

Nghiên cứu sự ảnh hưởng của phối tử InF_3 đến tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử loại II CdTe-ZnSe

Nguyễn Thị Bảo Trang¹, Nguyễn Võ Anh Duy¹, Nguyễn Văn Phim², Phạm Vũ Nhật², Đặng Minh Triết^{2,*}



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ (density functional theory) có tích hợp với hiệu ứng spin lượng tử (spin-orbit coupling) để khảo sát tính chất quang điện tử của chấm lượng tử loại II CdTe-ZnSe thuần và chấm lượng tử có gắn phối tử InF_3 . Chúng tôi đã chỉ ra rằng, khi đính kèm phối tử InF_3 vào chấm lượng tử loại II CdTe-ZnSe , phổ hấp thụ quang học thực hiện chuyển dịch xanh về vùng năng lượng cao hơn so với phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử CdTe-ZnSe thuần. Khi chúng tôi chủ động tăng hoặc giảm khoảng cách giữa hai chấm lượng tử đơn bên trong chấm lượng tử loại II thì độ rộng vùng cấm của chúng cũng tăng hoặc giảm tương ứng. Dưới sự ảnh hưởng của phối tử InF_3 , độ rộng vùng cấm của chấm lượng tử này tăng so với mẫu chấm lượng tử loại II thuần của chúng. Đồng thời, khi tăng khoảng cách giữa hai chấm lượng tử đơn bên trong chấm lượng tử loại II, phổ hấp thụ quang thực hiện dịch chuyển đỏ và đỉnh hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II có phối tử InF_3 được tăng lên mạnh mẽ so với chấm lượng tử thuần tương ứng. Kết quả nghiên cứu này cho thấy sự ảnh hưởng rõ nét của phối tử InF_3 trong việc tăng cường khả năng hấp thụ năng lượng Mặt trời dẫn đến thay đổi hiệu suất chuyển đổi quang năng thành điện năng của các tấm pin năng lượng mặt trời có tích hợp chấm lượng tử loại II CdTe-ZnSe .

Từ khoá: chấm lượng tử loại II, CdTe-ZnSe , phối tử InF_3 , pin mặt trời

¹Đại học FPT, 600 Nguyễn Văn Cừ, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

²Trường Đại học Cần Thơ, Đường 3/2, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

Liên hệ

Đặng Minh Triết, Trường Đại học Cần Thơ, Đường 3/2, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

Email: dmtriet@ctu.edu.vn

Lịch sử

- Ngày nhận: 11-10-2023
- Ngày sửa đổi: 13-9-2024
- Ngày chấp nhận: 02-02-2025
- Ngày đăng: 31-3-2025

DOI:

<https://doi.org/10.32508/stdjns.v9i1.1319>



Bản quyền

© ĐHQG Tp.HCM. Đây là bài báo công bố mở được phát hành theo các điều khoản của the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



MỞ ĐẦU

Trong những năm gần đây, việc sử dụng các chấm lượng tử có kích thước từ vài nanomet đến vài trăm nanomet để cải thiện hiệu suất chuyển đổi quang năng thành điện năng cho pin Mặt trời đã đạt được rất nhiều thành tựu đáng quan tâm¹⁻⁶. Nhờ hiệu ứng giam cầm lượng tử trong nội tại các chấm lượng tử hoặc giữa các chấm lượng tử liên kế⁶, khi các electron từ vùng hóa trị nhảy lên vùng dẫn, một cặp electron-lỗ trống sẽ được hình thành. Trạng thái liên kết của cặp electron-lỗ trống làm phát quang một “hạt exciton”. Năng lượng của hạt exciton này nhỏ hơn độ rộng vùng cấm của chấm lượng tử nên việc hình thành các hạt exciton này giúp mở rộng phổ hấp thụ quang học về vùng năng lượng thấp (chuyển dịch đỏ). Điều này làm tăng đáng kể hiệu suất phát quang của pin Mặt trời. Những tính chất đặc biệt này giúp cho các tấm pin năng lượng Mặt trời có tích hợp chấm lượng tử trở nên ưu thế hơn so với các loại vật liệu truyền thống khác⁷⁻¹⁰. Ngoài ra, chấm lượng tử còn được ứng dụng rộng rãi trong kỹ thuật chế tạo các thiết bị quang-điện tử như LED hoặc transistor hiệu ứng trường^{11,12}, lĩnh vực y sinh^{11-13 14-16} và đặc biệt là máy tính lượng tử¹⁷⁻²⁰.

Chấm lượng tử có chứa các nguyên tử IV-VI chalcogenide như Selenium (Se) hoặc Tellurium (Te) gần

đây được nghiên cứu sâu rộng về cả về lý thuyết, mô phỏng và thực nghiệm²¹⁻²⁶. Chúng được ứng dụng rộng rãi trong thiết bị quang-điện tử và cả trong y học^{22,27-31}. Các chấm lượng tử này thường được tổng hợp bằng phương pháp bơm áp suất cao, nhiệt phân các tiền chất hoặc dựa trên phản ứng khử halogen, ...^{32,33}. Cấu trúc bề mặt, hình thái học và kích thước của các chấm lượng tử này có thể được điều khiển chủ động bằng các kỹ thuật hóa học tiên tiến^{34,35}. Ngoài các chấm lượng tử được hình thành từ các đơn chất, chúng ta còn có thể kết hợp các chấm lượng tử đơn thành các chấm lượng tử dị thể, từ đó chúng ta có thể điều khiển độ rộng vùng cấm và phổ hấp thụ quang một cách chủ động hơn³⁶⁻⁴⁰. Các chấm lượng tử dị thể thường được chia thành ba loại gồm chấm lượng tử loại I, loại II và loại III. Xét về hình thái học, các chấm lượng tử dị thể thường được hình thành bằng cách ghép các chấm lượng tử đơn lại theo dạng core-shell, core-crown, core-wings, core-shell-shell,...⁴¹⁻⁴⁴. Bằng cách này, chúng ta có thể dễ dàng tạo được các chấm lượng tử dị thể loại I và loại II^{45,46} ở các dạng thù hình khác nhau. Để phân loại chấm lượng tử dị thể, người ta dựa vào độ chồng phủ vùng năng lượng của các chấm lượng tử đơn thành phần, cụ thể là so sánh độ lệch giữa đỉnh vùng hóa trị (HOMO) và đáy vùng dẫn (LUMO)⁴⁷⁻⁴⁹.

Trích dẫn bài báo này: Bảo Trang N T, Anh Duy N V, Văn Phim N, Vũ Nhật P, Minh Triết D. **Nghiên cứu sự ảnh hưởng của phối tử InF_3 đến tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử loại II CdTe-ZnSe .** *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2025; 9(1):3307-3318.

Thực nghiệm đã chứng tỏ rằng, chấm lượng tử loại II giúp cải thiện đáng kể khả năng hấp phụ quang và đỉnh vùng hóa trị và đáy vùng dẫn của hai chấm lượng tử đơn thành phần so le nhau. Loại chấm lượng tử bán dẫn này cho phép tăng cường tuổi thọ của chúng do có tỷ lệ tái tổ hợp thấp^{36,39}. Hơn thế nữa, tính chất quang-điện tử của các chấm lượng tử còn có thể được điều khiển bằng cách tích hợp các phối tử bề mặt của chấm lượng tử giúp làm tăng độ ổn định cấu trúc và quá trình hiệu chỉnh đặc tính quang-điện tử của chấm lượng tử với các dạng thù hình đặc biệt^{29,34-36,50,51 52,53}.

Chính vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi đã sử dụng phương pháp mô phỏng dựa theo nguyên lý ban đầu để tạo ra các chấm lượng tử dị thể loại II Cd₆Te₆-Zn₆Se₆ và chủ động gắn phối tử InF₃ vào các chấm lượng tử này với mục đích khảo sát sự ảnh hưởng của phối tử lên tính chất quang-điện tử của chúng. Dựa trên sự thay đổi về cấu trúc vùng năng lượng và phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử thuần và chấm lượng tử có phối tử, chúng tôi có thể dự đoán được tiềm năng ứng dụng của chấm lượng tử này trong việc chế tạo các vật liệu phát quang ứng dụng trong y sinh, thiết bị quang-điện tử, các thiết bị lưu trữ năng lượng và đặc biệt là các tấm pin mặt trời thế hệ mới.

