Релаксация носителей заряда в квантовых точках с участием плазмон-фононных мод

© А.В. Федоров[¶], А.В. Баранов

Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова, 199034 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 28 января 2004 г. Принята к печати 16 февраля 2004 г.)

Рассмотрен новый механизм внутризонной релаксации носителей заряда в квантовых точках, встроенных в гетероструктуру на относительно большом расстоянии от ее легированных элементов. Процесс релаксации обусловлен связью электронной подсистемы квантовой точки с плазмон-фононными возбуждениями легированных компонент гетероструктуры через электрический потенциал, индуцированный этими возбуждениями. Показано, что взаимодействие такого типа с объемными плазмон-LO-фононными модами возможно лишь благодаря их пространственной дисперсии. Проведенные оценки скоростей релаксации показали, что рассматриваемый механизм достаточно эффективен даже в случае, когда квантовые точки удалены от легированных областей гетероструктуры на расстояния вплоть до 100 нм. Если же это расстояние составляет несколько десятков нанометров, то он может стать доминирующим.

1. Введение

Быстрое развитие наноэлектроники привело к тому, что конструирование наноэлектронных приборов, основанных на полупроводниковых квантовых точках, стало реальностью. Типичными примерами таких приборов являются одноэлектронные транзисторы [1], логические элементы (quantum bits) [2], ячейки памяти [3] и лазеры [4]. Все они состоят из большого числа структурных компонент, включая легированные полупроводниковые слои, квантовые нити и подложки. Для создания высоко производительных наноэлектронных приборов такого типа необходимы глубокие знания об энергетической и фазовой релаксации в квантовых точках, поскольку именно они являются основными рабочими элементами этих устройств.

До сих пор основные усилия исследователей в этой области были направлены на изучение релаксационных процессов, вызванных взаимодействием с различными элементарными возбуждениями, которые локализованы внутри квантовых точек или на их поверхности. Так, например, изучалось влияние размерно-квантованных и поверхностных оптических фононов [5–8] на электронную динамику квантовых точек. Ряд работ был посвящен многофононной релаксации с участием продольных оптических и акустических фононов [5,9,10]. Для объяснения быстрой релаксации носителей заряда в квантовых точках предлагался многофононный механизм с участием дефектов [11–13]. Кроме того, оже-процесс был рассмотрен как другой эффективный механизм внутризонной релаксации в квантовых точках [14,15].

Несмотря на то что реальные приборы, основанные на квантовых точках, представляют собой сложные гетероструктуры, состоящие из многих структурных компонент (например, матриц, квантовых ям и нитей; покрывающих, буферных и смачивающих слоев и т.п.), относительно мало работ посвящено изучению влияния элементарных возбуждений окружения на электронную динамику квантовых точек. Кроме взаимодействия электронной подсистемы квантовых точек с барьерными и матричными оптическими и акустическими фононами [5,8,16-18], до сих пор исследовалось только влияние ближайшего окружения на электронную динамику квантовой точки. Например, в самоорганизованных квантовых точках рассматривалось однородное уширение оптических переходов, вызванное упругими кулоновскими столкновениями между свободными носителями заряда смачивающегося слоя и носителями в квантовых точках [19]. Кроме того, исследовалась электронная дефазировка, вызванная зарядовыми флуктуациями на примесном состоянии благодаря его перезарядке через резервуар свободных электронов [2]. Однако можно ожидать, что не только свободные заряды окружения, но также плазмоны и плазмон-фононные моды, которые являются собственными возбуждениями легированных компонент гетероструктуры, будут взаимодействовать с электронной подсистемой квантовых точек. Очевидно, что при непосредственном контакте между квантовыми точками и легированными компонентами носители в квантовых точках будут сильно связаны с возбуждениями окружения, которые сопровождаются электрическими полями. Но, во многих случаях такие компоненты (например, подложки) удалены от квантовых точек на несколько десятков нанометров и *a priori* не ясно, какова сила взаимодействия между ними.

Простое электростатическое рассмотрение показывает, что электрические поля, индуцированные продольными объемными волнами, независимо от их природы (продольные оптические (LO) фононы, плазмоны или плазмон-фононные моды), не могут проникать в материалы с отличающейся диэлектрической проницаемостью [20,21]. Однако на примере LO-фононов [22,23] было показано, что учет фононной дисперсии приводит к возникновению экспоненциальных хвостов электрического поля в другом материале. Можно ожидать, что

[¶] E-mail: anatoli.fedorov@online.ru

та же самая ситуация будет иметь место и в случае плазмонов или плазмон-фононных мод. Именно благодаря их дисперсии электрические поля, индуцированные продольными объемными волнами, могут проникать через границу раздела материалов и воздействовать на электронную подсистему квантовых точек, открывая новые каналы релаксации. Возникает естественный вопрос о том, не будут ли такие поля вызывать достаточно эффективную внутризонную релаксацию носителей в квантовых точках, находящихся в собственном материале и удаленных на относительно большие расстояния от границы раздела. Насколько нам известно, эта проблема до сих пор не рассматривалась.

Целью данной работы является.

1. Построение теоретической модели нового механизма внутризонной релаксации носителей заряда в квантовых точках, вызванной взаимодействием между носителями и электрическим потенциалом, который индуцируется объемными плазмон-LO-фононными модами легированных компонент гетероструктуры.

2. Оценка скоростей внутризонной релаксации, обусловленной этим механизмом, в зависимости от расстояния между квантовой точкой и легированным компонентом гетероструктуры, от концентрации легирующей примеси и конструкции гетероструктуры.

3. Обсуждение возможных проявлений нового механизма релаксации в оптических спектрах гетероструктур.

Связанные плазмон-фононные моды в полупроводниковой гетероструктуре

2.1. Диэлектрический формализм без учета запаздывания

Прежде чем приступить к построению модели внутризонной релаксации носителей заряда в квантовых точках, удаленных от легированных компонент гетероструктуры, кратко обсудим плазмон-фононные волны, являющиеся собственными возбуждениями легированных материалов. Ограничимся рассмотрением тех из них, которые представляют собой гибридные состояния флуктуаций зарядовой плотности и оптических фононов. Вначале проведем анализ связанных плазмон-фононных колебаний в рамках диэлектрического формализа без учета пространственной дисперсии "затравочных" плазменных и фононных волн. Для максимального упрощения задачи, которое позволяет получить наиболее ясные результаты, рассмотрим две конструкции гетероструктуры с плоскими границами. Это так называемые одиночная и двойная гетероструктуры, изображенные на рис. 1. Будем считать, что полупространство $1 \ (z \le 0)$ заполнено легированным полупроводником, например *п*-типа с концентрацией n_0 , область 2 (z > 0 или $d \ge z > 0$)



Рис. 1. Одиночная (a) и двойная (b) гетероструктуры. Область 1 — легированный полупроводник, область 2 — собственный полупроводник, область 3 — воздух.

