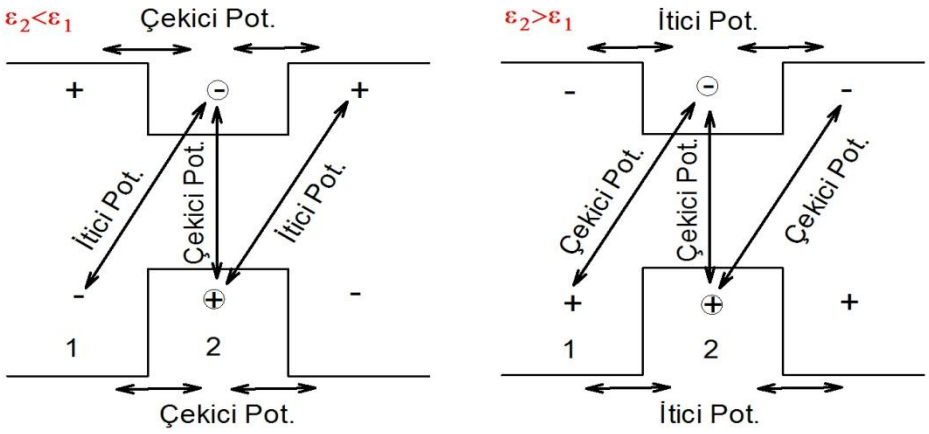
şeklindedir. Görüldüğü gibi sınır şartı etkin kütle ifadelerini de içermektedir. Bu sınır şartı BenDanniel-Duke (1966) sınır şartı olarak bilinir. Bu şart dahil edilerek Schrödinger denklemi,

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\nabla_r\frac{1}{m^*(r)}\nabla_r + \mathrm{V}_0\right]\psi(r) + V\psi(r) = \mathrm{E}\psi(r) \tag{5.14}$$

şeklinde yazılır (Davies, 1998).

5.5. Dielektrik Uyumsuzluğu

Kuantum heteroyapılarda, malzemelerin dilektrik katsayıları arasındaki fark, yapının elektronik özelliklerini etkilemektedir. Dielektrik katsayıları arasındaki farktan



Şekil 5.2. Bir heteroyapıda dielektrik uyumsuzluğun oluşturduğu etkilerin şematik gösterimi.

dolayı, yapı içinde görüntü yükler oluşmaktadır. Şekil 5.2'de görüldüğü gibi görüntü yüklerin oluşturduğu potansiyel, iki malzemenin birleştiği noktada, parçacık düşük dielektrik katsayısına sahip malzemede bulunuyor ise çekici, yüksek dielektrik katsayılı malzemede bulunuyor ise itici etki göstermektedir. Bu potansiyelin büyüklüğü ise dielektrik katsayıları arasındaki fark ile doğru orantılıdır. Fark büyüdükçe görüntü yüklerin oluşturduğu potansiyelin şiddeti artmaktadır (Pereira ve ark., 2010).

Görüntü yüklerin oluşturduğu potansiyeli hesaplamalara dahil etmek için Denk. (5.8)' i dielektrik katsayıların farklılığını göz önüne alarak çözmek gerekmektedir.

$$\nabla.[\kappa(r)\ \nabla V(r)] = \frac{\mathrm{n}(r)}{\varepsilon_0} \qquad (5.15)$$

5.6. Yerel Yoğunluk Yaklaşımı

Bilindiği gibi Hartree yaklaşımı, kuantum mekaniksel değiş-tokuş ve korelasyon etkilerini göz önüne almaz. Daha gerçekçi hesaplamalar için bu etkilerin de göz önüne alınması gerekir. Bunun için genelleştirilmiş gradyent yaklaşımı (GGA), yerel yoğunluk yaklaşımı (LDA) gibi yaklaşımlar yapılmaktadır. Yerel yoğunluk yaklaşımında, değiş-tokuş ve korelasyon olmak üzere iki terim bulunmaktadır. Değiş-tokuş ve korelasyon potansiyeli, değiş-tokuş ve korelasyon enerjisinin yerel yoğunluğa göre fonksiyonel türevidir ve homojen elektron gazı için bu değer elektron yoğunluğunun değerine bağlıdır (Thijssen, 1999; Burke ve ark., 2007; Ihn, 2010). Yerel yoğunluk yaklaşımı altında değiş-tokuş ve korelasyon enerjisi,

$$\mathrm{E}_{xc}[n(r)] = \int \mathrm{n}(r)\varepsilon_{xc}[\mathrm{n}(r)]d^3r \tag{5.16}$$

şeklinde verilir (Thijssen, 1999; Burke ve ark., 2007). Burada $\varepsilon_{\mathrm{xc}}$, yoğunluğu n olan homojen bir elektron gazının her bir parçacığının değiş-tokuş ve korelasyon enerjisidir.

Bu yaklaşımda değiş-tokuş enerjisi genelde,

$$\mathcal{E}_x = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}\frac{3}{4}\left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/3}\mathrm{n}^{1/3} \tag{5.17}$$

şeklinde verilmektedir (Perdew ve Zunger, 1981; Thijssen, 1999; Burke ve ark., 2007; Ihn, 2010). Değiş-tokuş potansiyeli Denk. (5.17)' in fonksiyonel türevi alınarak hesaplandığında,

$$V_x = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\kappa_r}\left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/3}\mathrm{n}^{1/3} \tag{5.18}$$

bağıntısı elde edilir (Perdew ve Zunger, 1981; Thijssen, 1999; Burke ve ark., 2007).

Korelasyon terimi çok daha karmaşıktır ve homojen elektron gazının taban seviye dalga fonksiyonlarına bağlıdır (Thijssen, 1999; Burke ve ark., 2007; Ihn, 2010). Korelasyon enerjisi ve potansiyeli için parametrelere bağlı analitik türetimler yapılmışdır (Perdew ve Zunger, 1981). Korelasyon enerjisi,

$$\varepsilon_c = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}\left(\mathrm{A}\ln\mathrm{r_s} + \mathrm{B} + \mathrm{Cr_s}\ln\mathrm{r_s} + \mathrm{Dr_s}\right) \quad , \quad \mathrm{r_s} < 1 \tag{5.19}$$

$$\varepsilon_c = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}\frac{\gamma}{1+\beta_1\sqrt{\mathrm{r_s}}+\beta_2\mathrm{r_s}} \quad , \quad \mathrm{r_s} \geq 1 \tag{5.20}$$

şeklinde verilir. Korelasyon potansiyeli ise,

$$V_c = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}\left(\mathrm{A}\ln\mathrm{r_s} + \mathrm{B} - \frac{\mathrm{A}}{3} + \frac{2}{3}\mathrm{Cr_s}\ln\mathrm{r_s} + \frac{1}{3}(2\mathrm{D}-\mathrm{C})\mathrm{r_s}\right) \ , \ \mathrm{r_s} < 1 \tag{5.21}$$

$$V_c = \varepsilon_c \frac{1 + \frac{7}{6}\beta_1\sqrt{r_s} + \frac{4}{3}\beta_2 r_s}{1 + \beta_1\sqrt{r_s} + \beta_2 r_s} \quad , \; r_s \geq 1 \qquad (5.22)$$

şeklindedir. Burada A=0.311, B=-0.048, C=0.002, D=-0.0116, γ=-0.1423, β_1=1.0529, β_2=0.3334'tür , r_s Wigner-Seitz yarıçapı

$$r_s = \left[\frac{3}{4\pi n(r)}\right]^{1/3} \qquad (5.23)$$

ifadesiyle verilir (Perdew ve Zunger, 1981). Değiş-tokuş ve korelasyon enerjisi ve potansiyeli, ayrı ayrı verilen bu ifadelerin toplamı olarak

$$\varepsilon_{xc} = \varepsilon_x + \varepsilon_c \qquad (5.24)$$

$$V_{xc} = V_x + V_c \qquad (5.25)$$

şeklinde yazılabilir.

5.7. Matris Köşegenleştirme Yöntemi

Matris köşegenleştirme yöntemi, Schrödinger dalga denkleminin çözümü için yaygın olarak kullanılan yöntemlerden biridir. Bu yöntemde Schrödinger dalga denklemi, matris formuna dönüştürülerek çözülmektedir. Küresel simetrik yapılarda, Schrödinger dalga denklemini matris köşegenleştirme problemi olarak çözmek için, denklemin sadece radyal kısmı kullanılır. Radyal Schrödinger dalga denklemi,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\left(\frac{1}{r^2}\frac{d^2}{dr^2}\left(r^2\,\frac{d}{dr}\right) - \frac{l(l+1)}{r^2}\right) R_{nl}(r) + V(r)R_{nl}(r) = ER_{nl}(r) \qquad (5.26)$$

şeklindedir. Bu denklemde $R_{nl}(r) = \left({}^{1}/_{r}\right)u_{nl}(r)$ değişimi yapılırsa,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{d^2}{dr^2}u_{nl}(r) + \left(V(r) + \frac{l(l+1)}{r^2}\frac{\hbar^2}{2m^*}\right)u_{nl}(r) = Eu_{nl}(r) \qquad (5.27)$$

elde edilir (Griffiths, 2004). Denk. (5.27)'i matris özdeğer problemi şeklinde tamamen sayısal olarak yazabilmek için, öncelikle ikinci türev ifadesi açılır. Bu işlem için merkezi fark yöntemi kullanılabilir. Bir f fonksiyonuna bağlı ikinci dereceden türev ifadesi,

$$f'' = \frac{f(r+h) - 2f(r) + f(r-h)}{h^2} + O(h^2) \tag{5.28}$$

şeklindedir. Burada h, iki nokta arası genişliktir. Gerçek uzayda çalışma aralığının sınırları R_{min} ve R_{max} olmak üzere, çalışma aralığı N parçaya bölünürse, iki nokta arası genişlik

$$h = \frac{R_{max} - R_{min}}{N} \tag{5.29}$$

olur. Burada $R_{min} = 0$'dır. Eğer keyfi bir r değerini,

$$r_i = 0 + ih \qquad i = 0,1,2 \ldots\ldots\ldots N_{step} - 1 \tag{5.30}$$

olarak tanımlarsak, r_i' ye bağlı Schrödinger dalga denklemi yeniden yazıldığında,

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\left[\frac{u(r_i+h) - 2u(r_i) + u(r_i-h)}{h^2}\right] + V_{etk}(r_i) = Eu(r_i) \tag{5.31}$$

şeklinde olur. Burada

$$V_{etk} = V(r) + \frac{l(l+1)\hbar^2}{2m^* r^2} \tag{5.32}$$

dir. Bu durumda köşegen matris elemanları,

$$d_i = \frac{\hbar^2}{m^*}\frac{1}{h^2} + V_{etk}(i) \tag{5.33}$$

olarak, köşegen olmayan matris elemanları,

$$\epsilon_i = -\frac{\hbar^2}{2m^* h^2} \tag{5.34}$$

olarak elde edilir. Tüm bu işlemlerden sonra Schrödinger dalga denklemi ,

$$d_i u_i + \epsilon_{i-1} u_{i-1} + \epsilon_{i+1} u_{i+1} = E u_i \tag{5.35}$$

şeklinde olmaktadır. Denk. (5.35) matris öz değer problemi olarak yazıldığında,

$$\begin{pmatrix} d_1 & \epsilon_1 & 0 & 0 & 0 \\ \epsilon_1 & d_2 & \epsilon_2 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_2 & d_3 & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & \dots & \dots & d_{N-2} & \epsilon_{N-1} \\ 0 & \dots & \dots & \epsilon_{N-2} & d_{N-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_1 \\ u_2 \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ u_{N-1} \end{pmatrix} = E \begin{pmatrix} u_1 \\ u_2 \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ u_{N-1} \end{pmatrix} \tag{5.36}$$

şeklini alır. Bu matris üçlü-köşegen matris olarak tanımlanır. Buradaki katsayılar matrisinin özdeğerleri enerjilere, özvektörleri ise dalga fonksiyonlarına karşılık gelmektedir.

5.8. Küresel Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton, Yüklü Ekziton ve Çift Ekziton

Bu bölümde önceki bölümlerde ele alınan hesaplama yöntemleri kullanılarak, küresel bir kuantum nokta heteroyapıdaki *X*, X^+, X^- ve *XX*'in elektronik ve optik özellikleri hesaplanacaktır. Öz uyumlu hesaplamalar için, etkin kütle yaklaşımı ve BenDaniel-Duke sınır şartları kullanılmıştır. Etkin kütle yaklaşımı altında, küresel bir kuantum nokta heteroyapıdaki taban enerji seviyesinde bulunan ekziton için genel Schrödinger dalga denklemi,

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\left(\vec{\nabla}_{r_e}\left(\frac{1}{m_e^*(r_e)}\vec{\nabla}_{r_e}\right)+\vec{\nabla}_{r_h}\left(\frac{1}{m_h^*(r_h)}\vec{\nabla}_{r_h}\right)\right)-\frac{e^2}{\varepsilon|\vec{r}_e-\vec{r}_h|}+V_e(r_e)+V_h(r_h)\right]$$
$$\psi_{nlm}^{exc}(\vec{r}_e,\vec{r}_h)=\varepsilon_{nlm}\psi_{nlm}^{exc}(\vec{r}_e,\vec{r}_h) \tag{5.37}$$

şeklinde verilir (Şahin ve ark., 2012). Burada, $\hbar$ Planck sabiti, $m_{e,h}^*(r_e,r_h)$ sırasıyla, elektron ve deşiğin konuma bağlı etkin kütleleri, $V_{e,h}(r_e,r_h)$ sırasıyla elektron ve deşiğin sınırlandırma potansiyelleri, $\psi_{nlm}^{exc}(\vec{r}_e,\vec{r}_h)$ ise ekzitonun dalga fonksiyonudur. Bu

denklemin analitik çözümü imkansız olduğu için, nümerik analiz kaçınılmaz olmaktadır. Bunun için Hartree yaklaşımı altında, Denk. (5.37) elektron ve deşik için ayrı iki denklem haline getirilecektir. Bu işlem sonucunda Denk. (5.37),

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\vec{\nabla}_r\left(\frac{1}{m_e^*(r)}\vec{\nabla}_r\right) - q_e\Phi_h + V_e(r)\right]R_e(r) = \varepsilon_e R_e(r) \tag{5.38}$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\vec{\nabla}_r\left(\frac{1}{m_h^*(r)}\vec{\nabla}_{\mathrm{r}}\right) - q_h\Phi_e + V_h(r)\right]R_h(r) = \varepsilon_h R_h(r) \tag{5.39}$$

şeklinde elektron ve deşik için iki ayrı denklem olarak yazılır. Burada Φ_e ve Φ_h sırasıyla elektron ve deşiğin elektrostatik Coulomb potansiyeli, $q_{e,h}$ elektron ve deşiğin yükleri, $R_e(r)$ elektronun, $R_h(r)$ ise deşiğin dalga fonksiyonlarının radyal kısımlarıdır.