PHƯƠNG PHÁP TÍNH TOÁN

Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng lý thuyết phiếm hàm mật độ (DFT) được tích hợp trong gói phần mềm AMS2023.101^{54,55} để xác định cấu trúc bền vững, khảo sát tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử loại II Cd₆Te₆-Zn₆Se₆ thuần và chấm lượng tử Cd₆Te₆-Zn₆Se₆ có gắn phối tử InF₃. Quá trình tối ưu hóa cấu trúc của các chấm lượng tử được thực hiện thông qua phương pháp tối ưu hình học Quasi Newton⁵⁶. Ngưỡng hội tụ cho các tính toán trường tự hợp được đặt ở 10⁻³ Hartree/Å và điều kiện tối ưu về lực là 10⁻³ Hartree. Để nâng cao độ tin cậy của các tính toán lý thuyết về phổ hấp thụ quang học của các chấm lượng tử dị cấu trúc này, ngoài phiếm hàm tương quan trao đổi xấp xỉ gradient tổng quát GGA dưới dạng PBE⁵⁷, chúng tôi sử dụng bộ hàm cơ sở triple zeta-potential (TZP) và tích hợp hiệu ứng spin-orbit coupling (SOC)⁵⁸ và phương pháp time-dependent density functional theory. Thông qua việc tích hợp hiệu ứng SOC trong các tính toán lý thuyết về phổ hấp thụ quang học và hàm điện môi phức, chúng tôi có thể dự đoán chính xác trạng thái exciton được hình thành trong quá trình phát quang của các chấm lượng tử, tương tự như tính toán gần đây của chúng tôi về cho vật liệu kim loại chuyển tiếp Rhenium disulfide⁵⁹. Ngoài ra, để tăng độ tin cậy của các tính toán về độ rộng vùng cấm, phiếm hàm lai HSE06⁶⁰ cũng

được sử dụng cho các chấm lượng tử thuần để đối chiếu với phiếm hàm PBE tích hợp hiệu ứng spin-orbit coupling.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

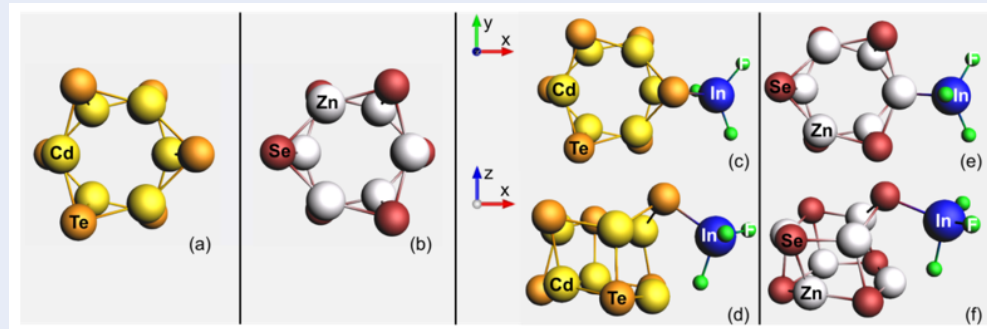
Tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử thuần

Cấu trúc hình học

Để nghiên cứu tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử dị thể loại II Cd₆Te₆-Zn₆Se₆, chúng tôi tiến hành tạo lập và tối ưu hóa cấu trúc hai chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆. Cấu hình tối ưu hóa của hai chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ được thể hiện tương ứng trong Hình 1(a-b). Ở cơ sở của các cấu hình được tối ưu hóa là một mạng lục giác với nhóm đối xứng không gian là D_{3d}^3 và rất phù hợp với các công bố trước đó^{21,61}. Kích thước (L) của các mẫu chấm lượng tử trong nghiên cứu được xác định là đoạn thẳng dài nhất nối liền hai nguyên tử khác nhau trong mỗi mẫu. Kích thước của chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ lần lượt là 5,48 Å và 4,72 Å. Điều này cho thấy, chấm lượng tử Zn₆Se₆ có kích thước nhỏ hơn Cd₆Te₆ rõ rệt dù có cùng số lượng nguyên tử. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu đã được công bố trước đây^{62,63}. Từ cấu hình tối ưu hóa của các chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆, chúng tôi gắn phối tử InF₃ để tạo cấu trúc InF₃Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆InF₃. Phối tử InF₃ được gắn bởi nguyên tử In lần lượt vào nguyên tử Te và Se của hai chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ như Hình 1(c-f). Ở cơ sở của các cấu hình được tối ưu hóa vẫn đáp ứng là một mạng lục giác với nhóm đối xứng không gian là . Kích thước của chấm lượng tử Cd₆Te₆InF₃ và Zn₆Se₆InF₃ lần lượt là 9,94 Å và 8,82 Å.

Tính chất điện tử

Cấu trúc vùng năng lượng của các mẫu chấm lượng tử đơn Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ thuần và có gắn phối tử InF₃ được trình bày như Hình 2. Do trạng thái năng lượng của các chấm lượng tử được lượng tử hóa như những nguyên tử cô lập, dễ thấy cấu trúc vùng năng lượng xung quanh mức Fermi có dạng đường thẳng. Độ rộng vùng cấm được xác định bằng độ lệch năng lượng từ đỉnh vùng hóa trị (HOMO) đến đáy của vùng dẫn (LUMO). Độ rộng vùng cấm của Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ ở trạng thái cơ bản lần lượt là 1,90 và 2,57 eV (PBE+SOC và HSE06), 2,32 và 3,38 eV (PBE+SOC và HSE06). Kết quả này của chúng tôi phù hợp với các nghiên cứu trước đó^{38,64}. Từ giản đồ cấu trúc vùng năng lượng, dễ dàng thấy vùng cấm của Cd₆Te₆ và Zn₆Se₆ so le nhau, cụ thể là đáy vùng dẫn và đỉnh vùng hóa trị của Cd₆Te₆ đều cao hơn Zn₆Se₆. Vì



Hình 1: Cấu hình tối ưu hóa của bốn chấm lượng tử đơn: Cd_6Te_6 (a), Zn_6Se_6 (b), $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$ (c, d) và $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ (e, f), trong đó c, d và e, f lần lượt là cấu hình theo hướng nhìn từ trên xuống và nhìn từ mặt bên.

trí tương đối của vùng hóa trị và vùng dẫn này cho phép các electron di chuyển từ vùng dẫn của Cd_6Te_6 sang vùng dẫn của Zn_6Se_6 , trong khi lỗ trống sẽ di chuyển từ vùng hóa trị của Zn_6Se_6 đến vùng hóa trị của Cd_6Te_6 . Mặc khác, các lỗ trống của Cd_6Te_6 có thể kết hợp với các điện tử của Zn_6Se_6 tại bề mặt tiếp xúc để tạo ra các cặp electron-lỗ trống sẵn có cho hoạt động quang xúc tác. Do đó, chấm lượng tử loại II Cd_6Te_6 - Zn_6Se_6 của chúng tôi có tỷ lệ phân tách điện tích cực kì ấn tượng và tỷ lệ tái tổ hợp thấp. Từ đó, quá trình kết cặp này góp phần tăng cường tuổi thọ của các thiết bị tích hợp các chấm lượng tử này.

Hình 2 cũng trình bày cấu trúc vùng năng lượng của các chấm lượng tử Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 có gắn phối tử InF_3 . Độ rộng vùng cấm của các chấm lượng tử này lần lượt là 2,07 và 2,87 eV (PBE+SOC và HSE06), và 2,50 và 3,49 eV (PBE+SOC và HSE06). Dưới tác dụng của phối tử InF_3 , độ rộng vùng cấm của các chấm lượng tử đơn được mở rộng khoảng dưới 10%. Điều thú vị là, dù độ rộng vùng cấm được mở rộng dưới ảnh hưởng của phối tử InF_3 , cấu trúc vùng năng lượng của các chấm lượng tử mới hình thành vẫn so le nhau. Điều này giúp chúng tôi dễ dàng xây dựng chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$ - $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$. Để hiểu rõ vai trò của phối tử trong việc mở rộng độ rộng vùng cấm, chúng tôi tiến hành phân tích lượng điện tử trao đổi giữa phối tử InF_3 và chấm lượng tử thuần Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 (Bảng 1). So sánh hai loại chấm lượng tử, mức HOMO và LUMO của chấm lượng tử $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ giảm mạnh hơn so với chấm lượng tử $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$ đặc biệt là ở mức HOMO. Điều này thể hiện qua năng lượng tương tác lỗ trống và electron của $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ lớn hơn rất nhiều so với $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$. Đối với từng chấm lượng tử mức HOMO giảm mạnh hơn mức LUMO, thể hiện rõ bản chất Z-type của phối tử InF_3 .

