

УДК 535.14

## ЭКСИТОННАЯ НУТАЦИЯ В СЛОЕ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК

© 2019 г. В. В. Самарцев<sup>1, \*</sup>, Т. Г. Митрофанова<sup>1</sup>, О. Х. Хасанов<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение  
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр  
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

<sup>2</sup>Государственное научно-практическое объединение “Научно-практический центр по материаловедению  
Национальной академии наук Беларуси”, Минск, Беларусь

\*E-mail: samartsev@kfti.knc.ru

Поступила в редакцию 20.06.2019 г.

После доработки 20.07.2019 г.

Принята к публикации 27.08.2019 г.

Теоретически показана возможность наблюдения экситонной нутации в тонком слое полупроводниковых квантовых точек типа CdSe/CdS/ZnS.

DOI: 10.1134/S0367676519120263

### ВВЕДЕНИЕ

Данная работа посвящена теоретическому исследованию возможности и условий наблюдения экситонной нутации (ЭН) в тонком слое полупроводниковых квантовых точек (ПКТ). В оптике нутационный эффект впервые наблюдали Г. Хоккер и К. Танг [1]. Позднее в работе [2] был предложен и реализован эффективный метод возбуждения этого нелинейного явления, когда на резонансную среду воздействуют два лазерных импульса: один – слабый и протяженный, и второй – мощный и короткий на фоне первого. В результате второй мощный импульс образует по отношению к слабому необходимый (близкий к 90°) “пьедестал”, который на выходе из среды оказывается модулированным с частотой Раби. Модуляционная картина оказывается затухающей, а по ее спаду обычно удается оценить время поперечной необратимой релаксации  $T_2$ .

В качестве образца мы предлагаем использовать тонкий слой ПКТ CdSe/CdS/ZnS, нанесенный на подложку. О синтезе тонких пленок, содержащих таких ПКТ и первых измерениях в них откликов типа фотонного эха, сообщалось в работе [3]. Экспериментальная техника подробно описана авторами в [4–6]. Позднее появились экспериментальные работы [7, 8], посвященные исследованию фотонного эха в таких ПКТ, изготовляемых в России производством “QDlight” методом коллоидного синтеза. Заявленный размер коллоидных ПКТ CdSe/CdS/ZnS равен 3–7 нм. В работе [7] отмечалось, что наличие двух оболочек из CdS и ZnS вокруг ядра CdSe способствует улучшению излучательных свойств, фотостабильно-

сти и высокому квантовому выходу по сравнению с нанокристаллами с одной оболочкой и без оболочки. Была разработана специальная методика для получения однородных и качественных образцов и создан экспериментальный стенд, позволяющий наносить однородные пленки ПКТ CdSe/CdS/ZnS из раствора на поверхность стеклянной подложки. Оптические свойства образцов исследовались методом конфокальной люминесцентной микроспектроскопии [7]. В итоге было показано, что ПКТ распределены равномерно по тонкому слою пленки. Согласно [7], возбуждение следует вести на длине волны 580 нм при температуре образца 10 К, когда время необратимой релаксации составляет 0.75 пс. В этом случае пикосекундный лазер, согласно [9], возбуждает сначала свободные электронно-дырочные пары, которые затем, теряя энергию, превращаются в связанные электронно-дырочные пары, т.е. в экситоны Ванье–Мотта – единственную форму существования фотонного возбуждения в ПКТ [10, 11], причем размер экситона Ванье–Мотта примерно равен размеру ПКТ. Поскольку тонкий слой ПКТ CdSe/CdS/ZnS нанесен на стеклянную подложку, возбуждение и съем пикосекундных оптических импульсов удобно вести с помощью призм полного внутреннего отражения [12].

### ЭКСИТОННАЯ НУТАЦИЯ В ТОНКОМ СЛОЕ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК

В случае относительно протяженного лазерного импульса псевдоэлектрический диполь совершает нутационное движение, приводящее к мо-

дуляции временной формы импульса с частотой Раби. Корректный расчет требует учета во время действия импульса необратимой дефазировки ( $T_1$  и  $T_2$ ), что для отдельных частных импульсов выполнено Г. Торри [13]. Это приводит к затуханию модуляции по закону:  $\exp\left[-\left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right)t\right]$ , где  $T_1$  и  $T_2$  – времена релаксации,  $t$  – время.