Yüklü ekziton ve çift ekziton durumlarında, benzer parçacıklar arasındaki itici Coulomb potansiyeli ve değiş-tokuş ve korelasyon terimleri de Denk. (5.38) ve Denk. (5.39)'a eklenmelidir. Yüklü ekziton ve çift ekziton için Denk. (5.38) ve Denk. (5.39),

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\vec{\nabla}_r\left(\frac{1}{m_e^*(r)}\vec{\nabla}_r\right) - q_e\Phi_h + q_e\Phi_e + V_e(r) + V_{xc}^{e-e}[\rho_e(r)]\right]R_e(r) = \varepsilon_e R_e(r) \tag{5.40}$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2}\vec{\nabla}_r\left(\frac{1}{m_h^*(r)}\vec{\nabla}_r\right) - q_h\Phi_e + q_h\Phi_h + V_h(r) + V_{xc}^{h-h}[\rho_h(r)]\right]R_h(r) = \varepsilon_h R_h(r) \tag{5.41}$$

şeklinde yeniden yazılır. Burada Denk. (5.38) ve Denk. (5.39)'ye ek olarak, dördüncü terimler benzer parçacıklar arasındaki itici Coulomb etkisi ve beşinci terimler ise elektron-elektron ve deşik-deşik arasındaki değiş-tokuş ve korelasyon potansiyellerini temsil etmektedir.

Elektron ve deşik tarafından oluşturulan potansiyeller Denk. (5.15) çözülerek elde edilir. Değiş-tokuş ve korelasyon potansiyeli için ise Denk. (5.25) kullanılmıştır. Denk. (5.40) ve Denk. (5.41) Bölüm 5.7'de anlatılan matris köşegenleştirme yöntemi kullanılarak, öz uyumlu bir şekilde çözülür ve elektron ve deşiğin enerji seviyeleri ve dalga fonksiyonları elde edilir. Bu çalışmada adım aralığı $h = 0.001$ olarak alınmıştır. Hamilton matrisinin öz değer ve öz vektörlerini elde etmek için ALGLIB alt programı kullanılmıştır.

Enerji seviyeleri ve dalga fonksiyonlarını elde etmek için, ilk önce Denk. (5.38) ve Denk. (5.39) Coulomb potansiyel terimi dahil edilmeden çözülmüştür. Bu işlem sonucunda elde edilen dalga fonksiyonları ile Coulomb potansiyeli hesaplanmıştır. Daha sonra, elde edilen potansiyel dahil edilerek Denk. (5.38) ve Denk. (5.39) yakınsama sağlanıncaya kadar öz-uyumlu bir şekilde çözülerek son durum enerjileri ve dalga fonksiyonları elde edilmiştir.

Bu hesaplamalardan sonra tip-II KNH'deki X için toplam enerji ifadesi,

$$E_X = E_{g1} - V_e + \varepsilon_e^X + \varepsilon_h^X - \varepsilon_{coul}^X \tag{5.42}$$

şeklinde verilir (Şahin ve ark., 2009). Burada, E_g enerji bant aralığı, ε_e^X ve ε_h^X sırasıyla, elektron ve deşiğin Denk. (5.38) ve Denk. (5.39)'nin öz-uyumlu çözümü sonucunda elde edilen tek parçacık enerjileri, ε_{coul}^X ise elektron ve deşik arasındaki çekici Coulomb enerjisidir. Bu çekici Coulomb potansiyel terimi öz-uyumlu hesaplamada, hem elektronun hem de deşiğin enerji ifadelerinde hesaba katıldığından, ekzitonun toplam enerjisi hesaplanırken bunların bir tanesi çıkarılmalıdır. Coulomb enerjisi,

$$\varepsilon_{coul}^X = -\frac{(\varepsilon_e^0 - \varepsilon_e^X + \varepsilon_h^0 - \varepsilon_h^X)}{2} \tag{5.43}$$

şeklinde hesaplanır (Şahin ve ark., 2009). Burada ε_e^0 ve ε_h^0 sırasıyla, elektron ve deşiğin çekici Coulomb etkileşimi dahil edilmeden hesaplanan tek parçacık enerjileridir.

Pozitif yüklü ekziton için toplam enerji ifadesi hesaplanırken, tek ekzitondan farklı bir yöntem izlenir. Bu yöntem aşağıdaki gibi özetlenebilir.

Birinci adımda, birbiri ile etkileşmeyen elektron ve deşiklerin enerjileri hesaplanır:

i. Bunun için Denk. (5.38) çekici Coulomb potansiyeli, Denk. (5.41) ise çekici ve itici Coulomb ve değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri dahil edilmeden çözülür. Bu işlem sonucunda etkileşmeyen elektron ve deşiklerin toplam enerjileri,

$$E_e^{top}(0) = \varepsilon_e(0), \qquad E_h^{top}(0) = 2\varepsilon_h(0) \tag{5.44}$$

şeklinde hesaplanır.

İkinci adımda, sadece 1 elektron ve 2 deşik arasındaki çekici Coulomb potansiyelleri sisteme dahil edilerek:

i. Bir önceki adımda elde edilen dalga fonsiyonları kullanılarak Denk. (5.9) yardımıyla yoğunluklar hesaplanır.

ii. Elde edilen yük yoğunlukları, Denk. (5.15)'te kullanılarak eletrostatik Coulomb potansiyelleri (Φ_e ve Φ_h) hesaplanır.

iii. Φ_e ve Φ_h Denk. (5.38) ve Denk. (5.41)'e dahil edilerek, denklemler yeterli yakınsama sağlanıncaya kadar bu üç madde tekrar edilerek öz-uyumlu şekilde çözülür. Burada sadece çekici Coulomb etkileşimlerinin dahil edildiği unutulmamalıdır.

iv. Gerekli yakınsama sağlandıktan sonra elektron ve deşiklerin toplam enerjileri

$$E_e^{top}(1) = \varepsilon_e(1), \qquad E_h^{top}(1) = 2\varepsilon_h(1) \tag{5.45}$$

şeklinde hesaplanır.

Üçüncü adımda, deşik-deşik arasındaki itici Coulomb potansiyelini hesaplamak için:

Burada ilk iki madde, 2. adımdaki i ve ii maddeleri ile aynıdır. Pozitif yüklü ekzitonda tek elektron bulunduğu için, elektron için herhangi bir itici Coulomb etkileşimi söz konusu olamayacağından, bu parçacık için yoğunluk ve elektrostatik Coulomb potansiyeli hesaplarına gerek yoktur.

iii. Deşik için elde edilen elektrostatik Coulomb potansiyeli (Φ_h) Denk. (5.41)'e dahil edilerek, gerekli yakınsama sağlanana dek bu süreçler tekrar edilir.

iv. Yakınsama sağlandıktan sonra toplam enerjiler

$$E_e^{top}(2) = \varepsilon_e(2), \qquad E_h^{top}(2) = 2\varepsilon_h(2) \tag{5.46}$$

olarak verilir.

Dördüncü adımda, son öz-uyumlu hesaplama aşağıdaki gibi yapılır:

i. Yük yoğunlukları, Denk (5.15), Denk. (5.18) ve Denk. (5.21) - Denk. (5.22)'de kullanılarak elektrostatik Coulomb ve değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri hesaplanır.

ii. Öz-uyumlu hesaplama yapılırken, Denk. (5.38)'e çekici Coulomb, Denk (5.41)'e ise çekici ve itici Coulomb ve değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri dahil edilerek, denklemler yakınsama sağlanıncaya kadar çözülür.

Pozitif yüklü ekziton için toplam enerji ifadesi

$$E_{X^+} = E_{g1} - V_e + \varepsilon_e^{X^+} + 2\varepsilon_h^{X^+} - \varepsilon_{coul}^{X^+} - \int V_{xc}^{h-h}\rho_e(r)d^3r + E_{xc}^{h-h} \tag{5.47}$$

şeklindedir. Burada, $\varepsilon_e^{X^+}$ ve $\varepsilon_h^{X^+}$ sırasıyla, X^+ durumunda elektron ve deşiğin tek parçacık enerjileri, $\varepsilon_{coul}^{X^+}$ toplam Coulomb enerjisi, V_{xc}^{h-h} deşik-deşik arasındaki değiş-tokuş ve korelasyon potansiyeli, E_{xc}^{h-h} ise deşik-deşik arasındaki değiş-tokuş ve korelasyon enerjisidir. Burada toplam Coulomb enerjisi

$$\varepsilon_{coul}^{X^+} = \varepsilon_{coul}^{çek.} + \varepsilon_{coul}^{it.} \tag{5.48}$$

şeklinde olup, çekici Coulomb enerjisi

$$\varepsilon_{coul}^{çek} = -\frac{(E_e^{top}(0) - E_e^{top}(1) + E_h^{top}(0) - E_h^{top}(1))}{2} \tag{5.49}$$

olarak ifade edilir. Benzer şekilde deşik-deşik arasındaki itici Coulomb enerjisi ifadesi

$$\varepsilon_{coul}^{it} = \frac{(E_h^{top}(2) - E_h^{top}(0))}{2} \tag{5.50}$$

şeklinde verilir.

Negatif yüklü ekzitonun toplam enerjisi de, pozitif yüklü ekzitonla aynı adımlar izlenerek hesaplanır. Bu yapıda 2 elektron 1 deşik bulunduğu için, elektronlar için Denk. (5.40), deşik için ise Denk. (5.39) kullanılmalıdır. Pozitif yüklü ekzitondan farklı olarak bu yapıda itici Coulomb ve değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri elektronlar için hesaplanır. Bu yapı için yukarıda bahsedilen adımlar 2 elektron ve 1 deşik dikkate alınarak aynen uygulanmalıdır. İlk üç adımdan sonra elektron ve deşiğin toplam enerji ifadeleri sırasıyla

$$E_e^{top}(0) = 2\varepsilon_e(0), \quad E_h^{top}(0) = \varepsilon_h(0) \tag{5.51}$$

$$E_e^{top}(1) = 2\varepsilon_e(1), \quad E_h^{top}(1) = \varepsilon_h(1) \tag{5.52}$$

$$E_e^{top}(2) = 2\varepsilon_e(2), \quad E_h^{top}(2) = \varepsilon_h(2) \tag{5.53}$$

şeklinde verilirler. Negatif yüklü ekzitonun toplam enerji ifadesi

$$E_{X^+} = E_{g1} - V_e + 2\varepsilon_e^{X^-} + \varepsilon_h^{X^-} - \varepsilon_{coul}^{X^-} - \int V_{xc}^{e-e}\rho_h(r)d^3r + E_{xc}^{e-e} \tag{5.54}$$

şeklinde verilir. Burada, $\varepsilon_{coul}^{X^-}$ negatif yüklü ekzitonun toplam Coulomb enerjisi, V_{xc}^{e-e} elektron-elektron arasındaki değiş-tokuş ve korelasyon potansiyeli, E_{xc}^{e-e} ise elektron-elektron arasındaki değiş-tokuş ve korelasyon enerjisidir. Pozitif yüklü ekzitonla benzer şekilde negatif yüklü ekziton için toplam Coulomb enerjisi

$$\varepsilon_{coul}^{X^-} = \varepsilon_{coul}^{çek.} + \varepsilon_{coul}^{it.} \tag{5.55}$$

şeklinde ifade edilir. Bu yapı için çekici Coulomb enerjisi $\varepsilon_{coul}^{çek.}$ Denk. (5.49) ile hesaplanır. İtici Coulomb enerjisi ise

$$\varepsilon_{coul}^{it} = \frac{(E_e^{top}(2) - E_e^{top}(0))}{2} \tag{5.56}$$

şeklinde verilir.

Son olarak çift ekziton durumunda yapıda 2 elektron ve 2 deşik bulunduğu için, Denk. (5.40) ve Denk. (5.41) kullanılmalıdır. Bu yapı içinde yukarıda verilen tüm adımlar, yapıda 2 elektron ve 2 deşik bulunduğu dikkate alınarak tekrar edilir. Yine ilk üç adım sonucunda elektron ve deşiklerin toplam enerjileri sırasıyla

$$E_e^{top}(0) = 2\varepsilon_e(0), \quad E_h^{top}(0) = 2\varepsilon_h(0) \tag{5.57}$$

$$E_e^{top}(1) = 2\varepsilon_e(1), \quad E_h^{top}(1) = 2\varepsilon_h(1) \tag{5.58}$$

$$E_e^{top}(2) = 2\varepsilon_e(2), \quad E_h^{top}(2) = 2\varepsilon_h(2) \tag{5.59}$$

şeklinde olup, çift ekziton için toplam enerji ifadesi

$$E_{XX} = 2E_{g1} - 2V_e + 2\varepsilon_e^{XX} + 2\varepsilon_h^{XX} - \varepsilon_{coul}^{XX} - \int V_{xc}^{e-e}\rho_e(r)d^3r + E_{xc}^{e-e} - \int V_{xc}^{h-h}\rho_h(r)d^3r + E_{xc}^{h-h} \quad (5.60)$$

olarak verilir. Burada ε_{coul}^{XX} çift ekzitonun toplam Coulomb enerjisi olup

$$\varepsilon_{coul}^{XX} = \varepsilon_{coul}^{çek.} + \varepsilon_{coul}^{it.} \quad (5.61)$$

olarak ifade edilir. Çift ekziton için çekici Coulomb enerjisi Denk. (5.49) kullanılarak hesaplanır. Bu yapı için itici Coulomb enerjisi ise

$$\varepsilon_{coul}^{it} = \frac{(E_e^{top}(2) - E_e^{top}(0))}{2} + \frac{(E_h^{top}(2) - E_h^{top}(0))}{2} \quad (5.62)$$

olarak verilir.

6. SONUÇLAR

6.1 Giriş

Bu bölümde, tez çalışması kapsamında incelenen problemlerin, hesaplama sonuçları verilecek ve elde edilen sonuçlar tartışılacaktır. Hesaplamalar beşinci bölümde anlatılan yaklaşımlar ve yöntemler kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Bu bölümde öncelikle, tip-II bir küresel kuantum nokta heteroyapıdaki ekziton ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri detaylı bir şekilde incelenmiştir. Yapı olarak CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapı şeçilmiştir. İkinci olarak, CdTe/CdSe küresel kuantum nokta heteroyapı, üçüncü bir malzeme ile kaplanarak, bu yapıdaki ekziton ve çift ekzitonların elektronik ve optik özelliklerindeki değişimler incelenmiştir. Bu amaç için, kaplama materyali olarak, ZnTe ve CdS kullanılmıştır. Üçüncü olarak, ters çevrilmiş (inverted) bir küresel kuantum nokta heteroyapıdaki ekziton, yüklü ekziton ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri detaylı olarak incelenmiştir. Bunun için CdSe ve CdTe melzemelerinin yeri değiştirilerek CdSe/CdTe kuantum nokta heteroyapı incelenmiştir.

6.2. Hesaplama Parametreleri

Bu tez çalışmasında kullanılan hesaplama parametreleri Çizelge 6.1'de verilmiştir. Tüm hesaplamalarda atomik birimler ($m_0 = \hbar = e = 1$) kullanılmıştır. Bu birimlerde etkin ekziton Bohr yarıçapı

$$a_0 = 0{,}529\frac{\kappa}{\mu^*}, \tag{6.1}$$

etkin ekziton Rydberg enerjisi ise

$$R_y = 13{,}6\frac{\mu^*}{\kappa^2} \tag{6.2}$$

ifadeleriyle verilir. μ^*, indirgenmiş etkin ekziton kütlesi olup,

$$\mu^* = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*} \tag{6.3}$$

ile tanımlanır.