представляет собой собственный полупроводник, а полупространство 3 (z > d) — это воздух с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_3 = 1$.

Как известно (см., например, [20,21]), при изучении элементарных возбуждений в рамках диэлектрического формализма, не учитывающего эффекты запаздывания, достаточно ограничиться единственным уравнением Максвелла div $\mathbf{D} = 0$ для электрического смещения $\mathbf{D} = \varepsilon(\omega)\mathbf{E}$, где $\varepsilon(\omega)$ и \mathbf{E} это диэлектрическая функция и электрическое поле в соответствующей области гетероструктуры. Используя явный вид диэлектрических функций [21,24] областей *I* и *2*

$$\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon_{1\infty} \left(\frac{\omega_{1L}^2 - \omega^2}{\omega_{1T}^2 - \omega^2} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right), \tag{1}$$

$$\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_{2\infty} \frac{\omega_{2L}^2 - \omega^2}{\omega_{2T}^2 - \omega^2}$$
(2)

и трансляционную симметрию задачи в плоскости *xy*, легко получить систему уравнений для самосогласованного электрического потенциала $\varphi_j(\mathbf{r}, \omega) = \varphi_j(z) \times \exp(i\mathbf{qx}) \exp(-i\omega t)$ при j = 1, 2, 3 и $\mathbf{q}, \mathbf{x} \perp z$:

$$\varepsilon_j(\omega) \left(\frac{d^2}{dz^2} - q^2 \right) \varphi_j(z) = 0, \tag{3}$$

которая описывает связанные плазмон-LO-фононные моды. В уравнениях (1)–(3) **q** —волновой вектор, лежащий в плоскости *xy*, $\omega_{1(2)L}$ и $\omega_{1(2)T}$ — частоты продольных и поперечных оптических фононов, $\omega_{\rm p} = (4\pi e^2 n_0 / \varepsilon_{1\infty} m)^{1/2}$ — плазменная частота, m — эффективная масса электронов, $\varepsilon_{1(2)\infty}$ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость.

Рассмотрим объемные плазмон-LO-фононные возбуждения. Поскольку они являются собственными для объемных материалов, их частоты ω_b обращают в нуль диэлектрическую функцию, соответствующую легированной области гетероструктуры $\varepsilon_1(\omega) = 0$. Таким образом, получаем две ветви плазмон-LO-фононных колебаний

$$\omega_{b\pm}^{2} = \frac{1}{2} \left\{ \omega_{1L}^{2} + \omega_{p}^{2} \pm \left[\left(\omega_{1L}^{2} + \omega_{p}^{2} \right)^{2} - 4\omega_{1T}^{2} \omega_{p}^{2} \right]^{1/2} \right\}.$$
(4)

При этом первое из уравнений (3) удовлетворяется тождественно. Считая, что собственный полупроводник не является резонансной средой, т.е. $\varepsilon_2(\omega_{b\pm}) \neq 0$, для одиночной гетероструктуры получаем электрический потенциал в следующем виде:

$$\varphi(z) = \varphi(0) \begin{cases} \sin(k_z z), & z \le 0, \\ 0, & z > 0, \end{cases}$$
(5)

где k_z — компонента волнового вектора, перпендикулярная границе раздела сред. Для двойной гетероструктуры условием нерезонансности собственного полупроводника является соотношение

$$\omega_{b\pm}^2 \neq \frac{\varepsilon_{2\infty}\omega_{2L}^2 + \omega_{2T}^2 \operatorname{th} qd}{\varepsilon_{2\infty} + \operatorname{th} qd},\tag{6}$$

при выполнении которого

$$\varphi(z) = \varphi(0) \begin{cases} \sin k_z z, & z \le 0, \\ 0, & d \ge z > 0, \\ 0, & z > d. \end{cases}$$
(7)

Из (5) и (7) следует, что в том случае, когда не учитывается дисперсия плазмонов и фононов, а собственный полупроводник не является резонансной средой, электрический потенциал объемных плазмон-LO-фононных возбуждений сосредоточен в легированном материале.

2.2. Роль дисперсии плазмонов в формировании плазмон-фононных мод

Для выяснения влияния дисперсии плазмонов на энергетический спектр плазмон-фононных мод и индуцированный ими электрический потенциал воспользуемся развитым нами комбинированным подходом, который основан на диэлектрическом формализме при описании оптических фононов и гидродинамическом приближении для плазменных колебаний, позволяющем учитывать их дисперсию. В рамках этого подхода к системе уравнений Блоха [25] для потенциала гидродинамической скорости свободных носителей заряда ψ ($\mathbf{v} = -\nabla \psi$), плотности носителей N и самосогласованного электрического потенциала Ф добавляется уравнение движения для колебательных амплитуд u, соответствующих оптическим фононам без учета пространственной дисперсии [23]. Связь между фононной и плазмонной подсистемой обусловлена тем, что самосогласованный потенциал определяется как флуктуациями плотности заряда свободных носителей, так и дипольной фононной поляризацией. В результате получается система связанных нелинейных уравнений, которая может быть существенно упрощена с помощью стандартного метода линеаризации (см., например, [25-27]). Предположим, что невозмущенное состояние газа свободных носителей характеризуется однородной плотностью n₀ в легированной области образца, которая отделена непроницаемым барьером от остальной его части. Тогда в 1-м порядке

теории возмущений по отклонению величин ψ , N, Φ и **u** от их равновесных значений $\psi_0 = 0$, n_0 , φ_0 и $\mathbf{u}_0 = 0$ получим следующую систему линейных уравнений:

