

НЕСТАЦИОНАРНОЕ ВНУТРИЗОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ СВЕТА ПОЛУПРОВОДНИКОВЫМИ НАНОСТЕРЖНЯМИ

© 2013 г. М. Ю. Леонов*, канд. физ.-мат. наук; А. О. Орлова*, канд. техн. наук;
А. В. Баранов*, доктор физ.-мат. наук; И. Д. Рухленко** **, канд. физ.-мат. наук;
Ю. К. Гунько* ***, канд. хим. наук; А. В. Федоров*, доктор физ.-мат. наук

* Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург

** Advanced Computing and Simulation Laboratory, Monash University, Clayton, Victoria 3800, Australia

*** School of Chemistry and CRANN Institute, Trinity College, Dublin, Dublin 2, Ireland

E-mail: m.yu.leonov@gmail.com

В рамках единого подхода, основанного на формализме приведенной матрицы плотности, развита теория внутризонного поглощения энергии зондирующих импульсов, индуцированного импульсами накачки, в полупроводниковых наностержнях в форме параллелепипеда и цилиндра. Определены условия, при которых зависимость поглощенной энергии зондирующих импульсов от времени задержки по отношению к импульсам накачки при внутризонных переходах описывается одной или двумя экспоненциальными функциями с показателями, пропорциональными скоростям релаксации энергии состояний электронной подсистемы наностержней. Показано, что нестационарная спектроскопия внутризонного поглощения позволяет определить скорости релаксации энергии электронных состояний наностержней.

Ключевые слова: полупроводниковые наностержни, спектроскопия накачки-зондирования, скорость релаксации энергии.

Коды OCIS: 160.4236, 300.6500.

Поступила в редакцию 25.06.2013.

Введение

Исследование индивидуальных нанокристаллов (НК) представляет интерес для фундаментальной физики, а также для приложений, так как НК являются перспективными “строительными блоками” для различных устройств электроники и фотоники, например, транзисторов [1], лазеров [2], солнечных батарей [3], источников одиночных фотонов [4] и кубитов [5]. Применение анизотропных наночастиц открывает новые возможности при конструировании гетеросистем нанометрового масштаба, например, гибридных наноструктур, светодиодов и газовых сенсоров [6–8]. Несмотря на несомненную важность анизотропных наночастиц

для нанотехнологии, их ключевые параметры и, в частности, скорости релаксации энергии электронной подсистемы НК изучены недостаточно. Этот пробел может быть заполнен путем анализа оптических откликов наночастиц, измеренных с помощью, например, когерентного контроля вторичного свечения [9–12] или нестационарной оптической спектроскопии “накачка-зондирование” [13–15]. Такой анализ должен опираться на последовательное теоретическое описание спектроскопических методов, учитывающее анизотропию наночастиц, и в конечном итоге прояснить вопрос о доминирующих механизмах релаксации электронной подсистемы НК, обсуждаемый в течение длительного времени [16]. Действительно, если

в объемных полупроводниках самый быстрый механизм энергетической релаксации электронной подсистемы определяется взаимодействием с оптическими фононами, то в НК этот механизм может быть не слишком эффективным из-за слабой “дисперсии” оптических фононов по сравнению с акустическими фононами [17]. В связи с размерным квантованием энергетического спектра НК переход между парой уровней их электронной подсистемы с участием оптического фонона возможен лишь для НК определенного размера, при котором энергетический зазор между уровнями близок к энергии фононов. Для объяснения экспериментальных данных, показывающих, что скорость внутризонной релаксации в НК может варьироваться в диапазоне от 10^8 до 10^{13} с⁻¹, было предложено много механизмов релаксации. Среди них следует упомянуть следующие: двухфононный механизм релаксации, в котором принимают участие оптические и акустические фононы [18]; релаксационные процессы, учитывающие когерентное взаимодействие оптических фононов с электронной подсистемой НК [19], а также конечность их времени жизни [20]; механизмы релаксации электронной подсистемы НК с участием плазменных и фонон-плазменных мод [21–25], локализованных в областях, расположенных на расстояниях в несколько десятков нанометров от НК; механизмы, определяемые взаимодействием с поверхностными дефектами нанокристаллов [26–28]; релаксация за счет многофононных переходов [29], оже-процессов [30] и процессов безызлучательного переноса энергии [31, 32].