Heteroyapılar fiziksel parametreleri birbirinden farklı, birden fazla malzemeden oluştukları için hesaplamaları tek bir malzeme parametreleri cinsinden yapmak kolaylık sağlayacaktır. Bunun için,

$$m^*(r) = \begin{cases} 1 , & r > R_1 \\ \dfrac{m_2^*}{m_1^*} , & r < R_1 \end{cases} \quad , \quad \varepsilon_r^*(r) = \begin{cases} 1 , & r > R_1 \\ \dfrac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} , & r < R_1 \end{cases} \tag{6.4}$$

şeklinde dönüşüm yapılır (Buczko ve Bassani, 2006). Burada, m_1^* parçacığın çekirdek malzemesi içindeki etkin kütlesi, m_2^* ise kabuk malzemesi içindeki etkin kütlesidir, ε_1 çekirdek malzemesinin dielektrik sabiti, ε_2 ise kabuk malzemesinin dielektrik sabitidir. Aynı işlem, ligand ve varsa ikinci kabuk malzemesi için de yapılır.

Çizelge 6.1. Hesaplamalarda kullanılan malzeme parametreleri

Etkin Kütle Değerleri	CdSe	$m_e^* = 0,12$[1]	$m_h^* = 0,45$[1]
	CdTe	$m_e^* = 0,096$[1]	$m_h^* = 0,4$[1]
	CdS	$m_e^* = 0,2$[3]	$m_h^* = 0,7$[3]
	ZnTe	$m_e^* = 0,122$[3]	$m_h^* = 0,6$[3]
Sınırlandırma Potansiyelleri	CdSe-CdTe	$V_e = 0,42$[2]	$V_h = 0,57$[2]
	CdSe-CdS	$V_e = 0,32$[2]	$V_h = 0,42$[2]
	CdSe-ZnTe	$V_e = 1,22$[5]	$V_h = 0,7$[5]
	CdTe-CdS	$V_e = 0,1$[2]	$V_h = 0,99$[2]
	CdTe-ZnTe	$V_e = 1,1$[4]	$V_h = 0,4$[4]
Enerji bant aralıkları		E_g(CdSe) = 1,76[2]	
		E_g(CdTe) = 1,61[2]	
		E_g(CdS) = 2,50[2]	
		E_g(ZnTe) = 2,26[4]	
		E_g(ligand) = 8,0[1]	
Dielektrik Sabitleri		κ(CdSe) = 9,29[3]	
		κ(CdTe) = 10,4[3]	
		κ(CdS) = 8,73[3]	
		κ(ZnTe) = 10.3[3]	
		κ(ligand) = 2,0[1]	

[1] Tyrrell ve Smith, 2011
[2] Wei ve ark., 2000
[3] Madelung, 2004
[4] Chen, 2005
[5] Nanda ve ark., 2007

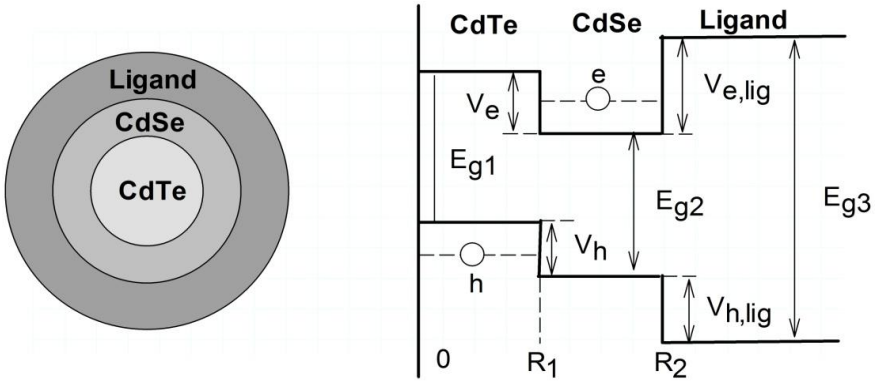
6.3. CdTe/CdSe Kuantum Nokta Heteroyapıda Ekziton ve İkili Ekzitonların Elektronik ve Optik Özellikleri

CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda, elektron CdSe'de, deşik ise CdTe'de hapsolmaktadır. Bu yapıya ait potansiyel profili Şekil 6.1' de gösterilmiştir.

Tip-II kuantum heteroyapılarda, taşıyıcılardan biri heteroyapıyı çevreleyen malzeme (ligand) ile doğrudan etkileşim durumundadır. Yani ligandın, potansiyel yüksekliği, elektron ve deşiğin bu malzeme içerisindeki etkin kütlesi ve dielektrik katsayısının farklılığı, yapının elektronik ve optik özelliklerini doğrudan etkilemektedir. Bu nedenle teorik çalışmalarda ligand etkisi hesaplara dahil edilmelidir.

CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda, elektron kabukta bulunduğundan dolayı ligand ile doğrudan etkileşmektedir. Şekil 6.2'de CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıdaki ekziton ve çift ekzitonların, ligandın içinde farklı elektron etkin kütle değerlerinde, kabuk kalınlığına göre toplam enerji değişimleri gösterilmektedir. CdTe/CdSe yapısı için a_0 değeri yaklaşık olarak 7,1 nm'dir. Bu yapıda elektron ligand ile doğrudan temas halinde olduğu için, ligandın içine doğru bir miktar nüfuz etmektedir. Bu yüzden elektronun ligand içindeki etkin kütlesi önemli olmaktadır.

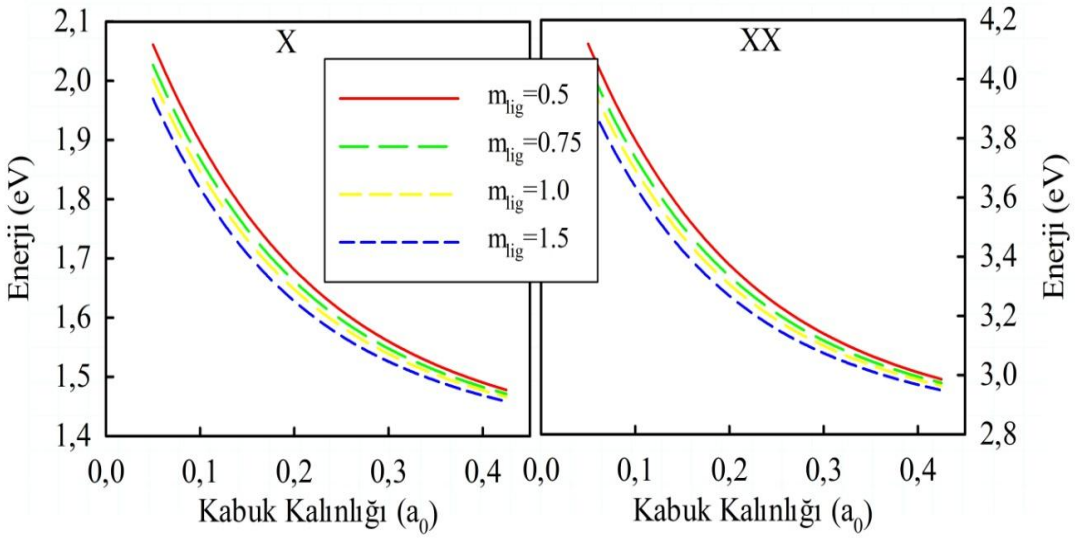
Şekil 6.2'den de görüldüğü üzere liganddaki elektronun etkin kütlesi arttıkça *X* ve *XX*'in toplam enerjilerinde azalma gözlemlenmiştir. Liganddaki elektronun etkin kütlesi 0.5 m_0'dan 1.5 m_0'a çıkarıldığında *X*'in toplam enerjisinde ~70 meV, *XX*'de ise ~180 meV değişim gözlemlenmiştir. Elektronun ligand içindeki etkin kütlesi arttıkça bu yapıda daha fazla enerji kaybedeceği için, yüksek etkin kütle değerine sahipken ekziton ve çift ekzitonun toplam enerjileri, düşük etkin kütle değerine sahip olduğu duruma göre daha az olmaktadır. Kabuk elektron için potansiyel kuyusu gibi davrandığı için, küçük



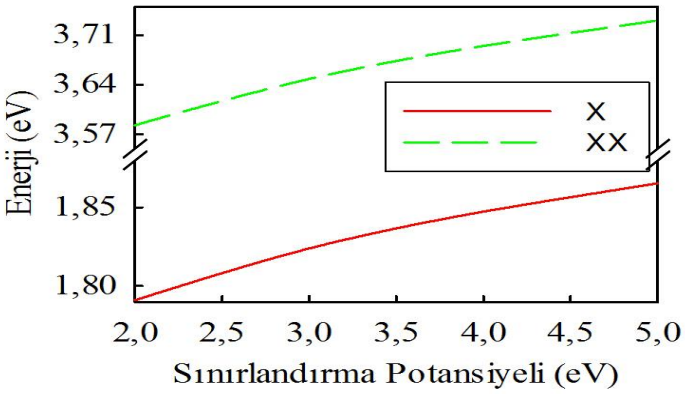
Şekil 6.1. CdTe/CdSe kuantum heteroyapı potansiyel profili.

kabuk kalınlıklarında elektronun enerjisi yüksek olacağından, ligandın içine daha fazla nüfuz edecektir. Bu yüzden küçük kabuk kalınlıklarında, elektronun ligand içindeki etkin kütlesi ekziton ve çift ekzitonun toplam enerjisini, büyük kabuk kalınlığına oranla daha fazla etkilemektedir. Şekil 6.2'de de görüldüğü gibi, küçük kabuk kalınlıklarında enerjiler arasındaki fark büyükken, kabuk kalınlığı arttırıldıkça bu fark giderek azalmaktadır.

Ligandın enerji band aralığı da *X* ve *XX*'in enerji değerlerini etkilemektedir. Şekil 6.3'de *X* ve *XX*'in toplam enerjilerinin ligandın enerji band aralığına bağlı değişimi gösterilmektedir. Bu yapıda ligand ile elektron direkt olarak etkileştiği için, ligandın elektrona uyguladığı potansiyel yüksekliğini değiştirmek, hesaplamalar için yeterli olacaktır. Çünkü, deşik ile ligand arasında kabuk olduğundan dolayı, ligand parametreleri deşiğin özelliklerinde önemsenmeyecek derecede az etkiye sahip olmaktadırlar. Ligandın elektrona uyguladığı potansiyel yüksekliği arttıkça, elektronun ligand içine nüfuz etmesi daha zorlaşacaktır. Elektron, ligand ile daha az etkileşeceğinden dolayı ligandda kaybettiği enerji miktarı azalacaktır. Yani elektron daha yüksek enerjili olacaktır. Sonuç olarak potansiyel yüksekliği arttıkça elektronun enerjisi artacağı için ekziton ve çift ekzitonun toplam enerjilerinde artış olacaktır. Şekilden de görüleceği üzere, elektron enerji band aralığı değişimi 2 eV'den 5 eV'ye çıkarıldığında, *X*'in toplam enerjisinde ~70 meV, *XX*'in toplam enerjisinde ise yaklaşık 140 meV kadar artışa sebep olmuştur.



Şekil 6.2. CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda *X* ve *XX* toplam enerjilerinin ligandın içinde farklı elektron etkin kütle değerlerinde kabuk kalınlığına göre değişimi.

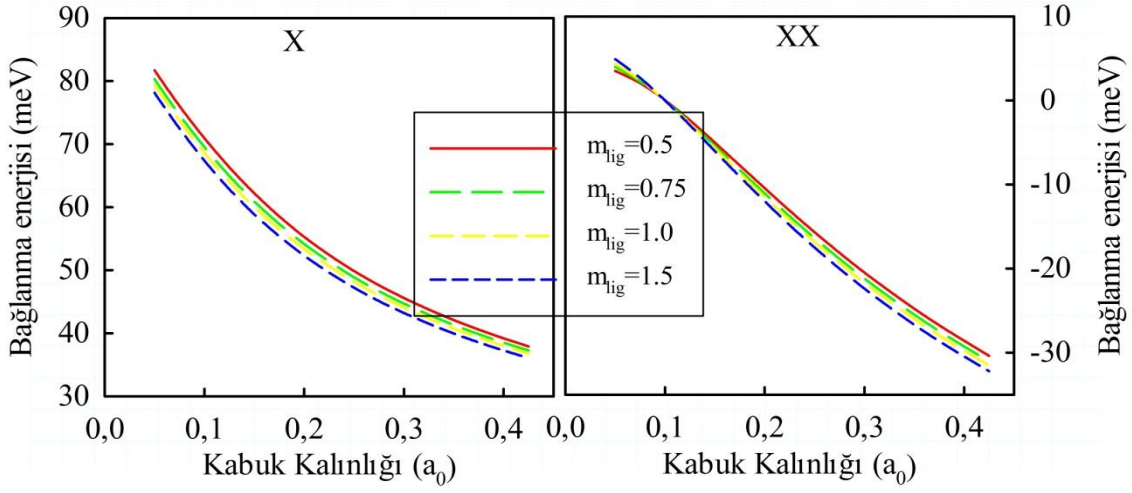


Şekil 6.3. CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda *X* ve *XX*'in toplam enerjilerinin ligandın elektron için sınırlandırma potansiyeline göre değişimi (Kabuk kalınlığı 0.1 a_0'da sabit tutulmuştur).

Şekil 6.4'de CdTe/CdSe yapısındaki *X* ve *XX*'in bağlanma enerjileri gösterilmektedir. Şekilden de görüldüğü gibi, *X* bağlanma enerjisi kabuk kalınlığı arttırıldıkça düşmektedir. *XX* bağlanma enerjisi ise kabuk kalınlığı 0.1 a_0 değerinin altında iken pozitiftir. Yani, ekziton-ekziton arasında çekici etkileşim vardır ve çift ekziton bağlı (bound biexciton) durumdadır. (Combescot ve Betbeder-Matibet, 2009). Kabuk kalınlığı 0.1 a_0 değerinin üzerine çıkarıldığında ise bağlanma enerjisi negatif olmaktadır. Yani ekziton-ekziton arasında itici bir etkileşim söz konusudur ve yapı, bağlı olmayan çift ekziton durumundadır (unbound biexciton). Toplam enerji grafiğinden de görüldüğü gibi elektronun ligand içindeki etkin kütlesi arttırıldıkça, *X* ve *XX*'in toplam enerjileri düşmektedir. Bunun neticesinde yüksek m_{lig} değerlerinde bağlanma enerjisi daha düşük olmaktadır.

Şekil 6.5'te CdTe/CdSe kuantum noktalarında *X* ve *XX* soğurma dalga boylarının kabuk kalınlığına göre değişimi görülmektedir. Kabuk kalınlığı arttırıldıkça *X ve XX*'in toplam enerjileri düşeceği için, soğurma dalga boylarında, enerji ile ters orantılı olduğundan, artış olmaktadır. Genel anlamda tip-II heteroyapılarda soğurma dalga boylarında enerji band aralığına göre kırmızıya kayma söz konusudur (yani enerji azalmaktadır).