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{e}{m}\varphi + \frac{\beta^2}{n_0}n,$$
$$\frac{\partial n}{\partial t} = \nabla(n_0\nabla\psi),$$
$$\Delta\varphi = \frac{4\pi e}{\varepsilon_{\infty}}n + \frac{4\pi\alpha}{\varepsilon_{\infty}}\nabla\mathbf{u},$$
$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = -\rho\omega_{\mathrm{T}}^2\mathbf{u} - \alpha\nabla\varphi,$$
(8)

где $\varphi = \Phi - \varphi_0$, $\beta = v_F/\sqrt{3}$ — скорость распространения гидродинамических возмущений в газе свободных носителей заряда, $v_F = (3\pi^2 n_0)^{1/3}\hbar/m$ — скорость Ферми, $n = N - n_0$, $\alpha = \omega_T [(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)\rho/4\pi]^{1/2}$, ε_0 — низкочастотная диэлектрическая проницаемость, ρ — плотность массы элементарной ячейки полупроводника. Данной системе уравнений соответствует следующий гамильтониан:

$$H = \int d^3r \left[\frac{1}{2} \rho \dot{\mathbf{u}}^2 + \frac{1}{2} \rho \omega_{\rm T}^2 \mathbf{u}^2 + \alpha \mathbf{u} \nabla \varphi - \frac{\varepsilon_{\infty}}{8\pi} (\nabla \varphi)^2 + \frac{1}{2} m n_0 (\nabla \psi)^2 - e \varphi n + \frac{m \beta^2}{2n_0} n^2 \right], \quad (9)$$

который потребуется в дальнейшем для проведения процедуры вторичного квантования плазмон-LO-фононных мод.

Для того чтобы найти собственные частоты элементарных возбуждений и электрические поля в исследуемой неоднородной системе, рассмотрим уравнения (8) во всех областях гетероструктуры, предполагая, как и прежде, что временная эволюция переменных n, ψ, φ и **u** определяется экспоненциальной функцией $\exp(-i\omega t)$. Кроме того, воспользуемся трансляционной симметрией задачи в плоскости xy, т. е. представим переменные $\{n_1(\mathbf{r}), \psi_1(\mathbf{r}), \varphi_j(\mathbf{r}), \mathbf{u}_j(\mathbf{r})\}$ в виде $\{n_1(z), \psi_1(z), \varphi_j(z), \mathbf{u}_j(z)\} \exp(i\mathbf{qx})$, где нижний индекс нумерует область гетероструктуры, а двумерный волновой вектор **q** и двумерный радиус-вектор **x** лежат в плоскости xy. Тогда, для легированной области 1 получим следующую систему уравнений:

$$\beta^{2} \frac{d^{2}n_{1}(z)}{dz^{2}} + \left(\omega^{2} - \omega_{p}^{2} \frac{\varepsilon_{1\infty}}{\varepsilon_{1ph}(\omega)} - \beta^{2}q^{2}\right)n_{1}(z) = 0,$$

$$\varepsilon_{1ph}(\omega)\left(\frac{d^{2}}{dz^{2}} - q^{2}\right)\varphi_{1}(z) = 4\pi e n_{1}(z),$$

$$-i\omega\psi_{1}(z) = -\frac{e}{m}\varphi_{1}(z) + \frac{\beta^{2}}{n_{0}}n_{1}(z),$$

$$\mathbf{u}_{1}(z) = \frac{\alpha_{1}}{\rho_{1}}\frac{\nabla\varphi_{1}(z) + i\mathbf{q}\varphi_{1}(z)}{\omega^{2} - \omega_{1T}^{2}}.$$
(10)

Из первого уравнения системы (10) следует, что если параметр

$$k_z^2 = \left(\omega^2 - \omega_p^2 \frac{\varepsilon_{1\infty}}{\varepsilon_{1\rm ph}(\omega)} - \beta^2 q^2\right) / \beta^2 > 0, \qquad (11)$$

то мы имеем дело с объемными плазмон-LO-фононными модами, для которых k_z является *z*-компонентой полного волнового вектора $\mathbf{k} = \{k_z, \mathbf{q}\}$. Закон дисперсии этих мод как для одиночной, так и для двойной гетероструктуры определяется уравнениями

$$\begin{split} \omega_{b\pm}^{2}(k) &= \frac{1}{2} \bigg\{ \omega_{1L}^{2} + \omega_{p}^{2} + \beta^{2} k^{2} \\ &\pm \bigg[\left(\omega_{1L}^{2} + \omega_{p}^{2} + \beta^{2} k^{2} \right)^{2} - 4 \omega_{p}^{2} \omega_{1T}^{2} - 4 \omega_{1L}^{2} \beta^{2} k^{2} \bigg]^{1/2} \bigg\}, \end{split}$$
(12

где $k^2 = k_z^2 + q^2$ (см. рис. 2). Легко видеть, что при $\beta \to 0$, т.е. при пренебрежении дисперсией плазменных колебаний, (12) переходит в выражение (4).

В дальнейшем будем считать, что собственный полупроводник не является резонансной средой по отношению к плазмон-фононным модам, т.е. $\varepsilon_{2\text{ph}}(\omega_{b\pm}(k)) \neq 0$. Тогда уравнения, описывающие $\mathbf{u}(z)$ во 2-й области гетероструктуры и $\varphi(z)$ в областях 2 и 3, имеют вид

$$\mathbf{u}_{2}(z) = \frac{\alpha_{2}}{\rho_{2}} \frac{\nabla \varphi_{2}(z) + i\mathbf{q}\varphi_{2}(z)}{\omega^{2} - \omega_{2T}^{2}},$$

$$\varepsilon_{2\text{ph}}(\omega) \left(\frac{d^{2}}{dz^{2}} - q^{2}\right) \varphi_{2}(z) = \mathbf{0},$$

$$\left(\frac{d^{2}}{dz^{2}} - q^{2}\right) \varphi_{3}(z) = \mathbf{0}.$$
(13)