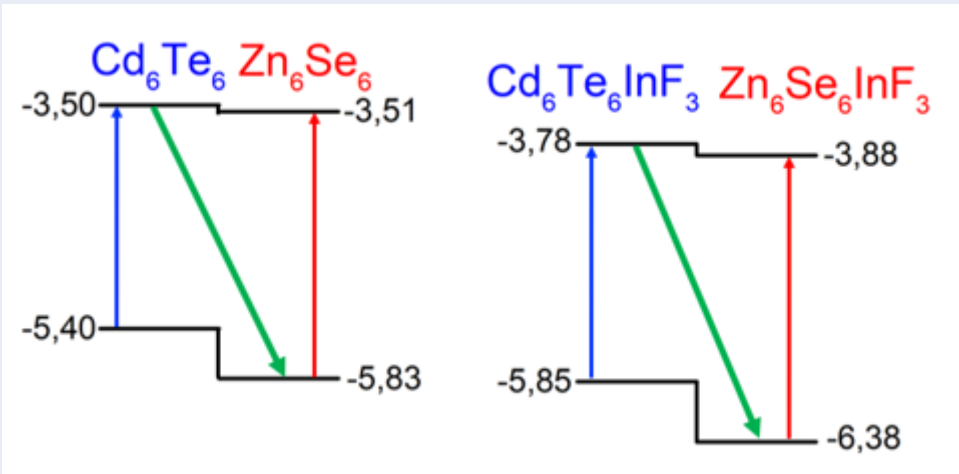
Tính chất quang

Trong phần này, chúng tôi tiến hành khảo sát tính chất quang của chấm lượng tử đơn thuần và chấm lượng tử có gắn phối tử InF_3 . Phổ hấp thụ quang học được trình bày trong bài báo này được khảo sát từ hàm điện môi phức như những công bố gần đây^{65,66}. Dựa trên phổ hấp thụ quang, chúng ta dễ dàng đánh giá tiềm năng ứng dụng của các mẫu chấm lượng tử này trong việc tích hợp vào các tấm pin năng lượng mặt trời thế hệ mới. Hình 3 trình bày phổ hấp thụ quang của các chấm lượng tử đơn và chấm lượng tử đơn có phối tử. Rất rõ ràng, chấm lượng tử đơn Zn_6Se_6 có cường độ đỉnh hấp thụ quang cực đại gấp 3,4 lần so với đỉnh hấp thụ quang tương ứng của Cd_6Te_6 . Đỉnh hấp thụ quang đầu tiên của chấm lượng tử đơn Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 lần lượt là 2,20 eV và 2,70 eV. Giá trị năng lượng này tương ứng với dịch chuyển thẳng từ mức LUMO về mức HOMO-1. Đặc biệt là khi có sự hiện diện của phối tử InF_3 , phổ hấp thụ quang của hai chấm lượng tử này dịch chuyển về vùng năng lượng cao do độ rộng vùng cấm tăng. Giá trị năng lượng tại hai đỉnh hấp thụ quang đầu tiên của chấm lượng tử có phối tử hoàn toàn phù hợp với độ rộng vùng cấm. Do đó, thông qua việc tích hợp các phối tử InF_3 vào chấm lượng tử Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 , chúng ta có thể chủ động điều khiển trạng thái hấp thụ quang của các chấm lượng tử về phía vùng năng lượng cao hơn (dịch chuyển xanh).

Tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử loại II

Cấu trúc hình học

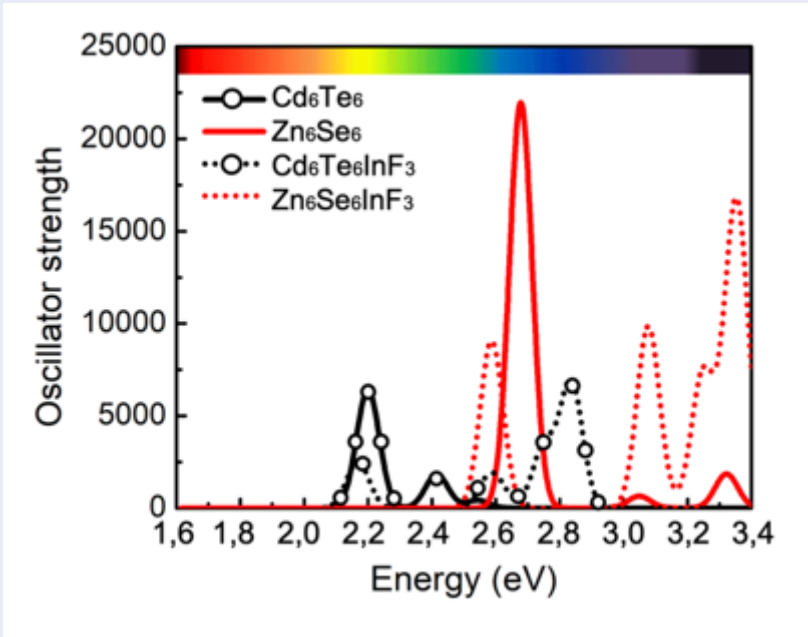
Dựa trên cấu trúc của hai chấm lượng tử đơn Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 , chúng tôi tiến hành tạo lập chấm lượng tử loại II Cd_6Te_6 - Zn_6Se_6 bằng cách đặt chúng gần nhau và đồng phẳng để chúng hình thành các liên kết



Hình 2: Cấu trúc vùng năng lượng của các chấm lượng tử Cd_6Te_6 , Zn_6Se_6 , $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$ và $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ được tính toán với phiếm hàm PBE có tích hợp hiệu ứng spin-orbit coupling. Mức chân không được đặt ở không ở tất cả các mẫu.

Bảng 1: Năng lượng tương tác electron và lỗ trống giữa phối tử InF_3 và chấm lượng tử thuần.

Mẫu	Năng lượng tương tác lỗ trống (eV)	Năng lượng tương tác electron (eV)
$\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$	0.301	0.136
$\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$	0.258	0.076



Hình 3: Phổ hấp thụ quang của các chấm lượng tử thuần Cd_6Te_6 , Zn_6Se_6 , $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3$ và $\text{Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$

cộng hóa trị. Sau khi tối ưu hóa cấu trúc, cấu hình của của chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần và có gắn phối tử được trình bày ở Hình 4 với d là khoảng cách giữa hai nguyên tử Cd và Se tương ứng của hai chấm lượng tử Cd_6Te_6 và Zn_6Se_6 . Cấu trúc chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ có xu hướng dãn nhẹ sau khi tối ưu hóa. Tuy nhiên, cấu trúc dạng lục giác của các chấm lượng tử thành phần vẫn được bảo toàn, mẫu chấm lượng tử trong nghiên cứu của chúng tôi cho cấu hình phù hợp với chấm lượng tử loại II điển hình theo tính toán dựa trên lý thuyết phiếm hàm mật độ⁶⁷. Tương tự như cách tạo lập cấu trúc chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần, chấm lượng tử loại II $\text{InF}_3\text{-Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{-InF}_3$ cũng được hình thành tương tự.