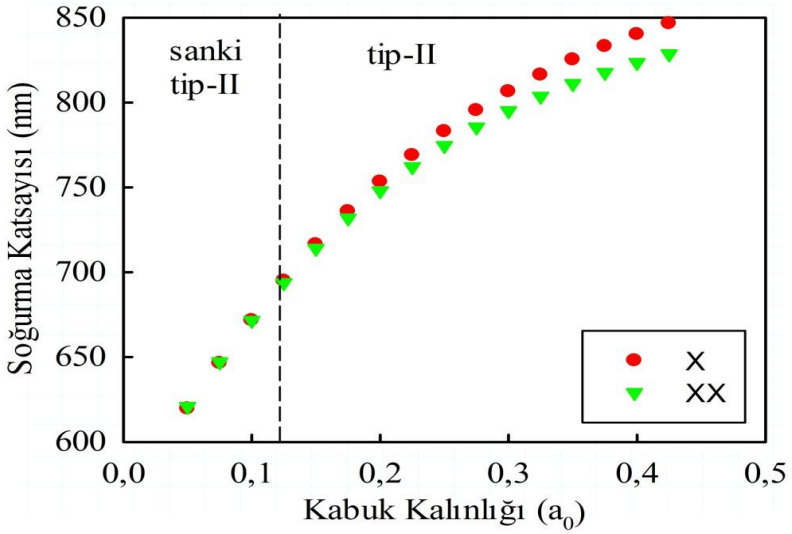
XX durumunda ise, eğer bağlı durumda çift ekzitondan söz ediliyorsa, soğurma dalga boyunda *X* soğurma dalga boyuna göre kırmızıya kayma, eğer bağlı olmayan durumdaki çift ekzitondan söz ediliyorsa maviye kayma beklenmektedir (Oron ve ark., 2007). Şekil 6.5'te görüldüğü üzere, yapının sanki tip-II özelliği sergilediği bölgede *XX* soğurma dalga boyunda *X* soğurma dalga boyuna göre kırmızıya kayma (çift ekziton bağlı durumda), tip-II özelliği gösterdiği bölgede ise maviye kayma gözlenmiştir.



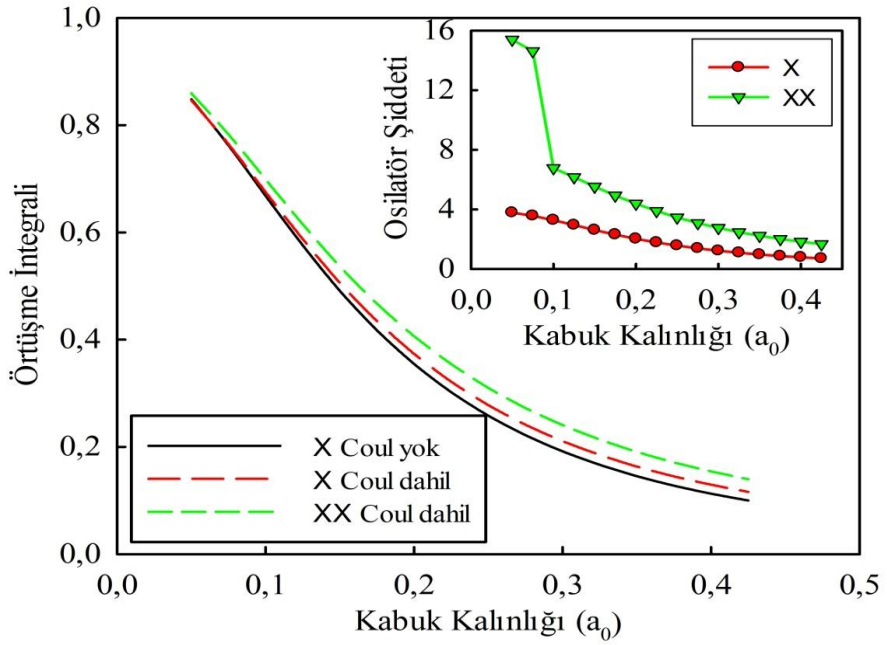
Şekil 6.4. Farklı ligand etkin kütle değerlerinde, *X* ve *XX* bağlanma enerjilerinin kabuk kalınlığına göre değişimi.

Tip-II heteroyapılarda, örtüşme integralinin, taşıyıcıların uzaysal ayrışmasından dolayı düşük olması, buna bağlı olarak hayat sürelerinin daha uzun olması beklenmektedir. Özellikle tip-II heteroyapılarda bulunan *XX*'in yaşam sürelerinin, tip-I heteroyapılarda bulunan *XX*'e göre çok daha uzun olması beklenir. Bunun nedeni ise uzaysal ayrışmadan dolayı *XX* durumunda ekziton-ekziton arasındaki etkileşimin itici olmasıdır.

Şekil 6.6'da CdTe/CdSe KNH'de, *X* ve *XX* yapılarında elektron ve deşik arasındaki örtüşme integralleri ve osilatör şiddetleri verilmiştir. Grafikten de görüldüğü



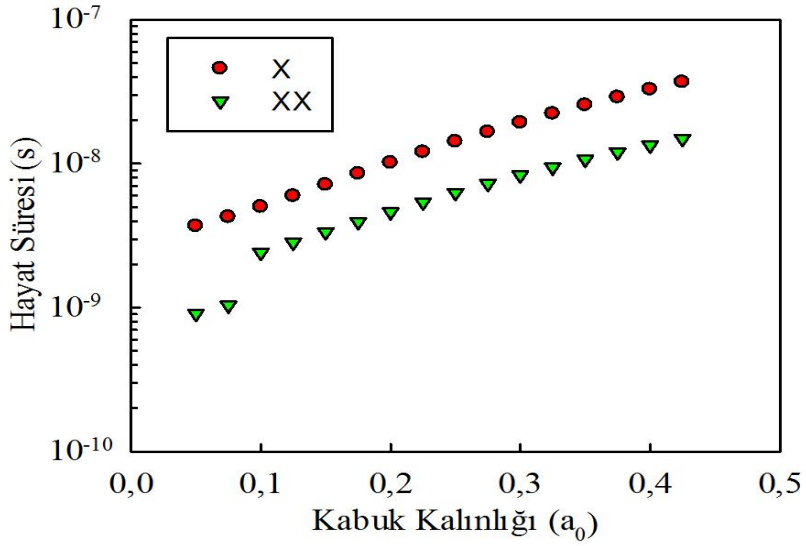
Şekil 6.5. CdTe/CdSe kuantum nano heteroyapıda *X* ve *XX* soğurma dalga boyunun kabuk kalınlına göre değişimi.



Şekil 6.6. CdTe/CdSe yapısında *X* ve *XX* örtüşme integrallerinin Coulomb etkileşimi dahil değilken ve dahil olduğu durumda kabuk kalınlığına göre değişimi, iç grafikte *X* ve *XX*'in osilatör şiddetlerinin kabuk kalınlığına göre değişimi görülmektedir.

gibi kabuk kalınlığı arttırıldıkça, elektron ve deşik arasındaki örtüşme integrallerinde ciddi bir düşüş gözlemlenmektedir.

Taşıyıcılar arası çekici ve itici Coulomb etkileşiminin dalga fonksiyonlarına yansıtılması, örtüşme integrallerinde bir miktar değişime sebep olmaktadır. Şekil 6.6'da görüldüğü gibi Coulomb etkileşimi dahil edildiğinde *X* örtüşme integrali değerlerinde artış olmaktadır. Bunun nedeni, *X* durumunda elektron ve deşik arasında çekici Coulomb etkileşmesinden dolayı parçacıkların konumsal olarak birbirlerine doğru yaklaşmasıdır. Bir diğer etken ise Bölüm 5.4'de söz edilen görüntü yük etkisidir. CdTe/CdSe heteroyapıda $\varepsilon_{CdTe}>\varepsilon_{CdSe}>\varepsilon_{ligand}$ olduğundan dolayı, elektron için CdTe'de görüntü yüklerin oluşturduğu potansiyel çekici, ligand bölgesinde ise itici olmaktadır. Deşik için ise CdSe'de oluşan görüntü potansiyel itici olmaktadır. Bunun neticesinde elektronlar çekirdek bölgesine doğru itilmeye zorlanmaktadır ve dolayısıyla örtüşme integralleri artmaktadır. Aynı sebeple *XX* örtüşme integralleri, X örtüşme integrallerinden daha yüksek olmaktadır. Yaygın olarak kullanılan pertürbasyon hesaplarında dalga fonksiyonlarına bu etkileri dahil etmek ağır yük getireceği için, itici ve çekici Coulomb etkileri dalga fonksiyonlarına yansıtılamamaktadır. Bu etkiler sadece toplam enerjiye dahil edilmektedir. Bunun sonucunda, birbiriyle etkileşmeyen elektron



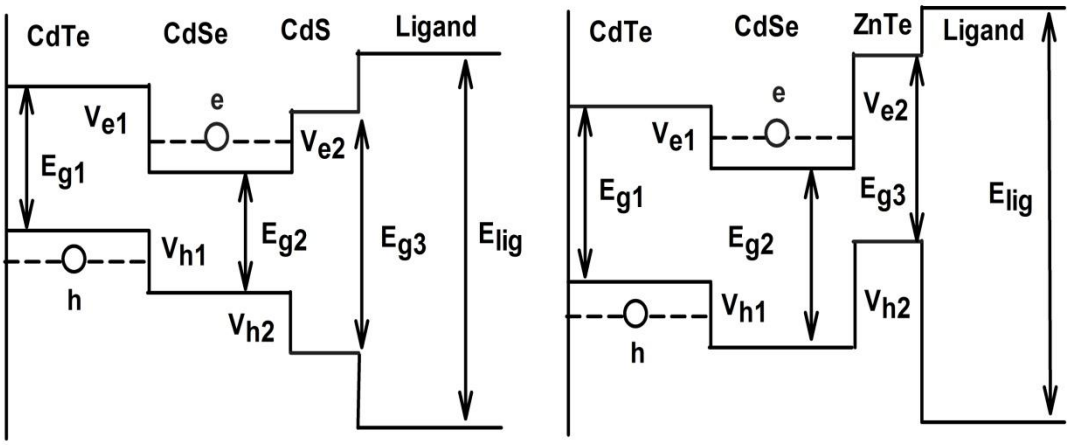
Şekil 6.7. CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapıda, X ve XX hayat sürelerinin kabuk kalınlığına göre değişimi.

ve deşiğin örtüşme integrali ile, ekziton ve çift ekziton durumundaki elektron ve deşiğin örtüşme integralleri aynı olmaktadır (Piryatinski ve ark, 2007).

Şekil 6.7'de *X* ve *XX*'in yaşam sürelerinin kabuk kalınlığına göre değişimi gösterilmektedir. Grafikten de görüldüğü gibi, kabuk kalınlığı arttırıldıkça hayat sürelerinde uzama gözlemlenmiştir. Kabuk kalınlığı arttırıldıkça elektron ve deşik arasındaki uzaysal ayrışmanın artmasından dolayı, örtüşme integralleri ciddi anlamda küçülmektedir. Bu da hayat sürelerinde ciddi anlamda artışa sebep olmaktadır. Çift ekziton durumunda, kabuk kalınlığı 0.1 a_0'ın altında iken yapı bağlı olan çift ekziton durumunda olduğu için, dördüncü bölümde bahsedilen geçiş olasılığından dolayı, hayat süresi bağlı olmayan çift ekziton durumuna göre daha düşük olmaktadır. Tip-II kuantum nokta heteroyapılarda *X* ve *XX* hayat sürelerinin, tip-I heteroyapılardaki *X* ve *XX* yaşam sürelerine göre daha uzun olduğu hesaplanmıştır. Bu ise literatürle uyumlu bir sonuçtur. (Oron ve ark., 2007)

6.4. Kuantum Noktası ile Ligand Arasına Konulan Farklı Malzemenin Etkileri

Tip-II kuantum nokta heteroyapılarda, Bölüm 6.3'de de bahsedildiği gibi ligand, yapının elektronik ve optik özelliklerini önemli ölçüde etkilemektedir. Özellikle elektronun kabukta bulunduğu CdTe/CdSe gibi yapılarda, ligandın etkisi daha fazla olmaktadır. Bunun nedeni, elektronun yüksek enerjisinden dolayı ligand içerisine doğru daha fazla tünelleme yapmasıdır. Taşıyıcıların heteroyapı dışına doğru tünelleme

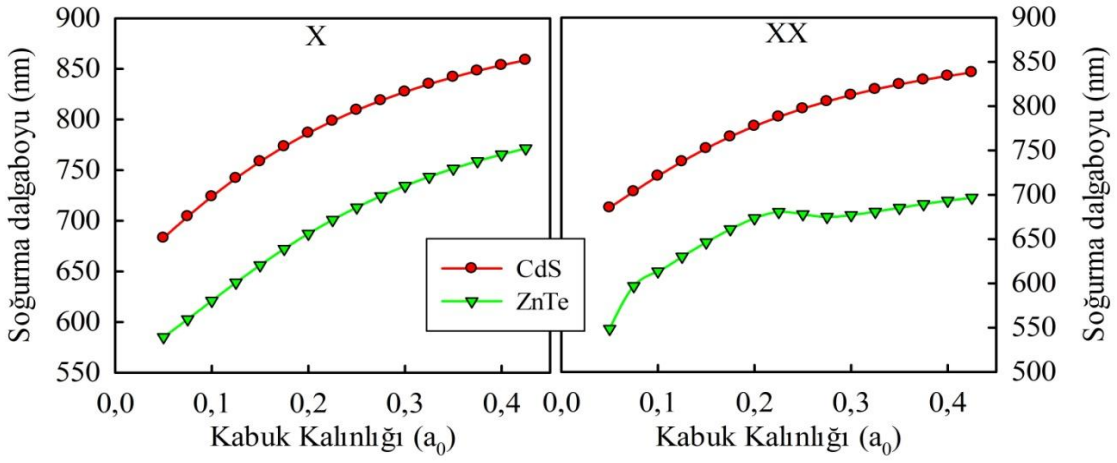


Şekil 6.8. CdTe/CdSe/CdS (sol) ve CdTe/CdSe/ZnTe (sağ) potansiyel profilleri.

yapması, özellikle fotolüminesans kuantum verimliliğinde düşüşe sebep olmaktadır. Kim ve ark. (2003), CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapısının üzerine ZnTe tabakası büyüterek kuantum verimliliğini arttırmışlardır.

Bu bölümde, CdTe/CdSe kuantum nokta ile ligand arasına tampon bölge eklenerek *X* ve *XX*'in elektronik ve optik özellikleri incelenmiştir. Tampon bölge için CdS ve ZnTe malzemeler kullanılmıştır. Şekil 6.8'de CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe yapılarının potansiyel profilleri gösterilmektedir. Bu yapılar için kullanılan malzeme parametreleri Çizelge 6.1'de verilmiştir. CdS ve ZnTe tabaka kalınlıkları 0.1 a_0'da sabit tutulmuştur.