Можно показать, что решение систем (10) и (13) для одиночной гетероструктуры может быть представлено в следующей форме:

$$n_{1}(z) = C_{1}e^{ik_{z}z} + C_{2}e^{-ik_{z}z},$$

$$p_{1}(z) = -\frac{4\pi e}{\varepsilon_{1\text{ph}}(\omega)k^{2}} (C_{1}e^{ik_{z}z} + C_{2}e^{-ik_{z}z}) + C_{3}e^{qz},$$

$$\varphi_{2}(z) = Be^{-qz}, \qquad (14)$$

а для двойной гетероструктуры как

$$n_{1}(z) = C_{1}e^{ik_{z}z} + C_{2}e^{-ik_{z}z},$$

$$p_{1}(z) = -\frac{4\pi e}{\varepsilon_{1\text{ph}}(\omega)k^{2}} (C_{1}e^{ik_{z}z} + C_{2}e^{-ik_{z}z}) + C_{3}e^{qz},$$

$$\varphi_{2}(z) = B_{1}e^{-qz} + B_{2}e^{qz},$$

$$\varphi_{3}(z) = Ae^{-qz}.$$
(15)



Рис. 2. Законы дисперсии $\omega_{b\pm}(k)$ объемных плазмон-фононных мод для параметров GaAs в зависимости от концентрации легирующей примеси n_0 , см⁻³: сплошные линии — 10^{18} , пунктирные — $0.75 \cdot 10^{18}$, штриховые — $0.5 \cdot 10^{18}$. Штрих-пунктирными линиями показаны энергии продольного ω_{1L} и поперечного ω_{1T} оптических фононов GaAs.

Для того чтобы найти коэффициенты A, B и C будем считать, что электрический потенциал и z-компонента электрического смещения непрерывны на границах раздела сред. Кроме того, воспользуемся тем, что на границе z = 0 нормальная компонента гидродинамической скорости $v_z = 0$. Тогда для одиночной гетероструктуры

$$C_3 = ik_z \frac{2m\omega^2}{en_0k^2} \frac{\gamma(\omega)}{ik_z\delta(\omega) - q\gamma(\omega)} C_2, \qquad (16)$$

$$C_1 = \frac{ik_z\delta(\omega) + q\gamma(\omega)}{ik_z\delta(\omega) - q\gamma(\omega)}C_2, \qquad (17)$$

$$B = -ik_z \frac{2m\beta^2 \varepsilon_{1\rm ph}(\omega)}{en_0 \varepsilon_{2\rm ph}(\omega)} \frac{\gamma(\omega)}{ik_z \delta(\omega) - q\gamma(\omega)} C_2,$$

где

$$\gamma(\omega) = \frac{\varepsilon_{1\infty}}{\varepsilon_{1\rm ph}(\omega)} \frac{\varepsilon_{2\rm ph}(\omega)}{\varepsilon_{1\rm ph}(\omega) + \varepsilon_{2\rm ph}(\omega)} \omega_{\rm p}^2, \qquad (18)$$

$$\delta(\omega) = \beta^2 k^2 + \gamma(\omega). \tag{19}$$

Для двойной гетероструктуры коэффициенты C_1 и C_3 определяются выражениями (16) и (17) с перенормированными параметрами $\gamma(\omega)$ (18) и $\delta(\omega)$ (19), в которых $\varepsilon_{2\text{ob}}(\omega)$ должна быть заменена на величину

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\eta_{-}(\omega)}{\eta_{+}(\omega)} \varepsilon_{2ph}(\omega),$$
(20)

где

$$\eta_{\pm}(\omega) = 1 \pm \frac{\varepsilon_{2\rm ph}(\omega) - 1}{\varepsilon_{2\rm ph}(\omega) + 1} e^{-2qd}.$$
 (21)

Коэффициенты A и B для двойной гетероструктуры равны

$$B_{1} = -ik_{z} \frac{2m\beta^{2}\varepsilon_{1ph}(\omega)}{\eta_{+}(\omega)en_{0}\varepsilon(\omega)} \frac{\gamma(\omega)}{ik_{z}\delta(\omega) - q\gamma(\omega)}C_{2},$$

$$B_{2} = [\eta_{+}(\omega) - 1]B_{1}, \qquad A = \frac{2\varepsilon_{2ph}(\omega)}{\varepsilon_{2ph}(\omega) + 1}B_{1}.$$

Коэффициент C_2 для обеих гетероструктур может быть найден из условия нормировки.

Таким образом, как и ожидалось, учет дисперсии плазменных колебаний привел к важному результату. В отличие от случая, рассмотренного в предыдущем разделе, электрические поля, индуцированные объемными плазмон-LO-фононными модами, проникают в ту область гетероструктур, которая заполнена собственным полупроводником. Эти поля связывают возбуждения легированного полупроводника с электронными возбуждениями собственного материала, что может существенно повлиять на динамику последних.

2.3. Вторичное квантование плазмон-LO-фононных мод

Поскольку рассмотренные в предыдущем разделе плазмон-фононные колебания индуцируют электрический потенциал, который описывает их взаимодействие $V(\mathbf{r}) = -e\varphi(\mathbf{r})$ с другими электронными возбуждениями, для дальнейших приложений удобно выразить $V(\mathbf{r})$ через бозе-операторы рождения $b_{\mathbf{k}}^+$ и уничтожения $b_{\mathbf{k}}$ квазичастиц, соответствующих плазмон-LO-фононным модам. Для этого применим стандартную процедуру вторичного квантования к гамильтониану (9), которая позволяет определить неизвестные константы C_2 . В результате гамильтониан приобретает вид $H = \sum \hbar \omega_{b\pm}(k)[b_{\mathbf{k}}^+b_{\mathbf{k}} + 1/2]$, а энергия взаимодействия электронов с объемными плазмон-фононными модами может быть представлена в следующей форме:

$$V_b(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} \left(V_{\mathbf{k}}(z) e^{i\mathbf{q}\mathbf{x}} b_{\mathbf{k}} + V_{\mathbf{k}}^*(z) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{x}} b_{\mathbf{k}}^+ \right), \qquad (22)$$

где для одиночной гетероструктуры

$$V_{\mathbf{k}}(z) = V_{k} \begin{cases} M_{1} \left(\xi_{\mathbf{k}} e^{ik_{z}z} + e^{-ik_{z}z} \right) - \chi_{\mathbf{k}} \omega^{2} e^{qz}, & z \leq 0, \\ \chi_{\mathbf{k}} \frac{\varepsilon_{1\text{ph}}(\omega)}{\varepsilon_{2\text{ph}}(\omega)} \beta^{2} k^{2} e^{-qz}, & z > 0, \end{cases}$$

$$(23)$$

$$V_{k} = \left[\frac{2\hbar m \gamma^{2}(\omega)}{L^{3}k^{2}n_{0}\omega\sigma(\omega)}\right]^{1/2}, \quad \sigma(\omega) = 1 + \frac{\omega_{\mathrm{p}}^{2}(\omega_{\mathrm{IL}}^{2} - \omega_{\mathrm{IT}}^{2})}{\left(\omega^{2} - \omega_{\mathrm{IL}}^{2}\right)^{2}},$$