Tính chất điện tử

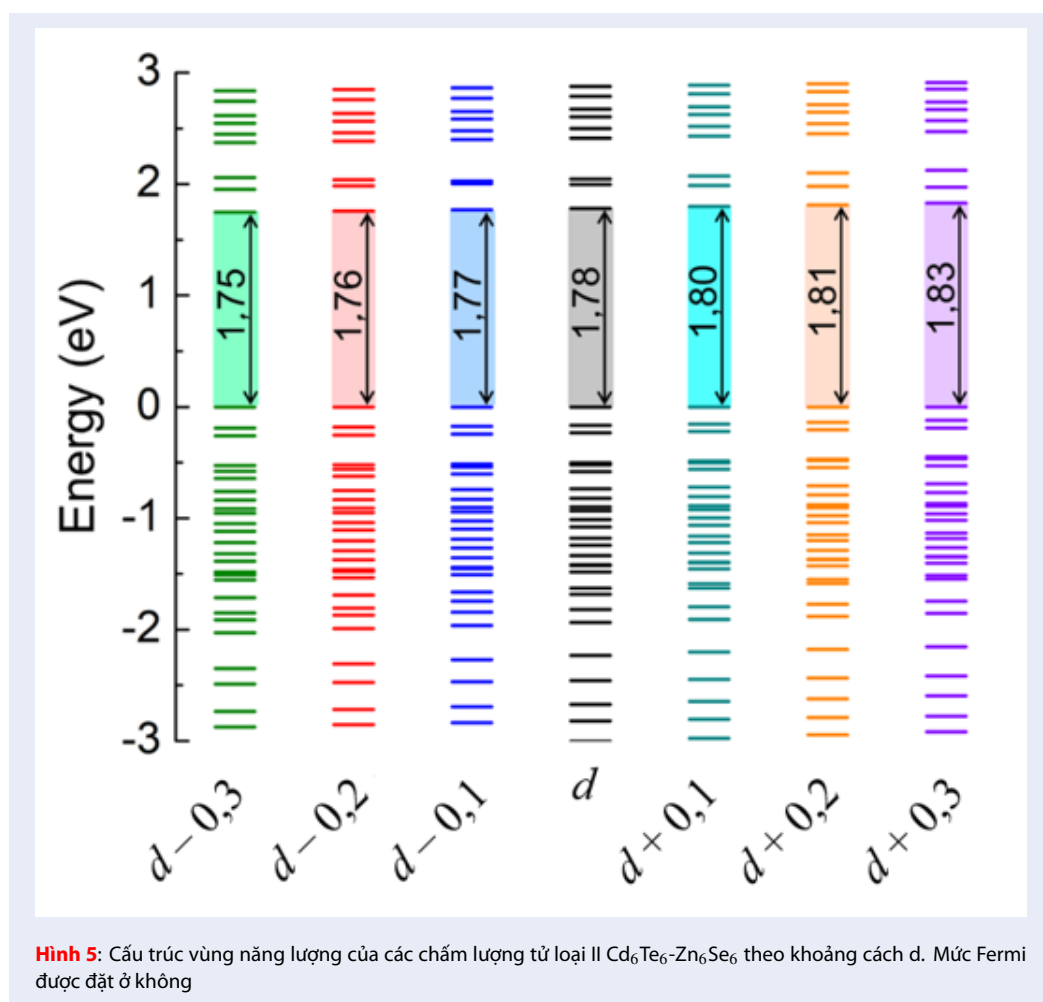
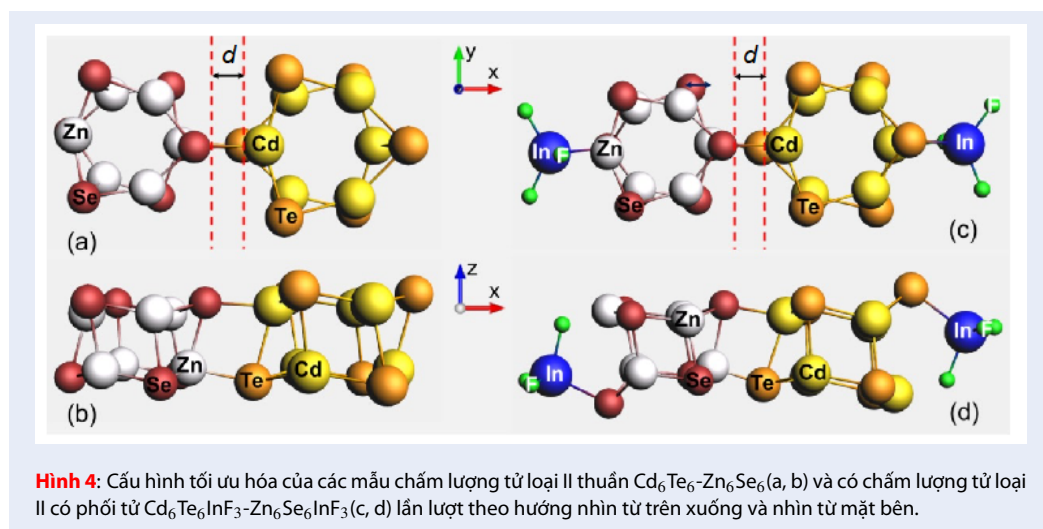
Các tính chất quang-điện tử của chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ phụ thuộc rất lớn vào khoảng cách d giữa các chấm lượng tử đơn thành phần. Nếu khoảng cách này đủ nhỏ thì hiệu ứng tương tác spin sẽ được tăng cường, làm tăng đáng kể cường độ hấp thụ quang của vật liệu. Trong Hình 5, chúng tôi trình bày cấu trúc vùng năng lượng của các mẫu chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ được khảo sát theo sự tăng/giảm khoảng cách d giữa hai chấm lượng tử đơn. Chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần ở trạng thái cơ bản với $d = 2,62 \text{ \AA}$, chúng tôi sẽ tăng/giảm khoảng cách d lần lượt $0,1 \text{ \AA}$, $0,2 \text{ \AA}$ và $0,3 \text{ \AA}$. Kết quả cho thấy, khi d giảm dần thì độ rộng vùng cấm chấm lượng tử loại II cũng giảm dần và ngược lại. Độ rộng vùng cấm của các mẫu chấm lượng tử loại II này dao động từ $1,75 \text{ eV} - 1,83 \text{ eV}$, có thể tạo ra phổ hấp thụ quang học trong vùng ánh sáng đỏ.

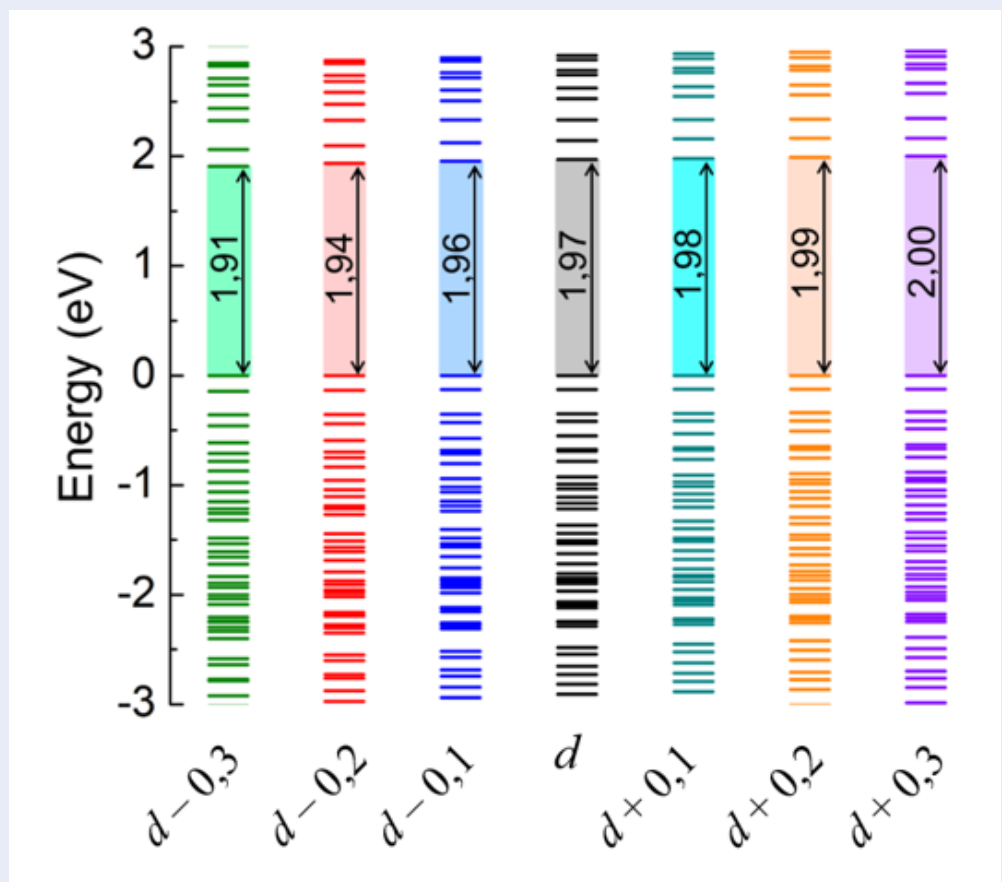
Với các chấm lượng tử loại II có phối tử $\text{InF}_3\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$, kết quả cho thấy sự thu hẹp hay mở rộng độ rộng vùng cấm cũng phụ thuộc vào xu hướng tăng hoặc giảm tương ứng khoảng cách d giữa hai chấm lượng tử thành phần (Hình 6). Rõ ràng, chấm lượng tử loại II $\text{InF}_3\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ ở trạng thái cơ bản có độ rộng vùng cấm vào khoảng $1,97 \text{ eV}$, giá trị này thậm chí còn cao hơn giá trị lớn nhất ở trạng thái kích thích trong mẫu chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần ($1,83 \text{ eV}$). Độ rộng vùng cấm của các mẫu chấm lượng tử có phối tử cho phép chúng tôi dự đoán rằng các kích thích điện tử sẽ được tạo ra một cách mạnh mẽ trong vùng khả kiến, từ đó giúp tăng cường hiệu suất chuyển đổi năng lượng của các loại vật liệu này. Kết quả về độ rộng vùng cấm của chấm lượng tử có phối tử chúng tôi cho kết quả phù hợp với các nghiên cứu về chấm lượng tử có pha tạp trước đó⁶⁸.