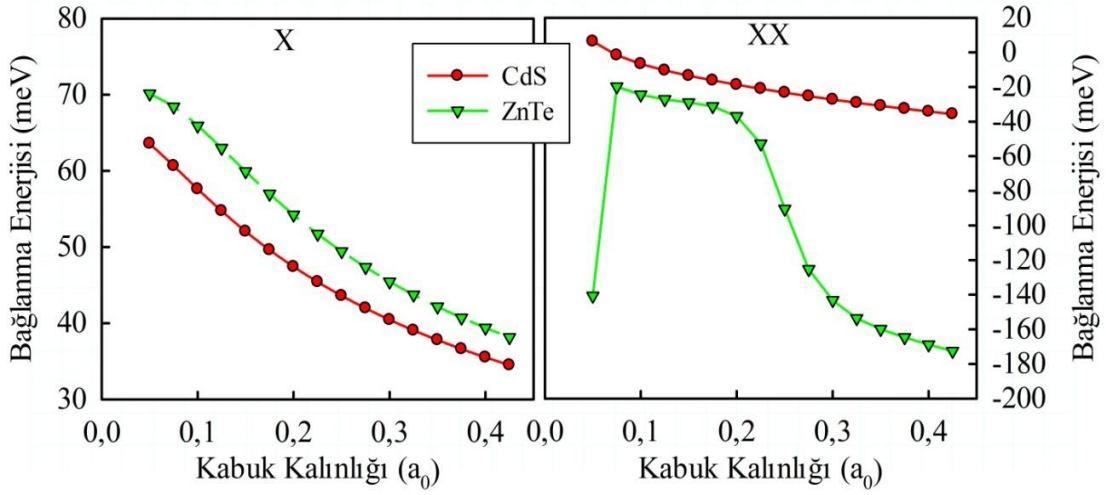
Şekil 6.9'da CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe kuantum nokta heteroyapılarda *X* ve *XX* soğurma dalga boyunun CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi



Şekil 6.9. CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe kuantum nokta heteroyapılarda *X* ve *XX* soğurma dalga boyunun CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi.

gösterilmektedir. CdS için elektron sınırlandırma potansiyeli CdTe'nin elektron sınırlandırma potansiyelinden düşük olduğu için elektron CdS içerisinde rahatlıkla tünelleme yapabilmektedir. Bunun neticesinde elektron enerjisinde azalmalar olması sebebiyle *X* ve *XX*'in toplam enerjilerinde, tampon bölge olmayan duruma göre düşüş gözlenmiştir. Fakat ZnTe'nin elektron sınırlandırma potansiyeli daha yüksek olduğu için, elektronu çekirdek bölgesine doğru lokalize olmaya zorlamaktadır. Dolayısıyla tampon bölgesinin ZnTe olması durumunda, *X* ve *XX* toplam enerji değerlerinde ciddi anlamda artış gözlenmiştir. CdTe/CdSe/ZnTe kuantum nokta heteroyapıda, kabuk kalınlığı 0,225 a_0 değerinin üstüne çıkarıldığında, *XX* dalga boyunda bir miktar küçülme gözlenmiştir.

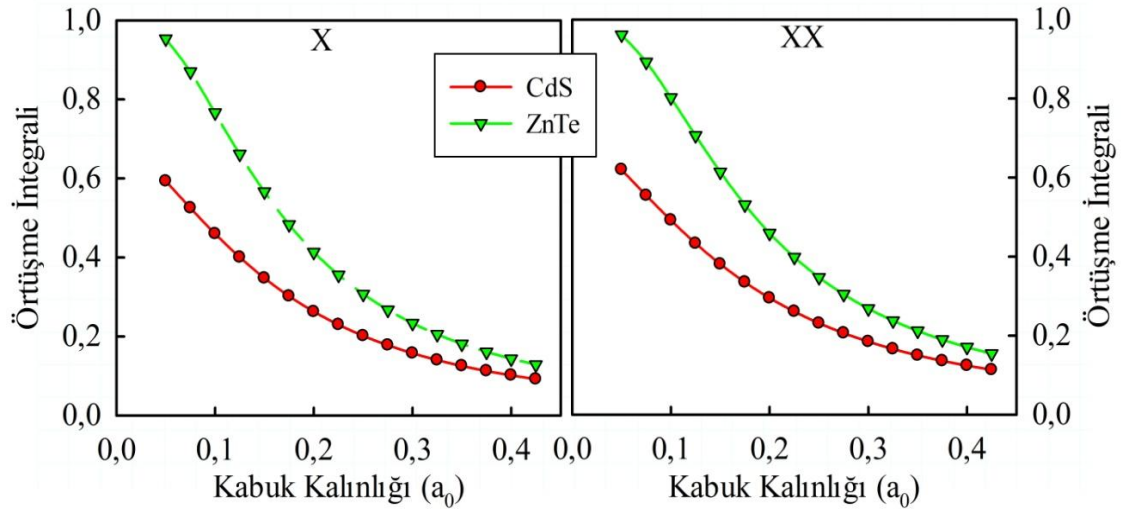
Şekil 6.10'da, CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe kuantum nokta heteroyapılarda, *X* ve *XX* bağlanma enerjilerinin kabuk kalınlığına (CdSe) göre değişimi verilmiştir. *X* durumunda, ZnTe'nin tampon bölge olarak kullanıldığı yapıda bağlanma enerjisi, CdS'nin tampon bölge olarak kullanıldığı duruma göre daha yüksek olduğu görülmüştür. Yine *XX* durumunda, CdS kaplamasının olduğu durumda, kabuk kalınlığının 0.1 a_0'ın altında olduğu değerlerde bağlanma enerjisi pozitif (bağlı çift ekziton), kabuk kalınlığı 0.1 a_0'ın üstünde olduğu durumlarda ise negatif (bağlı olmayan çift ekziton) olduğu gözlemlendi. CdTe/CdSe/ZnTe yapısında ise *XX* bağlanma enerjisi 0.05 a_0 değerinde ~ -140 meV olarak hesaplanmıştır. Bu durum, ZnTe deşik sınırlandırma potansiyelinin düşük olmasından dolayı kabuk kalınlığının çok küçük olduğu durumlarda, deşik yoğunluğunun bir kısmının ZnTe tabakasına kaymasından



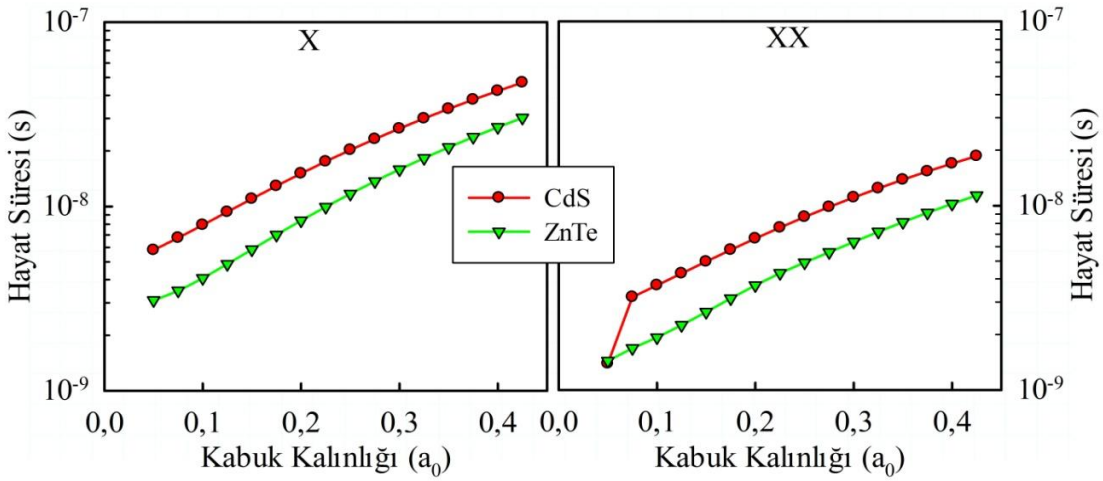
Şekil 6.10. CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de *X* ve *XX* bağlanma enerjilerinin CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi.

kaynaklanmaktadır. Şekil 6.10'da görüldüğü gibi, kabuk kalınlığının 0.075 a_0'dan 0.225 a_0'a kadar olduğu durumda, *XX*'in bağlanma enerjisinde negatif yönde bir azalma ve 0.225 a_0'ın üzerinde olduğu durumlarda ise negatif yönde ani bir artış meydana gelmektedir. Kabuk kalınlığının 0.075 a_0 ile 0.225 a_0 arasında olduğu değerlerde elektron yoğunluğu CdTe/CdSe'nin tamamına yayılırken (sanki tip-II rejimi), 0.225 a_0'ın üstünde olduğu durumlarda ise elektron yoğunluğu daha çok CdSe katmanına kaymaktadır. Bunun neticesinde, uzaysal ayrışmanın artmasından dolayı, ekziton-ekziton arasındaki itici etkileşmenin ani artması, bağlanma enerjisindeki negatif yönlü bu artışa sebep olmaktadır. Bu durum Şekil. 6.9'da *XX* soğurma dalga boyundaki 0.225 a_0 civarında görülen azalmayı da açıklamaktadır.

Şekil 6.11'de CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de, *X* ve *XX*'in örtüşme integralinin, CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi gösterilmiştir. CdTe/CdSe/CdS KNH'de, elektron yoğunluğunun CdS tabakasına kaymasından dolayı, taşıyıcıların uzaysal ayrımı yüksek olmaktadır. Bu yüzden CdSe tabakasının çok ince olduğu durumlarda dahi örtüşme integrali küçük değerler almaktadır. Yaptığımız hesaplamalarda CdSe tabaka kalınlığı 0,05 a_0'da iken *X* ve *XX* örtüşme integrali ~ 0,6 değerini almıştır. CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de ise, ZnTe tabakasının elektron sınırlandırma potansiyelinin CdTe elektron sınırlandırma potansiyelinden yüksek olması, küçük CdSe tabaka kalınlıklarında, elektronu çekirdek bölgesinde lokalize olmaya zorlamakta ve örtüşme integralinin yüksek olmasına sebep olmaktadır. Diğer



Şekil 6.11. CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de *X* ve *XX* örtüşme integralinin CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi.



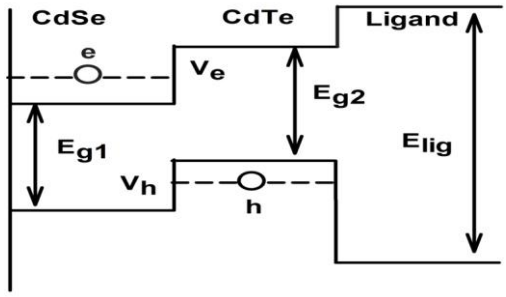
Şekil 6.12. CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de *X* ve *XX* hayat süresinin CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi.

taraftan, CdSe tabaka kalınlığı arttırıldığında, görüntü yüklerin oluşturduğu potansiyelin de etkisiyle örtüşme integrali değerlerinde hızlı bir düşüş gözlemlenmektedir.

Şekil 6.12'de CdTe/CdSe/CdS ve CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de *X* ve *XX* hayat sürelerinin CdSe tabaka kalınlığına göre değişimi verilmiştir. Beklendiği üzere CdTe/CdSe/CdS KNH'de düşük *X* ve *XX* örtüşme integrali ve enerjisi sebebiyle, *X* ve *XX* hayat süresi, CdTe/CdSe/ZnTe KNH'de bulunan *X* ve *XX* hayat sürelerine göre daha uzun olmaktadır. Her iki yapıda da CdSe tabaka kalınlığı arttırıldıkça, hayat sürelerinde kritik artışlar gözlenmiştir.

6.5. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS ve CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de X, X^+, X^- ve XX'in Elektronik ve Optik Özellikleri

Tip-II KNH'nin ilginç bir özelliğide, heteroyapıyı oluşturan malzemelerin yerini değiştirerek, elektronik ve optik özelliklerinde değişiklik yapılabilmesidir. Tip-II KNH

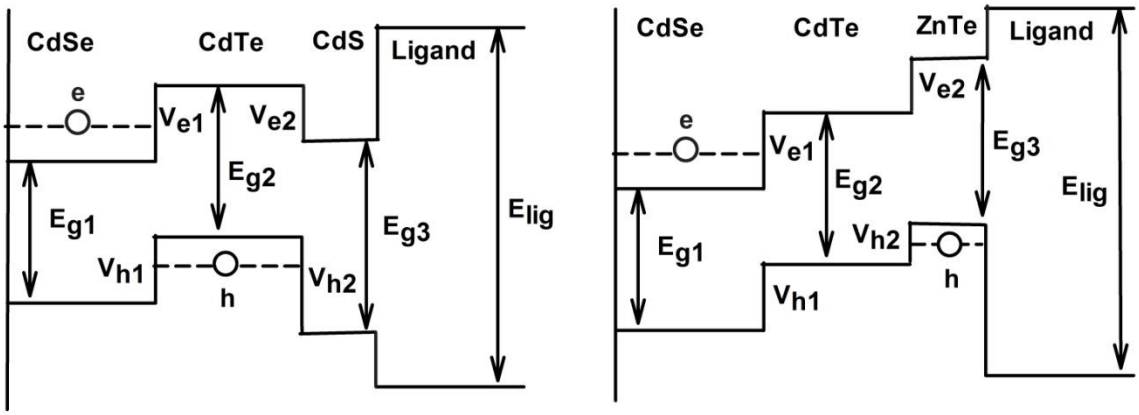


Şekil 6.13. CdSe/CdTe KNH'nin potansiyel profilinin şematik gösterimi.

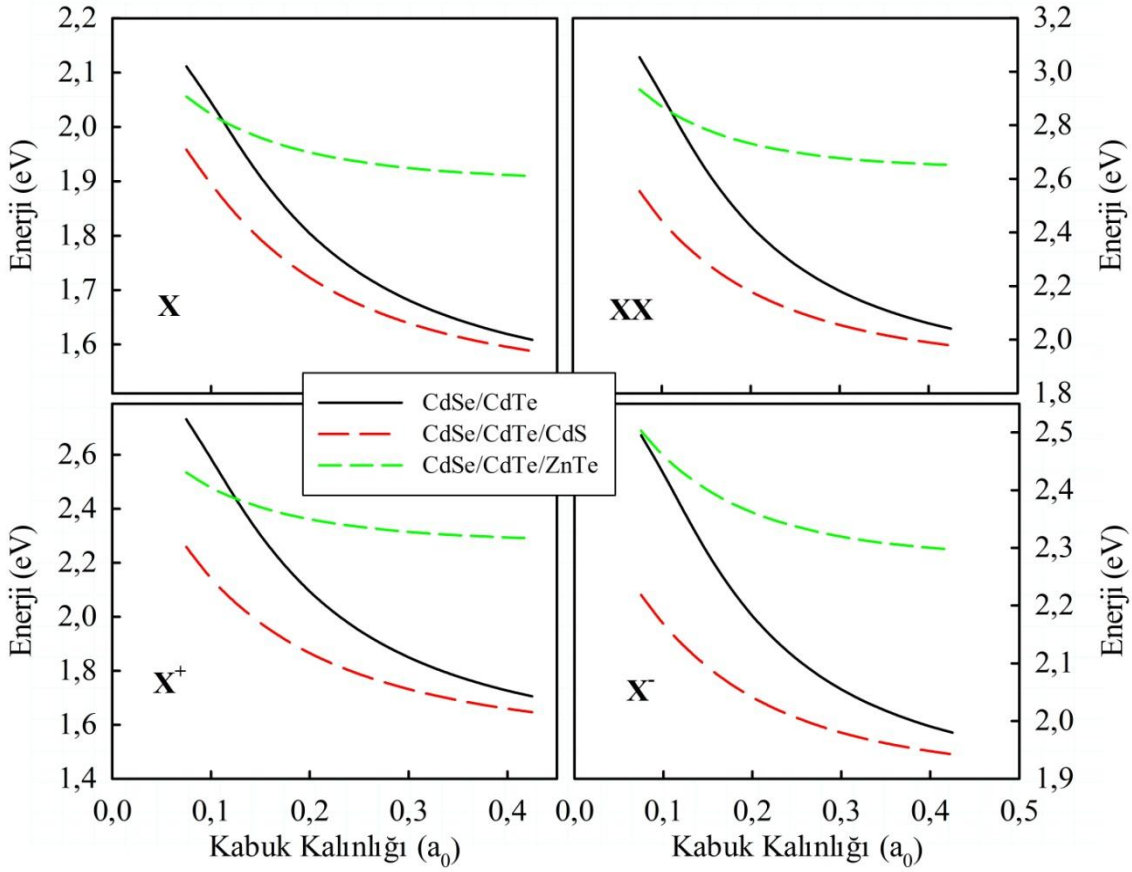
olarak kullandığımız CdTe/CdSe yapısında, CdSe ve CdTe'nin yerini değiştirerek elektronun çekirdekte, deşiğin ise kabukta lokalize olması sağlanabilmektedir. Bunun neticesinde oluşan yeni yapının elektronik ve optik özellikleri, eski yapının elektronik ve optik özelliklerinden büyük ölçüde farklı olabilmektedir. Şekil 6.13'de CdSe/CdTe yapısının potansiyel profillerinin şematik gösterimi verilmiştir.