Нестационарная оптическая спектроскопия позволяет исследовать релаксационные процессы в атомах, молекулах и твердых телах, включая полупроводниковые НК. Среди нестационарных методов изучения скоростей энергетической релаксации электронной подсистемы НК одним из наиболее перспективных является импульсный метод накачка–зондирование [33–36]. В его рамках может быть реализовано несколько схем, позволяющих исследовать не только полную скорость энергетической релаксации (время жизни) того или иного состояния электронной подсистемы НК, но и индивидуальные скорости внутризонной релаксации электронов и дырок.

Идея одной из разновидностей метода накачка–зондирование, основанного на мониторинге нестационарного поглощения энергии зондирующих оптических импульсов, индуци-

рованного оптическими импульсами накачки, заключается в следующем. Импульс накачки резонансно возбуждает некоторое состояние электронной подсистемы НК, т.е. создает неравновесные населенности, от которых зависит поглощение энергии зондирующего импульса. Поскольку после завершения импульса накачки неравновесные населенности релаксируют в исходное состояние, поглощение зондирующего импульса будет меняться во времени. Таким образом, измеряя энергию поглощения зондирующего импульса от времени его задержки относительно импульса накачки, можно получить кинетику изменения неравновесных населенностей и, следовательно, данные о скоростях релаксации электронной подсистемы НК.

В данной работе анализируются две схемы метода накачка–зондирование, описывающие нестационарное внутризонное поглощение энергии зондирующих световых импульсов полупроводниковыми наностержнями, индуцированное оптическими импульсами накачки. Выводятся аналитические выражения для поглощенной энергии зондирующего импульса. Формулируются условия, при которых зависимость поглощенной энергии от времени задержки по отношению к импульсам накачки при внутризонных переходах определяется простыми экспоненциальными функциями с показателями, пропорциональными скоростям релаксации энергии состояний электронной подсистемы наностержня. Показано, что нестационарная спектроскопия внутризонного поглощения позволяет определить скорости релаксации энергии электронных состояний наностержней. Обсуждается способ определения скоростей релаксации энергии электронных состояний наностержней из экспериментальных данных.

Полупроводниковые нанокристаллы в форме стержней

Предположим, что электронная подсистема НК находится в режиме сильного конфайнмента. Это означает, что характерный размер НК меньше боровского радиуса экситона в объемном материале. В этом случае кулоновским взаимодействием между электронами и дырками можно пренебречь. Рассмотрим двухзонное приближение (одна валентная зона и одна зона проводимости) для энергетического спектра наностержней и предположим, что материал, из

которого они изготовлены, прямоzonный и обладает симметрией T_d или O_h . Если НК находятся в диэлектрической матрице, то для описания их электронных спектров можно использовать модель потенциальной ямы с бесконечно высокими стенками для электронов и дырок. В рамках этих приближений энергетические спектры и волновые функции НК описываются простыми аналитическими выражениями [37].

Для наностержня в форме прямоугольного параллелепипеда (рис. 1а) огибающие волновые функции и энергии уровней размерного квантования электронов и дырок имеют вид [37]

$$\Psi_{n_x, n_y, n_z}(x, y, z) = \Psi_{n_x}(x)\Psi_{n_y}(y)\Psi_{n_z}(z), \quad (1)$$

$$\Psi_{n_\alpha}(\alpha) = \sqrt{\frac{2}{L_\alpha}} \begin{cases} \sin(k_{n_\alpha} \alpha), & n_\alpha - \text{четное}, \\ \cos(k_{n_\alpha} \alpha), & n_\alpha - \text{нечетное}, \end{cases} \quad (2)$$

$$E_{n_x, n_y, n_z}^{c(v)} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{c(v)}} \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2} + \frac{n_z^2}{L_z^2} \right). \quad (3)$$