 L^3 — нормировочный объем,

$$\begin{split} M_1 &= \frac{\varepsilon_{1\mathrm{ph}}(\omega) + \varepsilon_{2\mathrm{ph}}(\omega)}{2\varepsilon_{2\mathrm{ph}}(\omega)},\\ \xi_{\mathbf{k}} &= \frac{ik_z\delta(\omega) + q\gamma(\omega)}{ik_z\delta(\omega) - q\gamma(\omega)}, \quad \chi_{\mathbf{k}} = \frac{ik_z}{ik_z\delta(\omega) - q\gamma(\omega)}. \end{split}$$

Здесь в качестве ω следует использовать выражения для собственных частот объемных плазмон-фононных мод (12), а остальные параметры определены уравнениями (18) и (19). Для двойной гетероструктуры

$$\begin{split} V_{\mathbf{k}}(z) &= V_{k} \begin{cases} M_{2}(\xi_{\mathbf{k}}e^{ik_{z}z} + e^{-ik_{z}z}) - \chi_{\mathbf{k}}\omega^{2}e^{qz}, & z \leq 0, \\ M_{3}\beta^{2}k^{2}\left[e^{-qz} + \left(\eta_{+}(\omega) - 1\right)e^{qz}\right], & d \geq z > 0, \\ M_{4}M_{3}\beta^{2}k^{2}e^{-qz}, & z > d, \end{cases} \end{split}$$

причем теперь $\xi_{\mathbf{k}}$ и $\chi_{\mathbf{k}}$ выражаются через перенормированные параметры $\gamma(\omega)$ и $\delta(\omega)$, а остальные фигурирующие в (24) величины определяются выражениями (20) и (21).

Из выражений (23) и (24) следует, что при формальном переходе к бездисперсионной задаче ($\beta \rightarrow 0$) электрический потенциал, индуцированный плазмон-фононными колебаниями в собственной области гетероструктуры, обращается в нуль. Это обстоятельство полностью согласуется с результатами разд. 2.1, где показано, что в случае отсутствия дисперсии электрический потенциал объемных плазмон-LO-фононных возбуждений сосредоточен в легированном материале.

Скорость внутризонной релаксации электронных возбуждений квантовой точки

Рассмотрим следующий механизм внутризонной релаксации электронных возбуждений квантовой точки. Предположим, что она расположена в нелегированной области гетероструктуры на расстоянии *a* от границы раздела между легированной и нелегированной областью. Тогда, согласно (22), электронная подсистема квантовой точки связана с плазмон-фононными модами через индуцированный ими электрический потенциал. В результате электрон может перейти из одного состояния в другое, испустив квант плазмон-фононных колебаний (рис. 3).

В 1-м порядке теории возмущений скорость переходов носителей заряда в квантовой точке между уровнями E_2 и E_1 (рис. 3) с возбуждением плазмон-фононных мод с квантовыми числами *n* можно представить следующим образом:

$$W = rac{2\pi}{\hbar^2} \sum_n \left| \langle 1 | V_n(\mathbf{r}) | 2
angle
ight|^2 \delta(\Omega - \omega_n),$$

где $|2\rangle$ и $|1\rangle$ — волновые функции начального и конечного состояний носителя заряда, $\Omega = (E_2 - E_1)/\hbar$.



Рис. 3. Схема гетероструктуры с квантовой точкой InAs, иллюстрирующая энергетическую релаксацию носителей заряда квантовой точки с испусканием кванта связанного плазмон-фононного возбуждения. E_1 и E_2 — электронные уровни квантовой точки; $\hbar\Omega$ — энергетический зазор между состояниями, участвующими в процессе релаксации; a — расстояние от квантовой точки до легированной области.

В случае релаксации с участием объемных плазмон-фононных возбуждений их квантовыми числами является совокупность компонент волнового вектора k_z и **q**. Выбирая начало координат, связанное с квантовой точкой, получим

$$W_{b\pm} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_{k_z, \mathbf{q}} \left| \left\langle 1 \middle| \tilde{V}_{\mathbf{k}}(z) e^{i\mathbf{q}\mathbf{x}} \middle| 2 \right\rangle \right|^2 e^{-2qa} \delta \left(\Omega - \omega_{b\pm}(k) \right),$$
(25)

где закон дисперсии $\omega_{b\pm}(k)$ определяется уравнением (12). Ограничимся, для простоты, случаем гетероструктур, области 1 и 2 которых заполнены одним и тем же полупроводниковым материалом ($\varepsilon_{1\text{ph}}(\omega) = \varepsilon_{2\text{ph}}(\omega)$). Тогда, согласно (23) и (24), для одиночной гетероструктуры

$$\tilde{V}_{\mathbf{k}}(z) = V_k \chi_{\mathbf{k}} \beta^2 k^2 e^{-qz},$$

а для двойной

$$\tilde{V}_{\mathbf{k}}(z) = V_k \frac{\chi_{\mathbf{k}}}{\eta_-(\omega)} \beta^2 k^2 \Big[e^{-qz} + \big(\eta_+(\omega) - 1\big) e^{q(z+2a)} \Big].$$

Дальнейшие расчеты связаны с выбором конкретной модели квантовой точки. Рассмотрим сферическую квантовую точку радиуса R_0 в режиме сильного размерного ограничения, т.е. при условии, что экситонный радиус Бора R_B объемного материала квантовой точки больше R_0 . В этом случае, если электронная подсистема квантовой точки ограничена бесконечно высоким потенциальным барьером, волновые функции и энергетиче-

ский спектр электронов имеют следующий вид:

$$\Psi_{nlm}(\mathbf{r}) = Y_{lm}(\theta, \varphi) \sqrt{\frac{2}{R_0^3}} \frac{j_l(\xi_{nl}r/R_0)}{j_{l+1}(\xi_{nl})}, \quad E_{n,l} = \frac{\hbar^2 \xi_{nl}^2}{2mR_0}$$