Bu bölümde, CdSe/CdTe KNH ve bu yapı ile ligand arasına üçüncü bir tampon bölgesi konularak elde edilen yapılardaki *X*, X^+, X^- ve *XX*'in elektronik ve optik özelliklerindeki değişimler incelenmiştir. Bunun için yine CdS ve ZnTe, tampon malzemesi olarak kullanılmıştır. Şekil 6.14'de CdSe/CdTe/CdS ve CdSe/CdTe/ZnTe KNH'nin potansiyel profillerinin şematik gösterimi verilmiştir. Şekilden de görüldüğü üzere CdSe/CdTe/CdS KNH'de elektron CdSe içerisinde, deşik ise CdTe içerisinde lokalize olması beklenirken, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de ise, elektronun CdSe'de, deşiğin ise ZnTe'de lokalize olması beklenir. Bunun neticesinde CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de taşıyıcılar arasındaki uzaysal fark daha büyük olduğu için örtüşme integrallerinin daha düşük olması beklenir.

Şekil 6.15'de, CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X*, X^+, X^- ve *XX* toplam enerjilerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri gösterilmiştir. CdSe/CdTe ve CdSe/CdTe/CdS KNH'de dört yapınında toplam enerjilerinde, artan CdTe tabaka kalınlığı ile önemli bir azalma hesaplanmıştır. Oysaki elektron, çekirdekte lokalize olduğu için ve çekirdek yarıçapı değiştirilmediği için CdSe/CdTe KNH'de bulunan *X*, X^+, X^- ve *XX*'in toplam enerjilerinde önemli bir azalma olmaması gerekmektedir. Fakat, CdSe dielektrik sabitinin CdTe dielektrik sabitinden küçük olması, elektronun görüntü potansiyelinin çekici etki yapmasına sebep olmakta ve



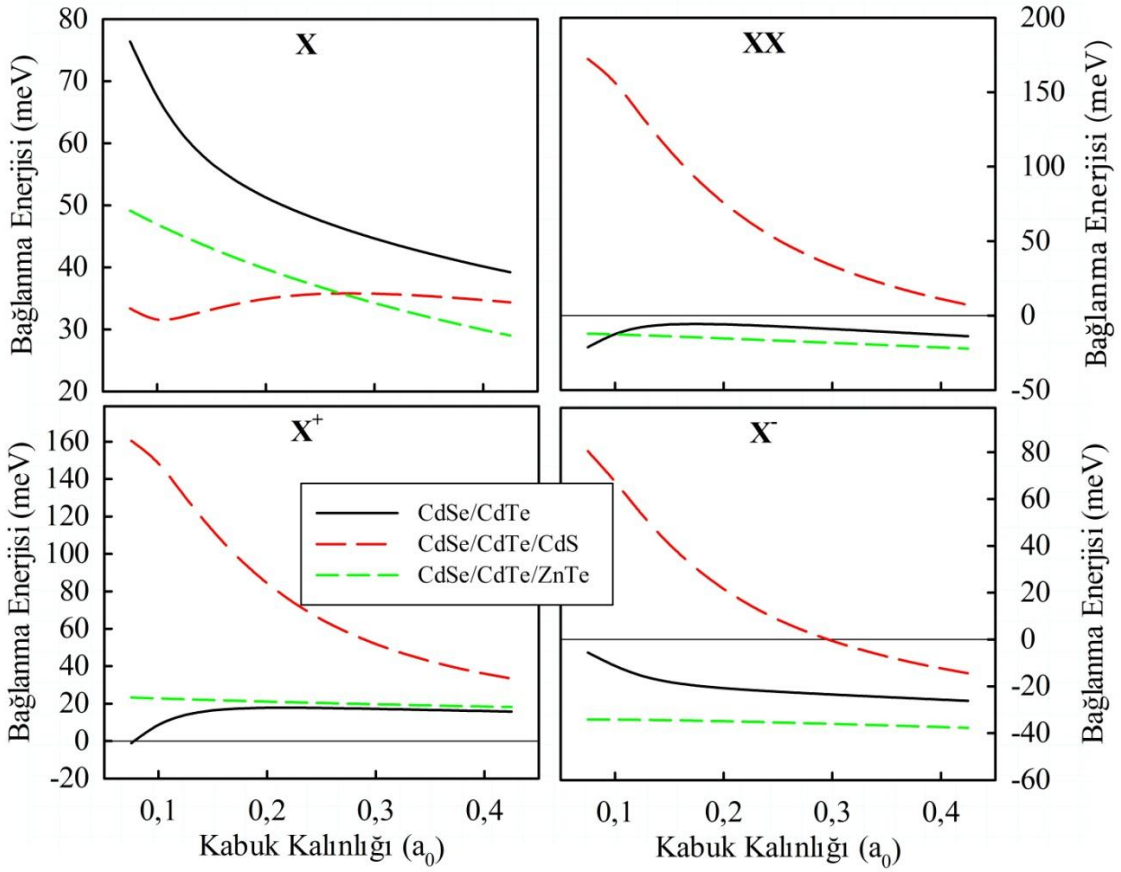
Şekil 6.14. CdSe/CdTe KNH'nin potansiyel profilinin şematik gösterimi.



Şekil 6.15. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X*, *XX*, X^+ ve X^- toplam enerjilerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri.

elektronu liganda doğru lokalize olmaya zorlamaktadır. Elektronun enerjisi zaten yüksek olduğu için CdTe'nin içine rahatça nüfuz edebilmekte ve yapının tamamında lokalize olmaktadır. Bunun neticesinde, elektron enerjsinde de, CdTe tabaka kalınlığının artması ile bir azalma olmaktadır. Bu da toplam enerjide ciddi azalmalara sebep olmaktadır. CdSe/CdTe/CdS KNH'de de lokalizasyon rejimi aynı olduğu için, *X*, X^+, X^- ve *XX* toplam enerjilerinde benzer azalma görülmektedir. Fakat CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de, deşik ZnTe'de lokalize olduğu için, CdTe tabaka kalınlığının değişimi her iki parçacığında enerjisinde ciddi değişimlere sebep olmamaktadır. Bunun neticesinde, bu yapıdaki *X*, X^+, X^- ve *XX*'in toplam enerjilerinde daha yavaş bir azalma meydana gelmektedir. X^+ ile *X*, X^- ile *XX* toplam enerjilerindeki değişimler benzer davranışlar sergilemektedir.

Şekil 6.16'da CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X*, X^+, X^- ve *XX* bağlanma enerjilerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri gösterilmiştir. *X* bağlanma enerjisi, CdSe/CdTe kuantum nokta heteroyapıda CdTe tabaka kalınlığı

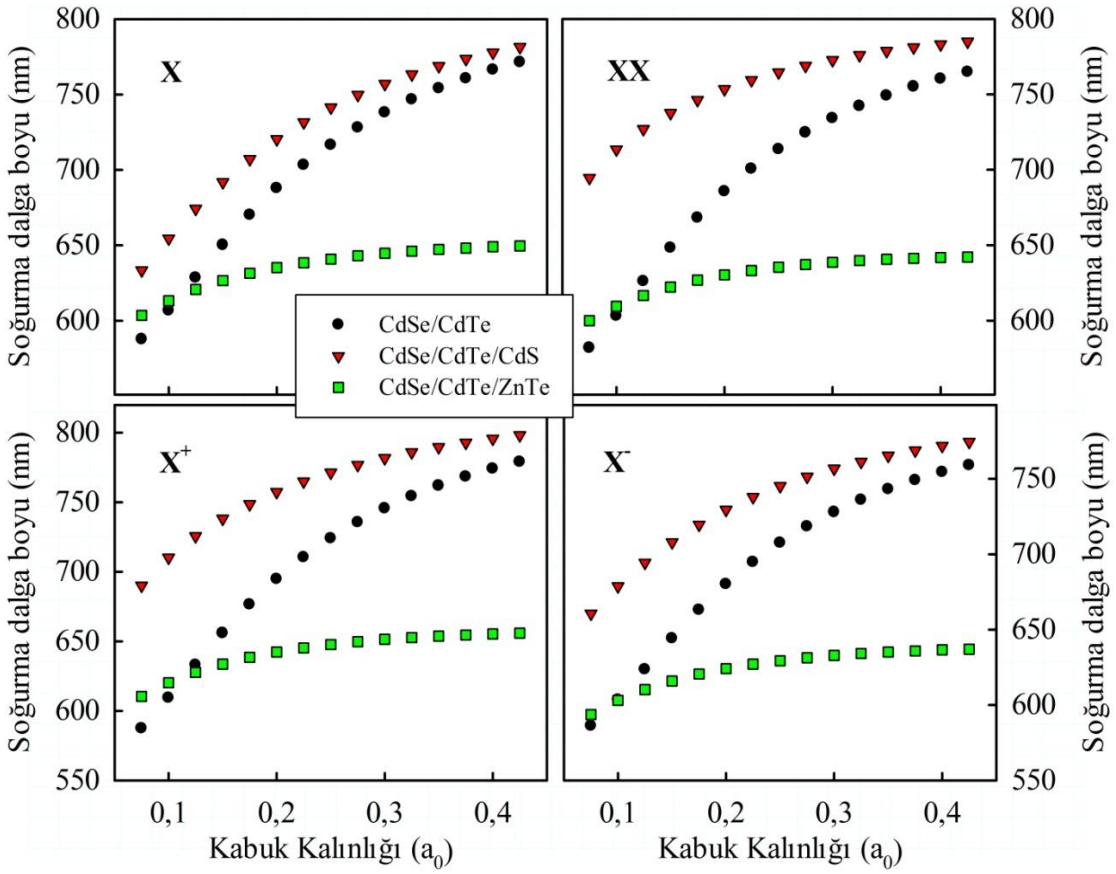


Şekil 6.16. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X, XX*, X^+ ve X^- bağlanma enerjilerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri.

arttırıldıkça azalmaktadır. CdSe/CdTe/ZnTe yapısında ise *X* bağlanma enerjisi neredeyse lineer olarak azalmıştır. CdSe/CdTe/CdS yapısında ise, CdTe tabaka kalınlığının 0.075 a_0 olması durumunda ~34 meV olarak hesaplanmıştır. CdTe tabaka kalınlığı arttırıldıkça, *X* bağlanma enerjisi önce belli bir kalınlığa kadar hafifçe artmış, daha sonra düşmeye başlamıştır.

XX bağlanma enerjisi, CdSe/CdTe ve CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de negatiftir. Yani ekziton-ekziton arasında itici etkileşim mevcuttur. CdSe/CdTe/CdS KNH'de ise *XX* bağlanma enerjisi pozitif hesaplanmıştır. X^+ bağlanma enerjisi her üç yapıda da pozitiftir. X^- bağlanma enerjisi ise CdSe/CdTe/CdS KNH'de, CdTe tabaka kalınlığı 0.3 a_0'a kadar iken pozitif, daha yukarı değerlerde ise negatif hesaplanmıştır. Diğer iki yapıda ise X^- bağlanma enerjisi negatif hesaplanmıştır. CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de, X^+, X^- ve *XX* bağlanma enerjileri CdTe tabaka kalınlığından neredeyse hiç etkilenmemektedir.

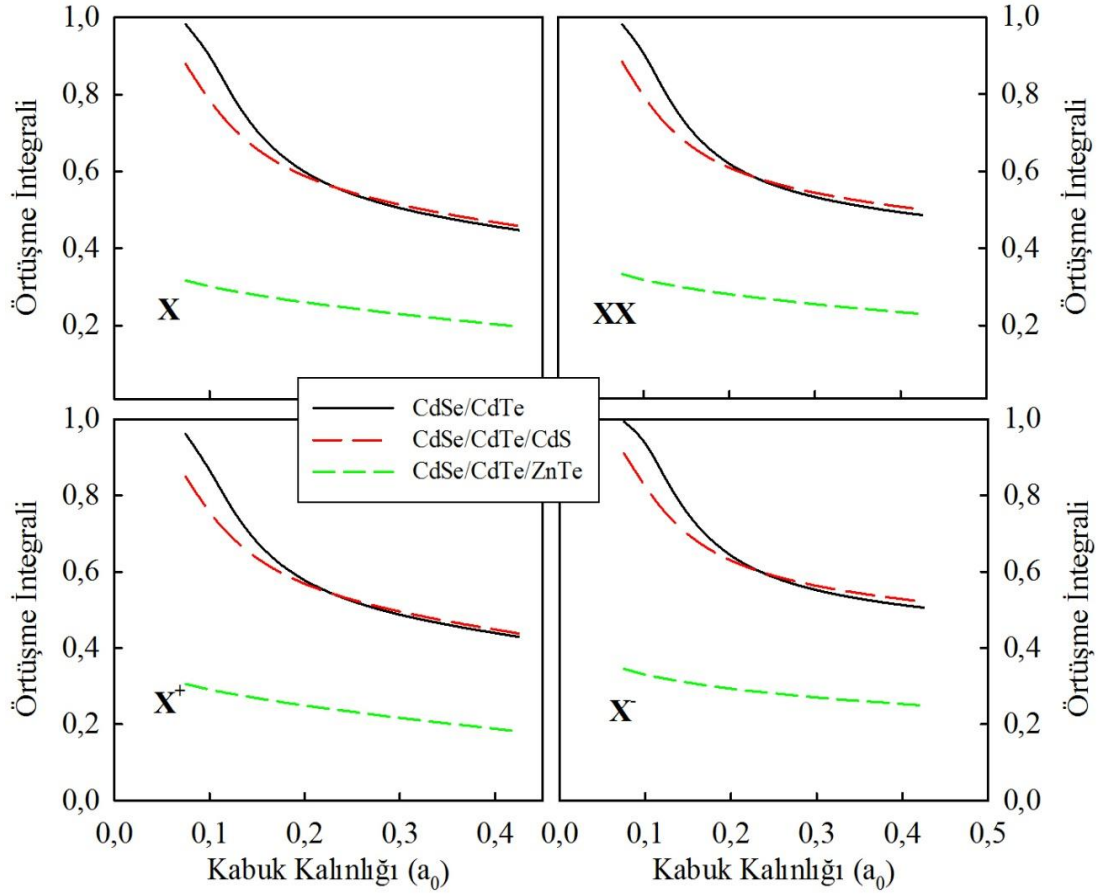
Şekil 6.17'de *X, XX*, X^+ ve X^- soğurma dalga boyunun, üç farklı KNH'de CdTe tabaka kalınlığına göre değişimi verilmiştir. Grafiklerden de görüldüğü üzere,