Tính chất quang

Tương tự như việc khảo sát phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử đơn, phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II thuần và có gắn phối tử InF_3 cũng dựa trên phần thực và ảo của hàm điện môi phức. Hình 7 trình bày phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II thuần. Giá trị đỉnh hấp thụ quang học đầu tiên của các mẫu phù hợp với độ rộng vùng cấm các mẫu chấm lượng tử loại II thuần được trình bày ở Hình 5 và tương đồng với kết quả trình bày trong TLTK^{64,69}. Để khảo sát hiệu ứng giam cầm lượng tử của các chấm lượng tử đơn bên trong chấm lượng tử loại II, chúng tôi khảo sát phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ theo khoảng cách d . Hình 7 cho thấy, vị trí đỉnh phổ ở vùng năng lượng thấp tăng khi khoảng cách d tăng, tương ứng với phổ hấp thụ quang có xu hướng dịch chuyển về vùng ánh sáng đỏ hơn và đỉnh hấp thụ quang cực đại có giá trị xấp xỉ 4601 tại mức năng lượng $1,71 \text{ eV}$. Khi giảm d thì đỉnh phổ quang ở vùng năng lượng thấp có cường độ giảm dần (Bảng 2).

Điều thú vị là dưới ảnh hưởng của phối tử, sự dịch chuyển đỉnh quang xảy ra theo chiều ngược lại. Cụ thể là các đỉnh hấp thụ quang có xu hướng dịch chuyển đỏ khi tăng khoảng cách d và chuyển xanh khi giảm khoảng cách d . Hơn thế nữa, đối với các chấm lượng tử loại II $\text{InF}_3\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ có khoảng cách d giảm, sự phân bố đỉnh có phần cục bộ hơn với sự hiện diện của hai đỉnh ở vùng ánh sáng cam và lục. Giá trị đỉnh phổ hấp thụ quang lớn nhất đạt 4152 ở năng lượng xấp xỉ $2,38 \text{ eV}$ tức vùng ánh sáng xanh lục trong vùng ánh sáng khả kiến. Hình 8 cho thấy có thay đổi đáng kể về vị trí đỉnh cũng như cường độ hấp thụ quang khi khoảng cách giữa hai chấm lượng tử đơn trong chấm lượng tử loại II tăng lên. Bảng 2 trình bày chi tiết về giá trị đỉnh phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II có phối tử. Sự tồn tại của phối tử InF_3 giúp tạo ra các trạng thái phát quang exciton đôi đảo hơn trong chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$. Điều này cho thấy hiệu suất chuyển đổi quang-điện của pin năng lượng Mặt trời có tích hợp chấm lượng tử loại II với phối tử InF_3 được cải thiện rõ nét. Kết quả nghiên cứu này rất phù hợp với kết quả quan sát thực nghiệm trong TLTK⁷⁰ và tương tự như chấm lượng tử perovskite có tích hợp phối tử loại Z CsPbI_3 trong TLTK⁷¹. Để hiểu rõ bản chất của sự tăng cường hay giảm bớt cường độ hấp thụ quang, chúng tôi tiến hành phân tích năng lượng tương tác điện tử electron và lỗ trống giữa các chấm lượng tử CdTe và ZnSe khi có và không có phối tử. Bảng 3 cho thấy, khi Cd_6Te_6 nhận thêm được năng lượng lỗ trống từ Zn_6Se_6 , phổ hấp thụ quang thể hiện sự dịch chuyển đỏ chứng tỏ





Hình 6: Cấu trúc vùng năng lượng của các chấm lượng tử loại II có phối tử $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$ theo khoảng cách d . Mức Fermi được đặt ở không

trạng thái exciton được hình thành. Trong trường hợp tích hợp phối tử loại Z InF_3 , do phối tử InF_3 chỉ tương tác với electron ở đỉnh vùng hóa trị, khi Zn_6Se_6 nhận thêm được năng lượng electron từ Cd_6Te_6 , phổ hấp thụ quang thể hiện sự dịch chuyển đỏ và cường độ phổ hấp thụ quang được tăng lên đáng kể. Điều này tương đồng với việc hình thành trạng thái exciton trong mẫu. Kết quả này cho thấy vai trò đặc biệt của phối tử InF_3 trong việc cải thiện hiệu suất hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II có tích hợp phối tử và phù hợp với kết quả quan sát thực nghiệm được công bố gần đây⁷⁰.

KẾT LUẬN

Chúng tôi đã trình bày chi tiết các thông số cấu hình mô phỏng, so sánh tính chất quang-điện tử của các mẫu chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần và các mẫu chấm lượng tử có gắn phối tử InF_3 tương ứng. Các kết quả cho thấy, khi tăng khoảng cách giữa các chấm lượng tử thành phần thì độ rộng vùng cấm của các chấm lượng tử loại II cũng tăng và ngược lại.

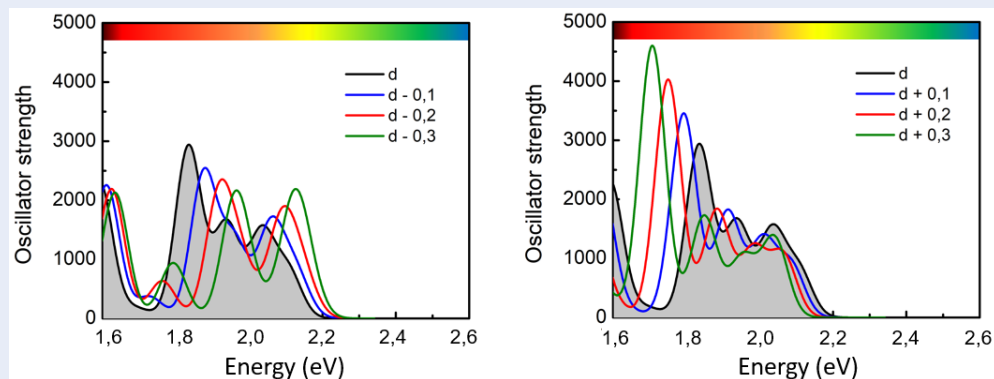
Hơn thế nữa, các mẫu chấm lượng tử loại II có phối tử InF_3 cho giá trị độ rộng vùng cấm lớn hơn các mẫu thuần tương ứng. Chúng tôi cũng chỉ ra rằng sự thay đổi độ rộng vùng cấm có quan hệ chặt chẽ đến sự xuất hiện của các kích thích điện tử trong các hiệu ứng quang-điện tử. Tính chất quang được khảo sát thông qua phổ hấp thụ quang đã cho thấy các mẫu chấm lượng tử trong nghiên cứu đều có xu hướng hình thành các trạng thái phát quang trong vùng ánh sáng đỏ đến xanh lục. Song song đó, các mẫu chấm lượng tử loại II có phối tử InF_3 có đỉnh hấp thụ quang dịch chuyển sâu vào vùng khả kiến, cường độ phát quang được tăng cường và hình thành các đỉnh tương đối rõ nét trong vùng này. Đặc biệt, khi chấm lượng tử gắn phối tử có sự thay đổi khoảng cách d tương đối nhỏ, cường độ hấp thụ quang của các chấm lượng tử này tăng lên rõ rệt giúp cải thiện đáng kể hiệu suất chuyển đổi quang-điện của vật liệu phục vụ cho các thiết bị lưu trữ và chuyển đổi năng lượng như pin mặt trời.