Экситонная нутация была предсказана в работе [14] (см. также более позднюю статью [15] и обзор [16]). Следуя [14], запишем электрическое поле лазерного импульса в виде:

$$\vec{E} = \vec{E}_0(z, t) \exp\{-i(\vec{k}\vec{z} - \omega t)\} + \text{э.с.}, \quad (1)$$

где  $\vec{E}_0(z, t)$ ,  $\omega$  и  $\vec{k}$  – амплитуда, частота и волновой вектор лазерного импульса, э. с. – эрмитово-сопряженный член. Обратим внимание, что в работе [14] теоретический расчет ведется в системе единиц, где постоянная Планка  $\hbar = 1$ . Гамильтониан слоя экситонов ПКТ, взаимодействующих с электрическим полем импульса, следуя [1], запишем в виде:

$$H = \sum_k E_{\vec{k}_f} B_{\vec{k}_f}^+ B_{\vec{k}_f} - \frac{\omega_f}{2\omega} \sqrt{N} \times \times \{(\vec{E}_0 \vec{d}_f) B_{\vec{k}_f}^+ \exp(-i\omega t) + \text{э.с.}\}, \quad (2)$$

где  $E_{\vec{k}_f}$  – энергия экситона с волновым вектором  $\vec{k}$ , возбужденного на  $f$ -ом электронном переходе атома ПКТ,  $\omega_f$  – частота  $f$ -го электронного перехода,  $\omega$  – частота лазера,  $N$  – число элементарных ячеек в слое ПКТ,  $\vec{d}_f$  – электрический дипольный момент перехода  $f$ -го электрона;  $B_{\vec{k}_f}^+$  и  $B_{\vec{k}_f}$  – операторы рождения и уничтожения экситонов, удовлетворяющие следующим небозонным коммутационным соотношениям:

$$[B_{\vec{k}}, B_{\vec{k}'}^+] = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} - \frac{2}{N} \sum_n B_n^+ B_n \exp\{-i\vec{n}(\vec{k}' - \vec{k})\}, \quad (3)$$

где  $B_n^+$  и  $B_n$  – операторы рождения и уничтожения электронного возбуждения на  $n$ -ом атоме ПКТ, причем

$$[B_n, B_n^+] = 1 - 2B_n^+ B_n. \quad (4)$$

Согласно [14], электрическая поляризация ПКТ в момент  $t$  имеет вид:

$$\vec{P}(t, \vec{n}) = \left(\frac{\vec{d}_f}{V\sqrt{N}}\right) \sum_{\vec{k}} \{B_{\vec{k}}^+ \exp(-i\vec{k}\vec{n}) + B_{\vec{k}} \exp(i\vec{k}\vec{n})\}, \quad (5)$$

где  $V$  – объем элементарной ячейки. В работе [14] получена совместная система дифференциальных уравнений Гейзенберга для электрической поляризации  $\vec{P}(t, \vec{n})$  и уравнений Максвелла для

амплитуды электрического поля и фазы. Одно из частных решений Г. Торри [13] получено для случая  $\Delta\omega_x = \omega_f - \omega = 0$ . В этом случае из пяти дифференциальных уравнений связанной системы остаются только три, а поперечная компонента поляризации  $\vec{P}_\perp(t)$ , согласно [14], будет удовлетворять следующему уравнению:

$$\frac{d^2 \vec{P}_\perp(t)}{dt^2} + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \frac{d\vec{P}_\perp(t)}{dt} + \left(d_f^2 E_0^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) \vec{P}_\perp(t) = -\frac{d_f^2 \vec{E}_0}{v T_1}, \quad (6)$$

где  $v$  – групповая скорость световой волны. Видно, что решение Торри [13] позволяет учесть времена релаксации ( $T_1$  и  $T_2$ ) во время импульса. Решение (6) получено в [14] и имеет вид:

$$\vec{P}_\perp(t) = -\frac{|\vec{d}_f|}{v} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right)t} \times \times \sin\left\{\sqrt{d_f^2 E_0^2 - \frac{1}{4}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)^2} t\right\} - d_f^2 E_0 T_2 \left[v(d_f^2 E_0^2 T_1 T_2 + 1)\right]^{-1}. \quad (7)$$

Таким образом, экситонная поляризация среды в случае ЭН изменяется по гармоническому закону с частотой

$$\Omega = \sqrt{d_f^2 E_0^2 - \frac{1}{4}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)^2}, \quad (8)$$