где ξ_{nl} — *n*-й корень сферической функции Бесселя порядка l ($j_l(\xi_{nl}) = 0$). Если потенциальный барьер V_0 конечный, волновые функции могут быть представлены [28] как

$$\begin{split} \Psi_{nlm}(\mathbf{r}) &= Y_{lm}(\theta, \varphi) R_{nl}(r), \\ R_{nl}(r) &= \sqrt{\frac{2}{R_0^3}} \left[j_l^2(x_1) k_{l-1}(x_2) k_{l+1}(x_2) \right. \\ &\quad \left. - k_l^2(x_2) j_{l-1}(x_1) j_{l+1}(x_1) \right]^{-1/2} \\ &\quad \left. \times \begin{cases} k_l(x_2) j_l(x_1 r/R_0), & r \leq R_0, \\ j_l(x_1) k_l(x_2 r/R_0), & r > R_0, \end{cases} \right] \end{split}$$

где

$$x_1 = R_0 \sqrt{2m_1 E_{nl}/\hbar^2}, \qquad x_2 = R_0 \sqrt{2m_2 (V_0 - E_{nl})/\hbar^2},$$

 k_l — модифицированная сферическая функция Бесселя, m_1 и m_2 — эффективные массы электрона внутри и вне квантовой точки, а энергии состояний E_{nl} определяются секулярным уравнением

$$m_2 x_1 k_l(x_2) j'_l(x_1) = m_1 x_2 k'_l(x_2) j_l(x_1).$$

Поскольку электронные состояния вырождены по проекции углового момента *m*, выражение (25) необходимо усреднить по начальным состояниям с одинаковыми квантовыми числами *l* и *n* и просуммировать по конечным состояниям с одинаковыми *l'* и *n'*, т. е. применить операцию

$$\frac{1}{2l+1}\sum_{m,m'}.$$
 (26)

При вычислении матричных элементов в (25) встречаются величины

$$\int d\mathbf{r} \Psi_{n'l'm'}^*(\mathbf{r}) \left(a e^{-qr(\cos\theta - i\sin\theta\cos\varphi)} + b e^{qr(\cos\theta + i\sin\theta\cos\varphi)} \right) \Psi_{nlm}(\mathbf{r}),$$

которые с помощью коэффициентов Клебша–Гордона $C_{lm,l''m''}^{l'm'}$ [29] можно преобразовать к следующему виду:

$$\sqrt{\frac{2l+1}{2l'+1}} \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{t=-p}^{t=p} \frac{J_{n'l',nl}^{(p)} (qR_0)^p}{\sqrt{(p-t)!(p+t)}} \times \left[(-1)^p i^t a + (-i)^t b \right] C_{l0,p0}^{l'0} C_{lm,pt}^{l'm'}, \quad (27)$$

Физика и техника полупроводников, 2004, том 38, вып. 9

где

$$J_{n'l',nl}^{(p)} = \frac{2}{j_{l'+1}(\xi_{n'l'})j_{l+1}(\xi_{nl})} \int_{0}^{1} dx \, x^{2+p} j_{l'}(\xi_{n'l'}(x)j_{l}(\xi_{nl}x))$$

для квантовых точек с бесконечным потенциальным барьером и

$$\begin{split} J_{n'l',nl}^{(p)} &= 2A_{n'l'}A_{nl} \bigg[B_{n'l'}^{nl} \int_{0}^{1} dx \, x^{2+p} j_{l'}(x_1x) j_l(x_1x) \\ &+ C_{n'l'}^{nl} \int_{1}^{\infty} dx \, x^{2+p} k_{l'}(x_2x) k_l(x_2x) \bigg], \\ A_{nl} &= \big[j_l^2(x_1) k_{l-1}(x_2) k_{l+1}(x_2) \\ &- k_l^2(x_2) j_{l-1}(x_1) j_{l+1}(x_1) \big]^{-1/2}, \\ B_{n'l'}^{nl} &= k_{l'}(x_2) k_l(x_2), \qquad C_{n'l'}^{nl} &= j_{l'}(x_1) j_l(x_1) \end{split}$$

при конечной величине потенциального барьера V₀.

Поскольку только величины (27) зависят от квантовых чисел m и m', операцию (26) можно провести над квадратом их модуля. В результате получаем выражение

$$\left(|a|^2+|b|^2\right)\sum_{p=0}^{\infty}\frac{\left(J_{n'l',nl}^{(p)}\,C_{l0,p0}^{l'0}\right)^2}{(2p+1)!}\,(2qR_0)^{2p},$$

которым определяются правила отбора для электронных переходов квантовой точки. Таким образом, для одиночной гетероструктуры скорость релаксации равна

$$W_{b\pm}^{(n'l',nl)} = \frac{2m\beta^2 q^3(\Omega)}{\pi\hbar n_0} \sum_{p=0}^{\infty} \left[2R_0 q(\Omega)\right]^{2p} \frac{\left(J_{n'l',nl}^{(p)} C_{l0,p0}^{l'0}\right)^2}{(2p+1)!} \\ \times \int_{0}^{1} \frac{d\tau e^{-2q(\Omega)a\tau} \tau^{2p+1} \sqrt{1-\tau^2}}{1+a_s(\Omega)(1-\tau^2)}, \qquad (28)$$

в то время как для двойной гетероструктуры

$$W_{b\pm}^{(n'l',nl)} = \frac{2m\beta^2 q^3(\Omega)}{\pi\hbar n_0} \sum_{p=0}^{\infty} \left[2R_0 q(\Omega)\right]^{2p} \frac{\left(J_{n'l',nl}^{(p)} C_{l0,p0}^{l'0}\right)^2}{(2p+1)!} \\ \times \int_0^1 \frac{d\tau e^{-2q(\Omega)a\tau} \tau^{2p+1} \sqrt{1-\tau^2}}{1+a_d(\Omega)(1-\tau^2)} \\ \times \frac{1+\left(\eta_+(\Omega)-1\right)^2 e^{4q(\Omega)a\tau}}{\eta_-^2(\Omega)},$$
(29)