Bảng 2: Định hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần và có phối tử InF_3

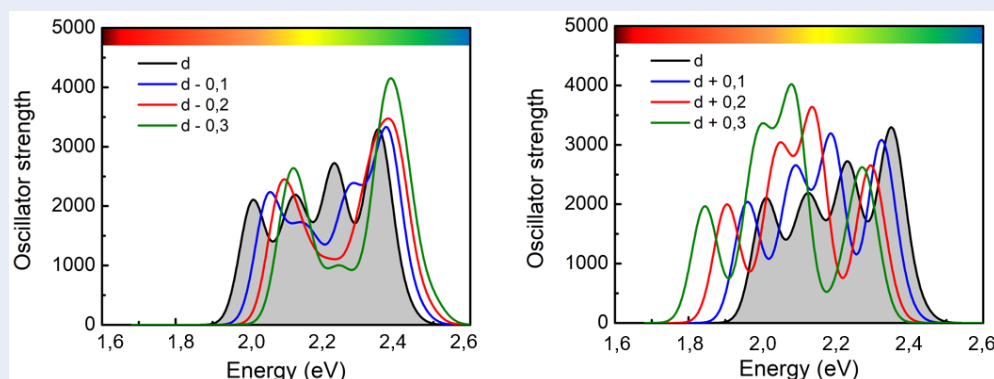
Mẫu		Đỉnh cường độ dao động đầu tiên /Năng lượng (eV)	Đỉnh cường độ dao động thứ hai/ Năng lượng (eV)	Đỉnh cường độ dao động thứ ba/ Năng lượng (eV)
$\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$	d – 0,3	2129/1,63	939/1,79	2167/1,97
	d – 0,2	2190/1,62	635/1,76	2354/1,93
	d – 0,1	2256/1,61	377/1,72	2548/1,88
	d	2318/1,60	2940/1,84	1681/1,94
	d + 0,1	2337/1,57	3456/1,80	1828/1,91
	d + 0,2	2255/1,54	4029/1,75	1843/1,88
	d + 0,3	2059/1,50	4601/1,71	1731/1,85
$\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$	d – 0,3	2639/2,12	1003/2,24	4152/2,38
	d – 0,2	2451/2,10	3475/2,38	-
	d – 0,1	2236/2,06	1730/2,14	2389/2,28
	d	2107/2,01	2190/2,13	2724/2,23
	d + 0,1	2039/2,00	2656/2,10	3192/2,19
	d + 0,2	1998/1,90	3044/2,05	3639/2,14
	d + 0,3	1966/1,84	3364/2,00	4021/2,08

Bảng 3: Năng lượng tương tác electron và lỗ trống trao đổi giữa các thành phần trong chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần và có phối tử InF_3

Mẫu		Năng lượng tương tác lỗ trống từ Zn_6Se_6 * Cd_6Te_6 (eV)	Năng lượng tương tác electron từ Cd_6Te_6 * Zn_6Se_6 (eV)
$\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$	d – 0,3	0,085	0,306
	d – 0,2	0,094	0,249
	d – 0,1	0,102	0,197
	d	0,107	0,150
	d + 0,1	0,110	0,108
	d + 0,2	0,111	0,071
	d + 0,3	0,110	0,038
$\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$	d – 0,3	0,237	0,267
	d – 0,2	0,240	0,304
	d – 0,1	0,239	0,343
	d	0,234	0,381
	d + 0,1	0,224	0,420
	d + 0,2	0,209	0,457
	d + 0,3	0,188	0,492



Hình 7: Phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{-Zn}_6\text{Se}_6$ thuần



Hình 8: Phổ hấp thụ quang của chấm lượng tử loại II có có phối tử $\text{Cd}_6\text{Te}_6\text{InF}_3\text{-Zn}_6\text{Se}_6\text{InF}_3$

DANH MỤC TỪ VIẾT TẮT

DFT: density functional theory
AMS: Amsterdam Modeling Suite
ADF: Amsterdam Density Functional
TZP: triple zeta-potential
SOC: spin-orbit coupling
GGA: generalized gradient approximation
PBE: Perdew – Burke – Ernzerhof – 1996

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Các tác giả đồng ý không có bất kỳ xung đột lợi ích nào liên quan đến các kết quả đã công bố.

ĐÓNG GÓP CỦA TÁC GIẢ

Nguyễn Thị Bảo Trang viết bản thảo bài báo và phân tích kết quả mô phỏng

Nguyễn Võ Anh Duy tạo mô hình, thực hiện các thao tác mô phỏng, xử lý kết quả mô phỏng

Nguyễn Văn Phim phân tích kết quả mô phỏng

Phạm Vũ Nhật kiểm chứng lại các kết quả tính toán

Đặng Minh Triết lên ý tưởng và chịu trách nhiệm chính của nghiên cứu, kiểm chứng lại các kết quả tính toán, chỉnh sửa và nộp bản thảo bài báo

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Yakar Y, Çakır, Özmen A. Superlattices and Microstructures Off-center hydrogenic impurity in spherical quantum dot

with parabolic potential. Superlattices and Microstructures. 2013;60:389–97. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.spmi.2013.05.015>.

2. Jean J, Chang S, Brown PR, Cheng JJ, Reikemeyer PH. ZnO Nanowire Arrays for Enhanced Photocurrent in PbS Quantum Dot Solar Cells. Adv Mater. 2013;25(20):2790–2796. Available from: <https://doi.org/10.1002/adma.201204192>.
3. Marino E, Kodger TE, ten Hove JB, Velders AH, Schall P. Assembling quantum dots via critical Casimir forces. Solar Energy Materials and Solar Cells. 2016;158:154–9. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.solmat.2016.01.016>; <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0927024816000271>.
4. van Dam B, Nie H, Ju B, Marino E, Paulusse JM, Schall P, et al. Excitation-Dependent Photoluminescence from Single-Carbon Dots. Small. 2017;13(48):1702098. Available from: <https://doi.org/10.1002/smll.201702098>.
5. Marino E, Balazs DM, Crisp RW, Hermida-Merino D, Loi MA, Kodger TE, et al. Controlling Superstructure-Property Relationships via Critical Casimir Assembly of Quantum Dots. The Journal of Physical Chemistry C, Nanomaterials and Interfaces. 2019;123(22):13451–7. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.9b02033>.
6. Marino E, Sciortino A, Berkhout A, MacArthur KE, Heggen M, Gregorkiewicz T, et al. Simultaneous Photonic and Excitonic Coupling in Spherical Quantum Dot Supercrystals. ACS Nano. 2020;14(10):13806–15. Available from: <https://doi.org/10.1021/acsnano.0c06188>.
7. Pan Z, Rao H, Mora-Seró I, Bisquert J, Zhong X. Quantum dot-sensitized solar cells. Chemical Society Reviews. 2018;47(20):7659–702. Available from: <https://doi.org/10.1039/C8CS00431E>.
8. Song H, Lin Y, Zhang Z, Rao H, Wang W, Fang Y, et al. Improving the Efficiency of Quantum Dot Sensitized Solar Cells be-