Şekil 6.17. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X, XX*, X^+ ve X^- soğurma dalga boylarının CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri

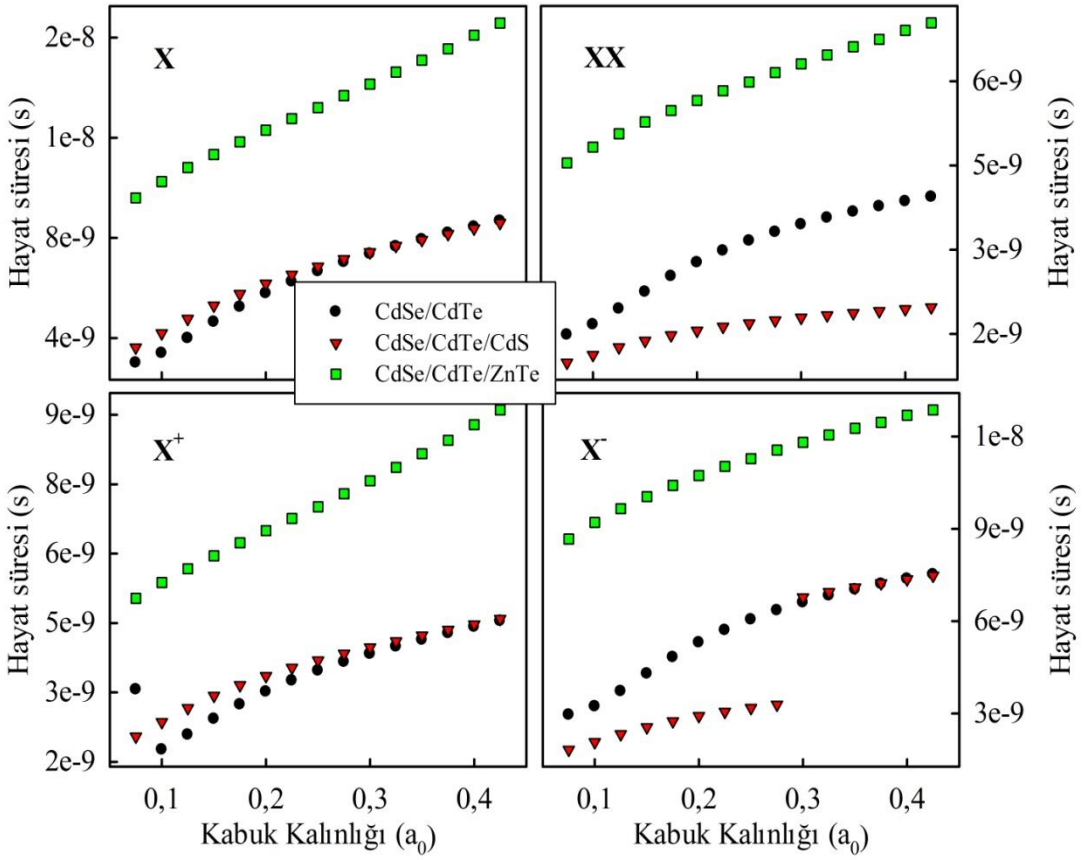
CdSe/CdTe ve CdSe/CdTe/CdS KNH'de her bir yapıdaki soğurma dalga boylarının CdTe tabaka kalınlığına sıkı bir şekilde bağlı oldukları hesaplanmıştır. Fakat CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de, CdTe tabaka kalınlığının baskın olmadığı gözlenmiştir. CdTe tabaka kalınlığı 0,075 a_0'dan 0,425 a_0'a çıkarıldığında *X*'in soğurma dalga boyu ~605 nm'den ~645 nm'ye çıkmıştır. Diğer yapılarda ise bu değişim daha az olmaktadır. Bunun nedeni, daha önce de bahsedildiği gibi, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de elektron CdSe'de ve deşik ZnTe'de bulunduğu için, CdTe tabaka kalınlığından elektron ve deşik enerjilerinin pek fazla etkilenmemesidir.

Şekil 6.18'de, CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de, *X*, *XX*, X^+ ve X^- örtüşme integrallerinin, CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri verilmiştir. Grafiklerde görüldüğü üzere, elektronun çekirdekte bulunduğu malzemelerde, CdTe tabaka kalınlığının değişimi örtüşme integrallerini, elektronun kabukta olduğu durumdakine göre, daha az etkilemektedir. CdSe/CdTe/ZnTe yapısında ise, elektron ZnTe malzemesinde lokalize olduğu için, uzaysal ayrışma diğer iki yapıya oranla daha fazladır. Bunun neticesinde elektron ve örtüşme integrali çok küçük olmaktadır.



Şekil 6.18. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X, XX,* X^+ ve X^- örtüşme integrallerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri.

Şekil 6.19'da, CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de, *X, XX,* X^+ ve X^- hayat sürelerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri verilmiştir. Ekzitonun hayat süresi, ZnTe kaplamanın kullanıldığı yapıda en büyük değerlerini almaktadır. Bunun nedeni, bu yapıda deşik ZnTe'de hapsolduğu için, yüklerin uzaysal ayrışımının yüksek olmasıdır. CdS kaplamasının kullanıldığı yapı ile, herhangi bir kaplamanın kullanılmadığı yapıda ise hayat süreleri birbirine çok yakın değerler almaktadır. CdSe/CdTe/CdS yapısında, CdS'nin elektron için olan potansiyel yüksekliği çok küçük olduğu için, elektron bu yapıdan neredeyse hiç etkilenmemektedir. Bunun neticesinde, ekzitonun hayat süresi herhangi bir kaplamanın olmadığı yapıdaki ekzitonla aynı olmaktadır. Çift ekziton yapısında, yine uzaysal ayrışmanın büyük olması ve çift ekzitonun bağlı olmayan durumda olmasından dolayı, CdSe/CdTe/ZnTe yapısında hayat süresi en yüksek olmaktadır. CdSe/CdTe/CdS yapısında bulunan çift ekziton bağlı durumda olduğu için, hayat süresi CdSe/CdTe yapısında bulunan çift ekzitonun hayat süresine göre daha kısa olmaktadır. Pozitif yüklü ekzitonda, en uzun hayat süresi yine



Şekil 6.19. CdSe/CdTe, CdSe/CdTe/CdS, CdSe/CdTe/ZnTe KNH'de *X, XX,* X^+ ve X^- hayat sürelerinin CdTe tabaka kalınlığına göre değişimleri.

CdSe/CdTe/ZnTe yapısında gözlenmiştir. CdSe/CdTe/CdS yapısındaki pozitif yüklü ekzitonun hayat süresi, kabuk kalınlığı 0,1 a_0 değerinin altında iken bağlı olmayan durumda olduğu için daha uzun olmaktadır. Negatif yüklü ekzitonda ise, en uzun hayat süresi yine CdSe/CdTe/ZnTe yapısında gözlenmiştir. CdSe/CdTe/CdS yapısında negatif yüklü ekzitonun bağlanma enerjisi, kabuk kalınlığı 0,275 a_0'ın altında iken negatif olduğu için, hayat süresi diğer yapılardaki negatif yüklü ekzitona göre düşük olmaktadır. Daha büyük kabuk kalınlıklarında ise herhangi kaplama malzemesi kullanılmayan yapı ile neredeyse aynı hayat süresi gözlenmiştir.

7. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

7.1. Sonuçlar

Bu tez çalışmasında, son zamanlarda üzerinde yoğun olarak çalışılan II-VI yarıiletken grubunun, tip-II özelliği sergileyen heteroyapılardaki ekzitonların elektronik ve optik özellikleri teorik olarak sistematik bir şekilde incelenmiştir. Bunun için Poisson-Schrödinger denklemi öz-uyumlu olarak çözülerek enerji seviyeleri ve dalga fonksiyonları elde edilmiştir. Daha sonra bulunan enerji ve dalga fonksiyonları kullanılarak, ekzitonların örtüşme integrali, osilatör şiddeti ve hayat süreleri gibi optik parametreler hesaplanmıştır. Yüklü ve çift ekziton hesaplarında, kuantum mekaniksel çok parçacık etkileri, yerel yoğunluk yaklaşımı (LDA) altında göz önüne alınmıştır.

Tip-II kuantum nokta heteroyapılarda, elektron ya da deşikten biri kabukta bulunduğu için, kabuk dışında bulunan ligand ile direk etkileşmektedir. Bu nedenle, hesaplamalarda ligandın etkisini göz önüne almak, deneysel gözlemlere daha yakın sonuçlar elde edebilmek için önemlidir. Elektron ve deşiğin ligand içindeki etkin kütleleri tam olarak bilinmediği için, elektronun etkin kütlesi ligand içinde 4 farklı değerde alınarak yapılar incelenmiştir. Deneysel sonuçlarla en iyi uyum, ligand içerisindeki elektronun etkin kütlesinin $m_{lig} = 1\, m_0$ olduğu değerde gözlenmiştir. Ligandın, kuantum noktalarının elektronik ve optik özelliklerini etkileyen bir diğer parametresi ise, doğrudan etkileşim içinde olduğu parçacığa göstermiş olduğu potansiyel engel yüksekliğidir. Bu parametrenin etkisinin ne kadar olduğunu görebilmek için, farklı ligand potansiyel değerleri ile yapının elektronik yapısı incelenmiştir. Sonuç olarak, hem ligand içindeki etkin kütlenin hem de ligandın potansiyel yüksekliğinin yapının elektronik ve optik özelliklerini önemli ölçüde etkilediği görülmüştür.

CdTe/CdSe kuantum noktasında elektron kabukta bulunduğu için, yüksek enerjisinden dolayı elektron yoğunluğu bir miktar ligand içine nüfuz etmektedir. Bu nedenle ligandın özellikleri bu yapıdaki ekzitonların elektronik ve optik özelliklerini etkilemektedir. Fakat CdSe tabaka kalınlığı arttırıldığında, elektronun enerjisi azaldığı için, ligandın içinde daha az nüfuz edeceğinden, bu malzemeden daha az etkilenmektedir. Hesaplamalarda, CdTe/CdSe yapısında kabuk kalınlığının ve ligandın içindeki parçacığın etkin kütlesinin ve ligandın potansiyel yüksekliği gibi özelliklerin sonuçları önemli ölçüde etkilediği görülmüştür.

Hesaplamalarda göz önünde bulundurulması gereken diğer bir faktör de, heteroyapıyı oluşturan malzemelerin dielektrik sabitleri arasındaki uyumsuzluktur. Dielektrik sabitleri arasındaki uyumsuzluk sebebiyle, yapıda görüntü yükler oluşmakta ve bu görüntü yükler ile yapıdaki elektron ve deşik arasında Coulomb etkileşmeleri olmaktadır. Dielektrik sabitleri arasındaki fark arttıkça, görüntü yükler ve yapıdaki elektron ve deşik arasındaki etkileşim daha güçlü olacaktır. Tip-II kuantum heteroyapılarda, kabukta bulunan parçacık, hem çekirdek malzemesi hem de ligand ile etkileştiği için, her iki bölgede de indüklenen görüntü yüklerle etkileşmektedir. Ligandın dielektrik sabiti çok küçük olduğu için, kabuk ile arasındaki dielektrik sabiti farkı büyük olmaktadır. Dolayısıyla, tip-II kuantum nokta heteroyapılarda dielektrik uyumsuzluğunu göz önüne almamak, ekzitonların özellikle bağlanma enerjilerinde yanlış sonuçlar elde edilmesine sebep olmaktadır. Dielektrik uyumsuzluk ihmal edilerek yapılan hesaplamalarda deneysel sonuçlardan çok farklı sonuçlar elde edilmiştir.

CdTe/CdSe yapısında elektronun yoğunluğu bir miktar liganda kaydığı için, bu yapılarda kuantum verimliliği düşük olmaktadır. Kim ve ark. (2003) bir çalışmalarında CdTe/CdSe kuantum noktasının üzerine ZnTe tabakası büyütülerek elde edilen yapıda kuantum verimliliğinin arttığını gözlemlemişlerdir. Bu çalışmamızda CdTe/CdSe kuantum nokta heteroyapı ZnTe ve CdS tabakaları ile kaplanarak yapılan hesaplamalarda, ekzitonların elektronik ve optik özelliklerinin önemli ölçüde değiştiği gözlemlenmiştir. Hesaplamalar sonucunda CdTe/CdSe/CdS yapısında ekzitonların daha yüksek hayat sürelerine sahip oldukları, fakat enerji seviyelerinde önemli düşüşler olduğu görülmüştür. CdTe/CdSe/ZnTe yapısında ise tam tersi olarak yüksek enerji seviyeleri ve düşük hayat süreleri elde edilmiştir.

Son olarak, CdTe ve CdSe malzemelerinin yerlerini değiştirerek CdSe/CdTe yapısındaki ekzitonarın elektronik ve optik özellikleri incelenmiştir. Aynı zamanda, bu yapıya da ZnTe ve CdS tabakaları eklenerek inceleme yapılmıştır. İnceleme sonucunda özellikle CdSe/CdTe/ZnTe yapısında bulunan ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonun elektronik ve optik özelliklerinde önemli değişimler elde edilmiştir.

Sonuç olarak, tip-II kuantum nokta heteroyapıların elektronik ve optik özelliklerin kontrolü noktasında büyük avantajlar sağlayabilen yapılar olduğu görülmüştür. Yapıyı oluşturan malzemelerin özellikleri ve boyutları değiştirilerek özellikle örtüşme integralleri istenildiği gibi ayarlanabilmektedir.

7.2. Öneriler

Bu tez çalışmasında göz önüne alınan yapıların elektronik özellikleri, etkin kütle yaklaşımında Poisson ve Schrödinger denklemlerinin öz-uyumlu bir şekilde çözülmesiyle belirlenmiştir. Hesaplamalarda, kuantum mekaniksel değiş-tokuş ve korelasyon potansiyelleri, yerel yoğunluk yaklaşımı (Local Density Approximation (LDA)) altında göz önüne alınmıştır. Bundan sonraki çalışmalarda, daha farklı fiziksel yöntemler kullanılarak daha hassas hesaplar yapılabilir. Ayrıca, ZnTe ve CdS malzemelerinin kalınlıkları değiştirilerek elektronik ve optik özelliklerin değişimine bakılabilir. Bunlara ek olarak, farklı geometrilere sahip kuantum heteroyapılardaki ekziton, yüklü ekzitonlar ve çift ekzitonların elektronik ve optik özellikleri incelenebilir ve bant içi geçişlere bakılabilir. Bunun yanında, manyetik alan ve elektrik alanın bu yapılar üzerindeki etkilerine bakılabilir.

KAYNAKLAR

Achermann, M., Hollingsworth, J. A. and Klimov, V. I., 2003, Multiexcitons confined within a subexcitonic volume: Spectroscopic and dynamical signatures of neutral and charged biexcitons in ultrasmall semiconductor nanocrystals, *Phys. Rev. B*, 68, 245302.