получившей название частоты экситонной нутации. Обратим внимание на последний постоянный член в решении (7), который соответствует стационарному решению самосогласованной за-

дачи. В случае  $|d_f^2 E_0^2| \gg \left|\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right|$ , решение (7) приобретает вид:

$$\vec{P}_\perp(t) = -\frac{|\vec{d}_f|}{v} e^{-\frac{t}{T_2}} \cdot \sin\{\vec{d}_f \vec{E}_0 t\} - d_f^2 E_0 T_2 \left[v(d_f^2 E_0^2 T_1 T_2 + 1)\right]^{-1}. \quad (9)$$

Подставляя (9) в уравнение Максвелла

$$\frac{\partial E_0(z, t)}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial E_0(z, t)}{\partial t} = \frac{2\pi\omega}{cn} P_\perp(t), \quad (10)$$

получаем решение для амплитуды поля:

$$E_0(z, t) = E_0 \left(1 - \frac{\alpha z}{\Omega T_2} \sin \Omega t e^{-t/T_2} - \frac{\alpha z}{\Omega^2 T^2 + 1}\right), \quad (11)$$

где  $\alpha = 2\pi\omega Nd_f^2 T_2 / cnv$ ,  $c$  – скорость света в вакууме,  $n$  – показатель преломления,  $v = (5-6) \frac{c}{n}$ . Сигнал экситонной нутации промодулирован с частотой  $\Omega$ . Модуляция затухает за время  $T_2$ . Согласно [7], в тонком слое ПКТ CdSe/CdS/ZnS при 10 К время  $T_2 \approx 0.75$  пс. Период нутации должен быть короче  $T_2$ .

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Эффект экситонной нутации может быть использован для определения времени  $T_2$  на экситонном переходе ПКТ тогда, когда наблюдение экситонного эха затруднено.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты № 17-02-00701-а и № 18-52-00026\_Бел-а).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Hocker G.B., Tang C.L.* // Phys. Rev. Lett. 1968. V. 21. P. 631.
2. *Алимиев С.С., Карлов Н.В.* // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1973. Т. 37. № 10. С. 2073.
3. *Karimullin K.R., Knyazev M.V., Arzhanov A.I. et al.* // J. Phys. Conf. Ser. 2017. V. 859. Art. № 012010.
4. *Каримуллин К.Р., Князев М.В., Наумов А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 12. С. 1539; *Karimullin K.R., Knyazev M.V., Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. № 12. P. 1254.
5. *Knyazev M.V., Karimullin K.R., Naumov A.V.* // Phys. Stat. Sol. RRL. 2017. V. 11. № 3. Art. № 1600414.
6. *Каримуллин К.Р., Аржанов А.И., Наумов А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2017. Т. 81. № 12. С. 1581; *Karimullin K.R., Naumov A.V., Arzhanov A.I.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2017. V. 81. № 12. P. 1396.
7. *Каримуллин К.Р., Аржанов А.И., Наумов А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1620; *Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. V. 82. № 11. P. 1620.
8. *Аржанов А.И., Каримуллин К.Р., Наумов А.В.* // Кр. сообщ. по физ. Физ. ин-та им. П.Н. Лебедева РАН. 2018. Т. 45. № 3. С. 39; *Arzhanov A.I., Karimullin K.R., Naumov A.V.* // Bull. Lebedev Phys. Inst. 2018. V. 45. № 3. P. 91.
9. *Осадько И.С.* Флуктуирующая флюоресценция наночастиц. М.: Наука, 2011. С. 299.
10. *Li X., Wu Y., Steel D. et al.* // Science. 2003. V. 301. P. 809.
11. *Ikezawa M., Nairs S., Masumoto Y. et al.* // J. Lumin. 2007. V. 122-123. P. 730.
12. *Власов Р.А., Гадомский О.Н., Гадомская И.В., Самарцев В.В.* // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 6. С. 1938.
13. *Torrey H.C.* // Phys. Rev. 1949. V. 76. № 9. P. 1059.
14. *Kopvillem U.Kh., Samartsev V.V., Sheibut Yu.E.* // Phys. Stat. Sol. B. 1975. V. 70. P. 799.
15. *Samartsev V.V., Sheibut Yu.E., Ivanov Yu. S.* // Spectr. Lett. 1976. V. 9. № 1. P. 57.
16. *Samartsev V.V., Sheibut Yu.E.* // Las. Phys. 1991. V. 1. № 5. P. 482.