- yond 15% via Secondary Deposition. Journal of the American Chemical Society. 2021;143(12):4790–4800. Available from: <https://doi.org/10.1021/jacs.1c01214>.
9. yup KJ, J Y, JH Y, and Lee H BW, HJ S, et al. Highly Efficient Copper–Indium–Selenide Quantum Dot Solar Cells: Suppression of Carrier Recombination by Controlled ZnS Overlayers. ACS Nano. 2015;9(11):11286–11295. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.nano.5b04917>.
10. de Arquer FPG, Talapin DV, Klimov VI, Arakawa Y, Bayer M, Sargent EH. Semiconductor quantum dots: technological progress and future challenges. Science. 2021;373(6555). Available from: <https://doi.org/10.1126/science.aaz8541>.
11. Xing SG, Wang K. As featured in : Nanoscale Advances Electric dipole modulation for boosting carrier electron injection †. 2023;.
12. Sun Y, Jiang Y, Sun XW, Zhang S, Chen S. Beyond OLED: Efficient Quantum Dot Light-Emitting Diodes for Display and Lighting Application. 2019;19(8):1729–1752. Available from: <https://doi.org/10.1002/tcr.201800191>.
13. Wagner AM, Knipe JM, Orive G, Peppas NA. Quantum dots in biomedical applications. Acta Biomaterialia. 2019;94:44–63. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.actbio.2019.05.022>.
14. Bad U, Mollarasouli F, Bakirhan NK, Ozkan Y, Ozkan SA. Role of quantum dots in pharmaceutical and biomedical analysis, and its application in drug delivery. TrAC Trends in Analytical Chemistry. 2020;131:116013. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.trac.2020.116013>.
15. Ji X, Zheng J, Xu J, Rastogi VK, Cheng TC, DeFrank JJ, et al. (CdSe)ZnS quantum dots and organophosphorus hydrolase bioconjugate as biosensors for detection of paraoxon. The Journal of Physical Chemistry B. 2005;109(9):3793–9. Available from: <https://doi.org/10.1021/jp044928f>.
16. Cai Q, Wu D, Li H, Jie G, Zhou H. Biosensors and Bioelectronics Versatile photoelectrochemical and electrochemiluminescence biosensor based on 3D CdSe QDs-DNA nanonetwork-SnO₂ nanoflower coupled with DNA walker amplification for HIV detection. 2021;191(June);.
17. Keifer G, Effenberger F. Synthesis of Inorganic Nanomaterials. Vol. 6, Angewandte Chemie International Edition. 1967. 951–952 p;.
18. Ruland A, Schulz-Drost C, Sgobba V, Guld DM. Enhancing photocurrent efficiencies by resonance energy transfer in CdTe quantum dot multilayers: towards rainbow solar cells. Advanced Materials. 2011;23(39):4573–7. Available from: <https://doi.org/10.1002/adma.201101423>.
19. Tartakovskii A. Quantum dots: Optics, electron transport and future applications. Vol. 9781107012, Quantum Dots: Optics, Electron Transport and Future Applications. 2012. 1–358 p;.
20. Algar WR, Tavares AJ, Krull UJ. Beyond labels: a review of the application of quantum dots as integrated components of assays, bioprobes, and biosensors utilizing optical transduction. Analytica Chimica Acta. 2010;673(1):1–25. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.aca.2010.05.026>.
21. Deglmann P, Ahlrichs R, Tsereteli K. Theoretical studies of ligand-free cadmium selenide and related semiconductor clusters. The Journal of Chemical Physics. 2002;116(4):1585–97. Available from: <https://doi.org/10.1063/1.1427718>.
22. Jadhav AA, Khanna PK. 1,2,3-Selenadiazole-driven single family MSNCs of CdSe. New Journal of Chemistry = Nouveau Journal de Chimie. 2017;41(23):14713–22. Available from: <https://doi.org/10.1039/C7NJ02994B>.
23. Yong KT, Law WC, Roy I, Jing Z, Huang H, Swihart MT, et al. Aqueous phase synthesis of CdTe quantum dots for biophotonics. Journal of Biophotonics. 2011;4(1-2):9–20. Available from: <https://doi.org/10.1002/jbio.201000080>.
24. Bang JH, Suh WH, Suslick KS. Quantum dots from chemical aerosol flow synthesis: Preparation, characterization, and cellular imaging. Chemistry of Materials. 2008;20(12):4033–8. Available from: <https://doi.org/10.1021/cm800453t>.
25. Talapin DV, Rogach AL, Shevchenko EV, Kornowski A, Haase M, Weller H. Dynamic distribution of growth rates within the ensembles of colloidal II-VI and III-V semiconductor nanocrystals as a factor governing their photoluminescence efficiency. Journal of the American Chemical Society. 2002;124(20):5782–90. Available from: <https://doi.org/10.1021/ja0123599>.
26. Yu S, Huang D, Withanage K. Computational insights into structural and optical properties of P-containing and N-containing ligands capped CdSe clusters. Molecular Simulation. 2019;45(17):1426–31. Available from: <https://doi.org/10.1080/08927022.2019.1642473>.
27. Bulbula ST, Zeweldi HW. Density Functional Study of Electronic and Structural Properties of Gold-Cadmium Selenide/Telluride Nanoclusters. 2015;Available from: <https://doi.org/10.1155/2015/847693>.
28. Dukes AD, McBride JR, Rosenthal SJ. Synthesis of magic-sized CdSe and CdTe nanocrystals with diisooctylphosphinic acid. Chemistry of Materials. 2010;22(23):6402–8. Available from: <https://doi.org/10.1021/cm102370a>.
29. Cui Y, Lou Z, Wang X, Yu S, Yang M. A study of optical absorption of cysteine-capped CdSe nanoclusters using first-principles calculations. Physical Chemistry Chemical Physics : PCCP. 2015;17(14):9222–30. Available from: <https://doi.org/10.1039/C4CP06103A>.
30. Zhao FA, Xiao HY, Bai XM, Zu XT. Effects of Ag doping on the electronic and optical properties of CdSe quantum dots. Physical Chemistry Chemical Physics : PCCP. 2019;21(29):16108–19. Available from: <https://doi.org/10.1039/C9CP02433F>.
31. Chopade P, Jagtap S, Gosavi S. 5 - Material properties and potential applications of CdSe semiconductor nanocrystals. Nanoscale Compound Semiconductors and their Optoelectronics Applications. 2022;p. 105–153. Available from: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-824062-5.00013-0>.
32. Gaponik N, Talapin DV, Rogach AL, Hoppe K, Shevchenko EV, Kornowski A, et al. Thiol-Capping of CdTe Nanocrystals: An Alternative to Organometallic Synthetic Routes. The Journal of Physical Chemistry B. 2002;106(29):7177–7185.
33. Salem A, Saion E, Al-Hada NM, Kamari HM, Shaari AH, Abdullah CA, et al. Synthesis and characterization of CdSe nanoparticles via thermal treatment technique. Results in Physics. 2017;7:1556–62. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.rinp.2017.04.026>.
34. Yashina LV, Zyubin AS, Püttner R, Zyubina TS, Neudachina VS, Stojanov P, et al. The oxidation of the PbS(001) surface with O₂ and air studied with photoelectron spectroscopy and ab initio modeling. Surface Science. 2011;605(5):473–82. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.susc.2010.11.020>.
35. Bielewicz T, Dogan S, Klinke C. Tailoring the height of ultrathin PbS nanosheets and their application as field-effect transistors. Small. 2015;11(7):826–33. Available from: <https://doi.org/10.1002/sml.201402144>.
36. Grimaldi G, van den Brom MJ, du Fossé I, Crisp RW, Kirkwood N, Gudjonsdottir S, et al. Engineering the Band Alignment in QD Heterojunction Films via Ligand Exchange. The Journal of Physical Chemistry C, Nanomaterials and Interfaces. 2019;123(49):29599–608. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.9b09470>.
37. Antanovich AV, Prudnikau AV, Melnikau D, Rakovich YP, Chuvilin A, Woggon U, et al. Colloidal synthesis and optical properties of type-II CdSe–CdTe and inverted CdTe–CdSe core-wing heteronanoplatelets. Nanoscale. 2015;7(17):8084–92. Available from: <https://doi.org/10.1039/C4NR07134D>.
38. Ściesiek M, Suffczyński J, Pacuski W, Parlińska-Wojtan M, Smoleński T, Kossacki P, et al. Effect of electron-hole separation on optical properties of individual Cd(Se,Te) quantum dots. Physical Review B. 2016;93(19):1–8. Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.195313>.
39. Barman B, Oszwara, Schweidenback L, Russ AH, Pientka JM, Tsai Y, et al. Time-resolved magnetophotoluminescence studies of magnetic polaron dynamics in type-II quantum dots. Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics. 2015;92(3). Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.035430>.
40. Prudnikau A, Chuvilin A, Artemyev M. CdSe–CdS nanoheteroplatelets with efficient photoexcitation of central CdSe region through epitaxially grown CdS wings. Journal of the Ameri-