6* Физика и техника полупроводников, 2004, том 38, вып. 9

где

$$\begin{split} a_s(\Omega) &= \left[\frac{\Omega\beta q(\Omega)}{\gamma_0(\Omega)}\right]^2,\\ a_d(\Omega) &= \frac{\beta^2 q^2(\Omega) \left[\beta^2 q^2(\Omega) + 2\gamma_0(\Omega)\eta_-(\Omega)\right]}{\gamma_0^2(\Omega)\eta_-^2(\Omega)},\\ \gamma_0(\Omega) &= \frac{\varepsilon_{1\infty}}{2\varepsilon_{1\rm ph}(\Omega)}\omega_{\rm p}^2,\\ \eta_{\pm}(\Omega) &= 1 \pm \frac{\varepsilon_{1\rm ph}(\Omega) - 1}{\varepsilon_{1\rm ph}(\Omega) + 1}e^{-2dq(\Omega)\tau},\\ q(\Omega) &= \frac{1}{\beta}\sqrt{\frac{\left[\Omega^2 - \omega_{b+}^2(0)\right]\left[\Omega^2 - \omega_{b-}^2(0)\right]}{\left(\Omega^2 - \omega_{1\rm L}^2\right)}}, \end{split}$$

причем для верхней плазмон-фононной ветви $\omega_{b+}(k)$ (рис. 2) выполняется соотношение $\Omega \ge \omega_{b+}(0)$, а для нижней ветви $\omega_{b-}(k)$ частота перехода Ω ограничена двойным неравенством $\omega_{b-}(0) \le \Omega < \omega_{1T}$.



Рис. 4. *а* — зависимости пиковых значений скоростей релаксации от расстояния *а* между квантовой тонкой и легированной областью гетероструктуры. *b* — спектры скорости внутризонной релаксации носителей заряда в квантовой точке, встроенной в одиночную гетероструктуру, для различных концентраций легирующей примеси n_0 , см⁻³: сплошная линия — 10^{18} , пунктирная — $0.75 \cdot 10^{18}$, штриховая — $0.5 \cdot 10^{18}$. Символами L_+ и L_- обозначены релаксационные окна, формирующиеся благодаря испусканию объемных плазмон-фононных мод, принадлежащих верхней и нижней дисперсионным ветвям (рис. 2) соответственно.



Рис. 5. Спектры скоростей внутризонной релаксации носителей заряда в квантовой точке, встроенной в одиночную гетероструктуру (сплошная линия) и в двойную гетероструктуру для различных толщин собственного слоя *d*, нм: штриховая линия — 80, штрихпунктирная линия — 70, пунктирная линия — 60.

На рис. 4, b представлены зависимости скоростей внутризонной релаксации (28) в сферической квантовой точке с бесконечным потенциальным барьером, встроенной в одиночную гетероструктуру на расстоянии 50 нм от легированной области, от разности энергий ħΩ между нижайшими начальным и конечным состояниями электрона. Предполагалось, что гетероструктура образована легированным n-GaAs и собственным GaAs, а материалом квантовой точки является InAs (рис. 3). Видно, что взаимодейстие электронной подсистемы квантовой точки с объемными плазмон-фононными модами приводит к возникновению двух релаксационных окон $(L_{\perp} \, u \, L_{-})$, спектральное положение которых зависит от концентрации легирующей примеси, а ширина окон определяется дисперсией плазмон-фононных мод. Релаксационное окно L₊ формируется благодаря испусканию плазмон-фононных мод, принадлежащих верхней дисперсионной ветви (рис. 2), а окно L_ соответствует испусканию плазмон-фононных мод нижней дисперсионной ветви. На рис. 4, а показана зависимость пикового значения скоростей внутризонной релаксации от расстояния а между квантовой точкой и легированной областью гетероструктуры. Пиковое значение скоростей релаксации даже в случае, когда a = 100 нм, составляет величину порядка $10^8 c^{-1}$. Поскольку она близка к скоростям межзонной рекомбинации электронно-дырочных пар в квантовых точках, рассматриваемый механизм может давать существенный вклад в полную скорость дефазировки оптических переходов. При уменьшении величины а скорости внутризонной релаксации существенно возрастают (см. рис. 4). При a = 50 нм они составляют несколько единиц на $10^9 c^{-1}$ и достигают значений порядка $10^{11} c^{-1}$ при a = 20 нм. Так как эти величины сопоставимы со скоростями, характерными для других механизмов релаксации [7,15], можно сделать вывод о том, что рассматриваемый механизм вполне конкурентоспособен и должен учитываться как при анализе оптических спектров реальных гетероструктур, содержащих квантовые точки, так и при конструировании соответствующих наноэлектронных приборов.

Для оценки влияния конструкции гетероструктуры на скорость внутризонной релаксации с участием объемных плазмон-фононных мод на рис. 5 представлены спектры $W_{b\pm}^{(n'l',nl)}(\Omega)$ для одиночной и двойной гетероструктуры при различных толщинах d слоя собственного полупроводника. В расчетах использовались материальные параметры, описанные выше. Видно, что наличие второй границы слабо изменяет величины скоростей релаксации. Даже в случае, когда квантовая точка почти прижата к границе раздела между собственным материалом и воздухом, относительное увеличение скоростей релаксации составляет лишь 25%. Форма и спектральное положение релаксационных окон практически не зависят от d.

Аналогичный анализ легко провести и для квантовых точек с конечным потенциальным барьером и обладающих другой формой. Он показывает, что все рассмотренные особенности процесса релаксации сохраняются и в этом случае.

4. Заключение

Показано, что наличие дисперсии объемных плазмон-фононных мод приводит к проникновению индуцируемых ими электрических полей из легированной части гетероструктуры в собственную. В результате имеет место взаимодействие между электронной подсистемой квантовой точки, находящейся в собственной части гетероструктуры, и этими электрическими полями. Взаимодействие приводит к появлению двух новых окон внутризонной релаксации квантовых точек, соответствующих двум ветвям дисперсии объемных плазмон-фононных колебаний.