Balet, L. P., Ivanov, S. A., Piryatinski, A., Achermann, M., ve Klimov, V. I., 2004, Inverted Core/Shell Nanocrystals Continuously Tunable Between Type-I and Type-II Localization Regimes, *Nano Letters*, 4, 1485

Banyai, L., Hu Y. Z., Lindberg M. ve Koch S. W., 1988, Third-order optical nonlinearities in semiconductor microstructures, *Phys. Rev. B*, 38, 8142.

BenDaniel, D. J. ve Duke, C. B., 1966, Space-Charge Effects on Electron Tunneling, *Phys. Rev.*, 152, 683-692.

Bimberg, D., Grundmann, M., Ledentsov, N. N., 1999, Quantum dot heterostructures, *John Wiley & Sons Ltd*, Chichester.

Borri, P., Langbein, W., Schneider, S., ve Woggon, U., 2002, Relaxation and Dephasing of Multiexcitons in Semiconductor Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett.*,89, 187401-1 – 187401-4

Brovelli, S., Schaller, R. D., Crooker, S.A., Garcia-Santamaria F., Chen, Y.,Viswanatha,R., Hollingsworth, J. A., Htoon, H., ve Klimov, V. I., 2011, Nano-engineered electron–hole Exchange interaction controls exciton dynamics in core–shell semiconductor nanocrystals, *Nature Communication*,2, 280.

Brus, L. E., 1984, Electron-electron and electron-hole interactions in small semiconductor crystallites: The size dependence of the lowest excited electronic state, *J. Chem. Phys.*, 80, 4403‑4409.

Burke, K. and friends, 2003, The ABC of DFT, http://chem.ps.uci.edu/~kieron/dft/book/

Chang K. ve Xia J-B., 1998, Spatially separated excitons in quantum-dot quantum well structures, *Phys. Rev. B*, 57, 9780.

Chen, Chun-Yen, Cheng, Chiu-Ting, Lai, Chih-Wei, Hu, Ya-Hui, Chou, Pi-Tai, Chou, Yi-Hsuan, Chiu, Hsin-Tien, 2005, Type-II CdSe/CdTe/ZnTe (Core–Shell–Shell) Quantum Dots with Cascade Band Edges: The Separation of Electron (at CdSe) and Hole (at ZnTe) by the CdTe Layer, *WILEY-VCH Verlag*, 1613-6829.

Combescot, M. and Betbeder-Matibet, O., 2009, Biexciton Oscillator Strength, *Phys. Rev. B*, 80, 205313.

Davies, J. H., 1998, The physics of low – dimensional semiconductors – An introduction, *Cambridge University Press*, Cambridge, 111-114.

Dorfs, D., ve Eychmüller, A., 2001, A Series of Double Well Semiconductor Quantum Dots, *Nano Lett.*, 1, 663-665.

Efros, Al.L., Efros, A.L., 1982, Interband absorption of light in a semiconductor sphere, *Sov. Phys. Semicond.* 16, 772-775.

Ekimov A.I., Hache F., Schanne-Klein M. C., Ricard D., Flytzanis C., Kudryavtsev I. A., Yazeva T. V, Rodina A. V., Efros Al. L., 1993, Absorption and intensity-dependent photoluminescence measurements on CdSe quantum dots: assignment of the first electronic transitions, *J. Opt. Soc. Am. B,* 10, 100 (1993).

Eychmüller, A., Mews, A., ve Weller, H., 1993, A quantum dot quantum well: CdS/HgS/CdS, *Chem. Phys. Lett.*, 208, 59-62.

Fonoberov, V.A.,Balandin, A. A., 2004, Origin of ultraviolet photoluminescence in ZnO quantumdots: Confined excitons versus surface-bound impurity exciton complexes, *Appl. Phys. Lett.*, 85, 24.

Franceschetti, A., Fu, H., Wang, L. W. ve Zunger, A., 1999, Many-body pseudopotential theory of excitons in InP and CdSe quantum dots, *Phys. Rev. B,* 60 (3), 1819-1829.

Garcia-Santamaria, F., Chen, Y., Vela., J., Schaller, R. D., Hollingsworth, J. A., and Klimov, V. I., 2009, Suppressed Auger Recombination in "Giant" Nanocrystals Boosts Optical Gain Performance, *Nano Letters,* 9(10), 3482.

Griffiths, D. J., 2004, Introduction to Quantum Mechanics (2nd Edition), Addison-Wesley, Michigan, 220-300.

Harrison, P., 1999, Quantum Well, Wires and Dots, *John Wiley&Sons*, New York, 189-217.

Hawrylak, P., 1999, Excitonic artificial atoms: Engineering optical properties of quantum dots, *Phys. Rev. B,* 60 (8), 5597-5608.

Ihn, T., 2010, Semiconductor Nanostructures, Quantum Statesand Electronic Transport, *Oxford University Press*, USA, 109, 372.

Ikezawa, M., Masumoto, Y., Takagahara, T., ve Nair, S. V., 1997, Biexciton and Triexciton States in Quantum Dots in the Weak Confinement Regime, *Phys. Rev. Lett.*, 79, 3522-3525.

Ivanov, S. A. and Achermann, M., 2010, Spectral and Dynamic Properties of Excitons and Biexcitons in Type-II Semiconductor Nanocrystals, *ACS Nano*, 4, 5994.

Jacak, L., Hawrylak, P., Wojs, A., 1998, Quantum dots, *SprinerVerlag,* Berlin-Hiedelberg.

Jha, P. P., ve Guyot-Sionnest, P., 2009, Trion Decay in Colloidal Quantum Dots, *ACS Nano*, 3 (4), 1011-1015.

Johson, E. A., 2001, Low-dimensional Semiconductor Structures, Barnham K., Vvedensky,D.D., *Cambridge University Press*, 79-122.

Kayanuma, Y., 1988, Quantum-size effects of interacting electrons and holes in semiconductor microcrystals with spherical shape, *Phys. Rev. B*, 38, 9797–9805.

Kim, S., Fisher, B., Eisler, H.-J. and Bawendi, M., 2003, Type-II Quantum Dots: CdTe/CdSe(Core/Shell) and CdSe/ZnTe(Core/Shell) Heterostructures, *J. Am. Chem. Soc.*, 125, 11466.

Kirstaedter, N., Ledentsov, N. N., Grundmann, M., Bimberg, D., Richter,Ruvimov, U. S. S., Werner, P., Heydenreich, J., Ustinov, V. M., Maximov, M .V., Kopev, P. S., Alferov,Zh. I., 1994, Lowthreshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots, *Electron. Lett.*, 30, 1416.

Kittel, C., 2004, Introduction to Solid State Physics, *Wiley*, USA, 435-450.

Klimov, V.I., 2010, Nanocrystal Quantum Dots, *CRC Press*, Boca Raton.

Klimov, V.I., Ivanov, S.A., Nanda, J., Achermann, M., Bezel, I., McGuire, J.A., Piryatinski A., 2007, Single-exciton optical gain in semiconductor nanocrystals, *Nature*, 447, 441 (2007).

Kortan, A. R., Hull, R., Opila, R. L., Bawendi, M. G., Steigerwald, M. L., Carroll, P. J., Louis E. Brus, 1990, Nucleation and growth of cadmium selendie on zinc sulfide quantum crystallite seeds, and vice versa, in inverse micelle media, *J. Am. Chem. Soc.*, 112, 1327.

Madelung, O., 2004, Semiconductors: Data Handbook, *Springer*, Heidelberg, 758-850.

Manasreh, O., 2005, Semiconductor Heterojunctions and Nanostructures, *The McGraw-Hill*, 98-99.

Meulenberg, R. W., Lee, J. R. I., Wolcott, A., Zhang, J. Z., Terminello, L. J., Buuren, T. V., 2009, Determination of the Exciton Binding Energy in CdSe Quantum Dots, *ACS Nano*, 3, 325.

Mews, A., Eychmueller, A., Giersig, M., Schooss, D., ve Weller, H., 1994, Preparation, characterization, and photophysics of the quantum dot quantum well system cadmium sulfide/mercury sulfide/cadmium sulfide, *J. Phys. Chem.*, 98, 934-941.

Mlinar V. ve Zunger A., 2009, Internal electronic structure and fine structure of multiexcitons in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 80, 205311.

Nair, S. V., ve Takagahara, T., 1997, Theory of exciton pair states and their nonlinear optical properties in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 55 (8), 5153-5170.

Nanda, J., Ivanov, S. A., Achermann, M., Bezel, I., Piryatinski, A. and Klimov, V. I., 2007, Absorption cross sections and Auger recombination lifetimes in inverted core-shell nanocrystals: Implications for lasing performance, *J. Phys. Chem. C*, 111, 15382.

Narvaez, G. A., Bester, G., ve Zunger, A., 2005, Excitons, biexcitons and trions in self-assembled (In,Ga)As/GaAs quantum dots: Recombination energies, polarization and radiative lifetimes versus dot height, *Phys. Rev. B*, 72, 245318.

Nizamoglu, S., ve Demir, H. V., 2008, Onion-like (CdSe)ZnS/CdSe/ZnS quantum-dot-quantum-well heteronanocrystals for investigation of multi-color emission, *Optics Express*, 16, 3515-3526.

Omar, M. A., 1999, Elementary Solid State Physics, *Addison-Wesley Publishing Company*, 215-250.

Oron, D.,Kazes, M., ve Banin, U., 2007, Multiexcitons in type-II colloidal semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 75, 035330.

Perdew J.P.,Zunger A., 1981, Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems, *Phys. Rev. B*, 23, 5048–5079.

Pereira, T. A. S., Sousa, J. S., Freire, J. A. K. ve Farias, G. A., 2010, On the interplay between quantum confinement and dielectric mismatch in high-k based quantum wells, *J. Appl. Phys.*, 108, 054311.

Piryatinski A, Ivanov S. A., Tretiak S., Klimov V. I., 2007, Effect of Quantum and Dielectric Confinement on the Exciton−Exciton Interaction Energy in Type II Core/Shell Semiconductor Nanocrystals, *Nano Letters*, 7, 108-115.

Rajadell, F., Climente, J. I., Planelles, J. ve Bertoni, A., 2009, Excitons, Biexcitons, and Trions in CdSe Nanorods, *J. Phys. Chem. C*, 2009, 113, 11268–11272.

Rajadell, F., Movilla, J. L., Royo, M., ve Planelles, J., 2007, Theory of dielectrically induced surface excitonic states in spherical quantum dots, *Phys. Rev. B*, 76, 115312-1 – 115312-5.

Sattler, K. D., 2011, Handbook of Nanophysics, Nanoparticles and Quantum Dots, *CRC Press*, New York, 35-1,35-14,6-8,6-9.

Schaller, R. D., Agranovich, V. M. and Klimov, V. I., 2005, High-efficiency carrier multiplication through direct photogeneration of multi-excitons via virtual single-exciton states, *Nature Physics*, 1, 189.

Shumway J., Franceschetti A., ve Zunger A., 2001, Correlation versus mean-field contributions to excitons, multiexcitons, and charging energies in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 63,155316.

Şahin, M., NizamogluS., Kavruk, A. E., ve Demir, H. V., 2009, Self-consistent computation of electronic and optical properties of a single exciton in a spherical

quantum dot via matrix diagonalization method, *J. Appl. Phys.*,106, 043704, 043704-5.

Şahin, M., Nizamoglu, S., Yerli O., ve Demir H. V., 2012, Reordering orbitals of semiconductor multi-shell quantum dot-quantum well heteronanocrystals, *J. Appl. Phys.*, 111, 023713.

Takagahara, T., 1987, Excitonic optical nonlinearity and exciton dynamics in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 36, 9293-9396.

Takagahara, T., 1993, Effects of dielectric confinement and electron-hole exchange interaction on excitonic states in semiconductor quantum dots, *Phys. Rev. B*, 47 (8), 4569-4583.

Thijssen, J. M., 1999, Computational Physics, *Cambridge University Press*, Cambridge, 90-108.

Tsuchiya, T., 2000, Biexcitons and charged excitons in quantum dots: a quantum Monte Carlo study, *Physica E*, 7, 470-474.

Tyrrell E. J. ve Smith J. M., 2011, Effective mass modeling of excitons in type-II quantum dot heterostructures, *Phys. Rev. B*, 84, 165328.

Uozumi T., Kayanuma Y., Yamanaka K., Edamatsu K. ve Itoh T., 1999, Excited-state absorption of excitons confined in spherical quantum dots, *Phys. Rev. B*, 59, 9826.

Wei, Su-Huai, Zhang, S. B. ve Zunger, A., 2000, First-principles calculation of band offsets, optical bowings, and defects in CdS, CdSe, CdTe, and their alloys, *J. Appl. Phys.*, 87 (3), 1304-1311.

ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı	**:**	Fatih KOÇ
Uyruğu	**:**	TC
Doğum Yeri ve Tarihi	**:**	Tatvan – 17.09.1985
Telefon	**:**	0507 429 59 53
Faks	**:**	
e-mail	**:**	fatih.koc@msn.com

EĞİTİM

Derece		**Adı, İlçe, İl**	**Bitirme Yılı**
Lise	:	Hasan Çapan Anadolu Lisesi, Nizip, Gaziantep	2003
Üniversite	:	Gaziantep Üniversitesi	2010
Yüksek Lisans	:	Selçuk Üniversitesi	
Doktora	:	-	

YABANCI DİLLER

İngilizce

PROGRAMLAMA DİLLERİ

C++ (İyi derece)
Root (Orta Derece)
Fortran (Orta Derece)
Java (Orta Derece)

İŞLETİM SİTEMLERİ

Microsoft Windows, Unix Sistemler

DİĞER PROGRAMLAR

Sigma Plot, Microsoft Office

BİLDİRİLER

2011, Tip-II kuantum nokta nanokristal yapılardaki ekziton ve ikili ekzitonların optik özellikleri, F. KOÇ, A. AKTÜRK, M. ŞAHİN, A. ERDİNÇ, 18. Yoğun Madde Fiziği Toplantısı, ODTÜ, ANKARA. (En iyi poster ödülü)

2011, Tip-II CdSe/CdTe bir kuantum nokta nanokristal yapıdaki çoklu ekzitonların optik özellikleri, F. KOÇ, A. AKTÜRK, M. ŞAHİN, A. ERDİNÇ, 13. Ulusal Optik, Elektronik-Optik ve Fotonik Toplantısı, Bilkent, ANKARA.

2011, CdSe Çok tabakalı CdSe/ZnS/CdSe kuantum nokta içerisinde bulunan ekziton ve trionların optik özellikleri, A. AKTÜRK, F. KOÇ, M. ŞAHİN, A. ERDİNÇ, 13. Ulusal Optik, Elektronik-Optik ve Fotonik Toplantısı, Bilkent, ANKARA.

2011, Çok tabakalı CdSe/ZnS kuantum nokta içerisinde bulunan ikili ekzitonların optik özellikleri, A. AKTÜRK, F. KOÇ, A. ERDİNÇ, M. ŞAHİN, 18. Yoğun Madde Fiziği Toplantısı, ODTÜ, ANKARA.

YAYINLAR

Şahin, M., Koç, F., Recombination oscillator strength and radiative lifetime of multi-exciton complexes in spherical quantum dot nanocrystals. (PRL'e gönderildi, 2012.)

Koç, F., Şahin, M., A detailed investigation of the electronic and optical properties of single exciton and biexciton in type-II quantum dot nanocrystals. (NanoLetters'a gönderildi, 2012.)