- can Chemical Society. 2013;135(39):14476–9. Available from: <https://doi.org/10.1021/ja401737z>.
41. Ivanov SA, Piryatinski A, Nanda J, Tretiak S, Zavadil KR, Wallace WO, et al. Type-II core/shell CdS/ZnSe nanocrystals: synthesis, electronic structures, and spectroscopic properties. *Journal of the American Chemical Society*. 2007;129(38):11708–19. Available from: <https://doi.org/10.1021/ja068351m>.
42. Prudnikau A, Chuvilin A, Artemyev M. CdSe–CdS nanoheteroplatelets with efficient photoexcitation of central CdSe region through epitaxially grown CdS wings. *Journal of the American Chemical Society*. 2013;135(39):14476–9. Available from: <https://doi.org/10.1021/ja401737z>.
43. Tessier MD, Spinicelli P, Dupont D, Patriarche G, Ithurria S, Dubertret B. Efficient exciton concentrators built from colloidal core/crown CdSe/CdS semiconductor nanoplatelets. *Nano Letters*. 2014;14(1):207–13. Available from: <https://doi.org/10.1021/nl403746p>.
44. de Arquer FPG, Talapin DV, Klimov VI, Arakawa Y, Bayer M, Sargent EH. Semiconductor quantum dots: Technological progress and future challenges. *Science* (1979). 2024 Sep 7;373(6555):eaaz8541; Available from: <https://doi.org/10.1126/science.aaz8541>.
45. Park H, Shin DJ, Yu J. Categorization of Quantum Dots, Clusters, Nanoclusters, and Nanodots. *Journal of Chemical Education*. 2021;98(3):703–9. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.jchemed.0c01403>.
46. Liu X, Liu L, Yang L, Wu X, Chu PK. Optical Identification of Topological Defect Types in Monolayer Arsenene by First-Principles Calculation. *The Journal of Physical Chemistry C, Nanomaterials and Interfaces*. 2016;120(43):24917–24. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b10303>.
47. Ściesiek M, Suffczyński J, Pacuski W, Parlińska-Wojtan M, Smoleński T, Kossacki P, et al. Effect of electron-hole separation on optical properties of individual Cd(Se,Te) quantum dots. *Physical Review B*. 2016;93(19):1–8. Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.195313>.
48. Arotiba OA, Orimolade BO, Koiki BA. Visible lightphotoelectrocatalytic semiconductor heterojunction anodes for water treatment applications. *Current Opinion in Electrochemistry*. 2020;22:25–34. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.coelec.2020.03.018>.
49. Wang ZP, Wang Y, Yu J, Yang JQ, Zhou Y, Mao JY, et al. Type-I Core-Shell ZnSe/ZnS Quantum Dot-Based Resistive Switching for Implementing Algorithm. *Nano Letters*. 2020;20(7):5562–9. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c02227>.
50. Nguyen VD, Dang MT, Nguyen TA, Schall P. Critical Casimir forces for colloidal assembly. *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2016;28(4). Available from: <https://doi.org/10.1088/0953-8984/28/4/043001>.
51. Nguyen TA, Newton A, Vein SJ, Kraft DJ, Bolhuis PG, Schall P. Switching Colloidal Superstructures by Critical Casimir Forces. *Advanced Materials*. 2017;29(34). Available from: <https://doi.org/10.1002/adma.201700819>.
52. Chakraborty A, Das B, Dasgupta I. Unlocking the electronic, optical and transport properties of semiconductor coupled quantum dots using first principles methods. *International Journal of Quantum Chemistry*. 2022;123(11):e27101. Available from: <https://doi.org/10.1002/qua.27101>.
53. Lee WS, Kang YG, Woo HK, Ahn J, Kim H, Kim D, et al. Designing High-Performance CdSe Nanocrystal Thin-Film Transistors Based on Solution Process of Simultaneous Ligand Exchange, Trap Passivation, and Doping. *Chemistry of Materials*. 2019;31(22):9389–99. Available from: <https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.9b02965>.
54. SCM AMS2023, Theoretical Chemistry, Vrije Universiteit, Amsterdam, The Netherlands. 2023;.
55. te Velde G, Bickelhaupt FM, Baerends EJ, Guerra CF, van Gisbergen SJ, Snijders JG, et al. Chemistry with ADF. *Journal of Computational Chemistry*. 2001;22(9):931–67. Available from: <https://doi.org/10.1002/jcc.1056>.
56. Leach A. *Molecular modelling: Principles and Applications*. Pearson; 2001.
57. Perdew JP, Burke K, Ernzerhof M. Generalized Gradient Approximation Made Simple. *Physical Review Letters*. 1996;77(18):3865–8. Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.3865>.
58. Marian CM. Spin-textendashorbit coupling and intersystem crossing in molecules. *Wiley Interdisciplinary Reviews Computational Molecular Science*. 2012;2(2):187–203. Available from: <https://doi.org/10.1002/wcms.83>.
59. van der Laan M, Heemskerk E, Kienhuis F, Diepeveen N, Poonia D, Kinge S, et al. Stacking-Order-Dependent Excitonic Properties Reveal Interlayer Interactions in Bulk ReS₂. *ACS Photonics*. 2023;10(9):3115–23. Available from: <https://doi.org/10.1021/acsphotonics.3c00477>.
60. Lee K, Murray ED, Kong L, Lundqvist BI, Langreth DC. Higher-accuracy van der Waals density functional. *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*. 2010;82(8):3–6. Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.081101>.
61. Abdulsattar MA, Abduljalil HM, Abed HH. Formation energies of CdSe wurtzoid and diamondoid clusters formed from Cd and Se atomic clusters. *Calphad*. 2019;64:37–42. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.calphad.2018.11.008>.
62. Amelia M, Lincheneau C, Silvi S, Credi A. Electrochemical properties of CdSe and CdTe quantum dots. *Chemical Society Reviews*. 2012;41(17):5728–43. Available from: <https://doi.org/10.1039/c2cs35117j>.
63. Nanavati SP, Sundararajan V, Mahamuni S, Kumar V, Ghaisas SV. Optical properties of zinc selenide clusters from first-principles calculations. *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*. 2009;80(24):1–9. Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.245417>.
64. Arivaranan A, Sasikala G, Jayavel R. In situ synthesis of CdTe:CdS quantum dot nanocomposites for photovoltaic applications. *Materials Science in Semiconductor Processing*. 2014;25:238–43. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2013.12.018>.
65. Dang MT, Duy NV, Zaccone A, Schall P, Dinh VA. Structural modification enhances the optoelectronic properties of defect blue phosphorene thin films. *Journal of Physics Condensed Matter : An Institute of Physics Journal*. 2022;34(28):285702. Available from: <https://doi.org/10.1088/1361-648X/ac68be>.
66. Dang MT, Thao PTB, Thao TTN, Tien NT. First-principles study of electronic and optical properties of small edge-functionalized penta-graphene quantum dots. *AIP Advances*. 2022;12(6). Available from: <https://doi.org/10.1063/5.0091475>.
67. Choi JJ, Luria J, Hyun BR, Bartnik AC, Sun L, Lim YF, et al. Photogenerated exciton dissociation in highly coupled lead salt nanocrystal assemblies. *Nano Letters*. 2010;10(5):1805–11. Available from: <https://doi.org/10.1021/nl100498e>.
68. Liu R, Wu D, Feng X, Müllen K. Bottom-up fabrication of photoluminescent graphene quantum dots with uniform morphology. *Journal of the American Chemical Society*. 2011;133(39):15221–3. Available from: <https://doi.org/10.1021/ja204953k>.
69. Groeneveld E, Witteman L, Lefferts M, Ke X, Bals S, Van Tendeloo G, et al. Tailoring ZnSe–CdSe colloidal quantum dots via cation exchange: from core/shell to alloy nanocrystals. *ACS Nano*. 2013;7(9):7913–30. Available from: <https://doi.org/10.1021/nn402931y>.
70. Stam M, Almeida G, Ubbink RF, van der Poll LM, Vogel YB, Chen H, et al. Near-Unity Photoluminescence Quantum Yield of Core-Only InP Quantum Dots via a Simple Postsynthetic InF₃ Treatment. *ACS Nano*. 2024;18(22):14685–95. Available from: <https://doi.org/10.1021/acsnano.4c03290>.
71. Liu L, Najar A, Wang K, Du M, Liu SF. Perovskite Quantum Dots in Solar Cells. *Advanced Science (Weinheim, Baden-Württemberg, Germany)*. 2022;9(7).

Optoelectronic properties of small type II CdTe-ZnSe quantum dots passivated by InF_3 ligands

Nguyen Thi Bao Trang¹, Nguyen Vo Anh Duy¹, Nguyen Van Phim², Pham Vu Nhat², Dang Minh Triet^{2,*}



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

ABSTRACT

In this study, we employ first-principles methods with density functional theory including the spin-orbit coupling effect to investigate the optoelectronic properties of pristine and InF_3 -ligand-assisted CdTe-ZnSe type II quantum dots. We show that when attaching InF_3 ligands to type II CdTe-ZnSe quantum dots, the optical absorption spectra of these dots is red-shifted towards the lower energy range with respect to that of the pristine CdTe-ZnSe quantum dots. When we actively increase or decrease the distances between the two single dots inside a type II quantum dot, their band gaps also increase or decrease accordingly. Upon attaching InF_3 ligands, the band gap of this quantum dot performs a small blue shift compared to the corresponding pristine quantum dot sample. By increasing the distances between the two interior CdTe and ZnSe portions inside the CdTe-ZnSe dots, due to the charge transfer from the ligands to the interior portions, the absorption spectra exhibit a red-shift with a significant increase of the absorption intensity with respect to the case of the pristine type II quantum dots. The results demonstrate the essence of InF_3 ligands to enhance the light absorption capacity resulting in improving the light-to-electricity conversion efficiency of solar panels embedding CdTe-ZnSe type II quantum dots.

Key words: type II quantum dots, CdTe-ZnSe, InF_3 ligands, solar cells

¹FPT University, 600 Nguyen Van Cu, Ninh Kieu District, Can Tho, Vietnam

²Can Tho University, 3/2 Street, Ninh Kieu District, Can Tho, Vietnam

Correspondence

Dang Minh Triet, Can Tho University, 3/2 Street, Ninh Kieu District, Can Tho, Vietnam

Email: dmtriet@ctu.edu.vn

History

- Received: 11-10-2023
- Revised: 13-9-2024
- Accepted: 02-02-2025
- Published Online: 31-3-2025

DOI :

<https://doi.org/10.32508/stdjns.v9i1.1319>



Copyright

© VNUHCM Press. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



Cite this article : Bao Trang N T, Anh Duy N V, Van Phim N, Vu Nhat P, Minh Triet D. **Optoelectronic properties of small type II CdTe-ZnSe quantum dots passivated by InF_3 ligands.** *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2025; 9(1):3307-3318.