На примере квантовых точек InAs сферической формы, встроенных в гетероструктуру GaAs, была проведена оценка скоростей внутризонной релаксации, обусловленной новым механизмом, в зависимости от расстояния а между квантовой точкой и легированной подложкой, а также от концентрации легирующей примеси n₀. Было показано, что для характерных концентраций $n_0 \approx 10^{18} \, {\rm cm}^{-3}$ рассматриваемый механизм является достаточно эффективным даже при относительно больших значениях а вплоть до 100 нм. Если же расстояние между квантовой точкой и подложкой составляет несколько десятков нанометров, то новый механизм релаксации может стать доминирующим. В этом случае появляется возможность управления электронной динамикой квантовой точки. Это связано с тем, что спектральное положение релаксационных окон зависит от концентрации свободных носителей в легированной

Важнейшим вопросом, возникающим в связи с обсуждаемым в работе механизмом внутризонной релаксации, является вопрос о надежном экспериментальном наблюдении таких процессов. Для ответа на него необходимо проанализировать возможное проявление внутризонной релаксации квантовых точек, обусловленной взаимодействием с плазмон-фононными модами легированной части гетероструктуры, в каком-либо оптическом эксперименте. Так, например, релаксационные процессы в самоорганизованных квантовых точках часто исследуются методом фотолюминесценции [10,30]. В настоящее время имеются предварительные экспериментальные данные по фотолюминесценции самоорганизованных квантовых точек, встроенных в двойную гетероструктуру [31], из которых следует, что новый механизм релаксации действительно существует и приводит к появлению двух отчетливых спектральных линий L_+ и L_- .

Поскольку в легированных элементах гетероструктуры могут существовать не только объемные, но и поверхностные плазмон-фононные возбуждения, несомненный интерес представляет вопрос об их роли в процессах внутризонной релаксации носителей заряда в квантовых точках. Это интересная проблема будет рассмотрена в следующей работе.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить Российский фонд фундаментальных исследований (проект № 02-02-17311) и программу INTAS (гранты N 01-2100 и N 01-2331) за финансовую поддержку работы.

Список литературы

- [1] L. Guo, E. Leobandung, S.Y. Chou. Science, 275, 649 (1997).
- [2] T. Itakura, Y. Tokura. Phys. Rev. B, 67, 195 320 (2003).
- [3] K. Yano, T. Ishii, T. Sano, T. Mine, F. Murai, T. Hashimoto, T. Koboyashi, T. Kure, K. Seki. Proc. IEEE, 87, 633 (1999).
- [4] M. Dutta, M.A. Stroscio. Abvances in semiconductor lasers and applications to optoelectronics (World Scientific, Singapore, 2000).
- [5] A.V. Baranov, V. Davydov, H.-W. Ren, S. Sugou, Y. Masumoto. J. Lumines., 87-89, 503 (2000).
- [6] X-Q. Li, Y. Arakawa. Phys. Rev. B, 57, 12285 (1998).
- [7] X-Q. Li, H. Nakayama, Y. Arakawa. Phys. Rev. B, 59, 5069 (1999).
- [8] F. Gindele, K. Hild, W. Langbain, U. Woggon. Phys. Rev. B, 60, 2157 (1999).
- [9] T. Inoshita, H. Sakaki. Phys. Rev. B, 46, 7260 (1992).
- [10] R. Heitz, M. Veit, N.N. Ledentsov, A. Hoffman, D. Bimberg, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Phys. Rev. B, 56, 10435 (1997).

- [11] P.C. Sersel. Phys. Rev. B, 51, 14532 (1995).
- [12] D.F. Schroeter, D.F. Griffits, P.C. Sersel. Phys. Rev. B, 54, 1486 (1996).
- [13] X-Q. Li, Y. Arakawa. Phys. Rev. B, 56, 10423 (1997).
- [14] U. Bockelmann, T. Egeler. Phys. Rev. B, 46, 15574 (1992).
- [15] A.L. Efros, V.A. Kharchenko, M. Rosen. Sol. St. Commun., 93, 281 (1995).
- [16] A.V. Fedorov, A.V. Baranov, Y. Masumoto. Sol. St. Commun., 122, 139 (2002).
- [17] U. Bockelmann, G. Bastard. Phys. Rev. B, 42, 8947 (1990).
- [18] H. Benisty. Phys. Rev. B, 51, 13281 (1995).
- [19] A.V. Uskov, K. Nishi, R. Lang. Appl. Phys. Lett., 74, 3081 (1999).
- [20] E. Evans, D.L. Mills. Phys. Rev. B, 8, 4004 (1973).
- [21] N. Mori, T. Ando. Phys. Rev. B, 40, 6175 (1989).
- [22] B.K. Ridley. Phys. Rev. B, 49, 17253 (1994).
- [23] F. Comas, C. Trallero-Giner, M. Cardona. Phys. Rev. B, 56, 4115 (1997).
- [24] A. Mooradian, A.L. McWhorter. Phys. Rev. Lett., 19, 849 (1967).
- [25] R.H. Ritchie, R.E. Wilems. Phys. Rev., 178, 372 (1969).
- [26] J. Harris. Phys. Rev. B, 4, 1022 (1971).
- [27] L. Kleinman. Phys. Rev. B, 7, 2288 (1973).
- [28] K. Vahala. IEEE J. Quant. Electron., QE-24, 523 (1988).
- [29] Д.А. Варшалович, А.Н. Москалев, В.К. Херсонский. Квантовая теория углового момента (Л., Наука, 1975).
- [30] K.H. Schmidt, G. Mederios-Ribero, M. Oestreich, P.M. Prtroff, G.H. Döhler. Phys. Rev. B, 54, 11 346 (1996).
- [31] A.V. Baranov, A.V. Fedorov, I.D. Rukhlenko, Y. Masumoto. Phys. St. Sol. (c), 0, 1217 (2003).

Редактор Т.А. Полянская

Plasmon-phonon assisted charge carrier relaxation in quantum dots

A.V. Fedorov, A.V. Baranov

S.I. Vavilov State Optical Institute, 199034 St. Petersburg, Russia

Abstract A new mechanism of the intraband charge carrier relaxation of quantum dots embedded in heterostructures at a relatively long distance between the quantum dot and doped areas of the heterostructure is discussed. The relaxation process is determined by a coupling between the quantum dot electronic subsystem and plasmon-phonon excitations of the heterostructure doped areas via an electric potential induced by the excitations. It is shown that this type of interaction (with bulk plasmon-LO-phonon modes) is only possible due to their spatial dispersion. The relaxation rate estimations indicate that the considered mechanism is effective enough even in case the distance between the quantum dot and the heterostructure doped area is as big as 100 nm. In this way, the mechanism becomes dominating.