Здесь L_x , L_y и L_z – длины ребер параллелепипеда, $\alpha = x, y, z$, $n_\alpha = 1, 2, 3, \dots$ – квантовые числа, $k_{n_\alpha} = \pi n_\alpha / L_\alpha$, $m_{c(v)}$ – эффективная масса электрона (дырки). Из соотношения (1–3) прямо следует, что трехмерное пространственное ограничение движения носителей заряда в наностержне приводит к расщеплению непрерывного энергетического спектра $E_{c(v)}(k) = \hbar^2 k^2 / [2m_{c(v)}]$ объемного материала на дискретные уровни размерного квантования $E_{n_x, n_y, n_z}^{c(v)}$. При этом оказывается, что энергия дискретных уровней обратно про-

порциональна квадрату характерного размера наностержня.

В двухзонной модели полупроводника энергетический спектр и полные волновые функции электронов и дырок можно представить как

$$\mathcal{E}_{n_x, n_y, n_z}^{(c)} = E_g + E_{n_x, n_y, n_z}, \quad \mathcal{E}_{n'_x, n'_y, n'_z}^{(v)} = -E_{n'_x, n'_y, n'_z}, \quad (4)$$

$$\Psi_{n_x, n_y, n_z}^{(c)}(\mathbf{r}) = u_c(\mathbf{r})\Psi_{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}), \quad (5)$$

$$\Psi_{n'_x, n'_y, n'_z}^{(v)}(\mathbf{r}) = u_v(\mathbf{r})\Psi_{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}),$$

где за начало отсчета энергии принят потолок валентной зоны, E_g – ширина запрещенной зоны в объемном материале, квантовые числа без штрихов и со штрихами относятся к электронам и дыркам, $u_c(\mathbf{r})$ и $u_v(\mathbf{r})$ – блоховские амплитуды дна зоны проводимости и потолка валентной зоны. Используя равенство (4), можно найти энергетический спектр электрон-дырочных пар

$$\mathcal{E}_{n_x, n_y, n_z, n'_x, n'_y, n'_z} = E_g + E_{n_x, n_y, n_z} + E_{n'_x, n'_y, n'_z}, \quad (6)$$

где за начало отсчета энергии принят вакуум электрон-дырочных пар, т.е. такое состояние наностержня, при котором все уровни в валентной зоне заполнены, а все уровни в зоне проводимости пусты. Из выражения (6) видно, что состояния электрон-дырочных пар характеризуются шестью квантовыми числами.

Для наностержня в форме цилиндра с высотой h и радиусом основания ρ_0 (рис. 1б) огибающие волновые функции и энергии уровней размерного квантования электронов и дырок имеют вид [37]

$$\Psi_{nlz}(\rho, \varphi, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi h \rho_0^2}} \frac{\exp(il\varphi) J_l(\zeta_{nl} \rho / \rho_0)}{J_{l+1}(\zeta_{nl})} \begin{cases} \sin(k_{n_z} z), & n_z - \text{четное} \\ \cos(k_{n_z} z), & n_z - \text{нечетное} \end{cases}, \quad (7)$$

$$E_{nlz} = \frac{\hbar^2}{2m_{c(v)}} \left(\frac{\zeta_{nl}^2}{\rho_0^2} + \frac{\pi^2 n_z^2}{h^2} \right), \quad (8)$$

где $J_l(x)$ – цилиндрическая функция Бесселя, ζ_{nl} – n -й корень уравнения $J_l(\zeta_{nl}) = 0$, $n = 1, 2, 3, \dots$, $l = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$, $n_z = 1, 2, 3, \dots$ – соответствующие квантовые числа.

В двухзонной модели полупроводника энергетический спектр и полные волновые функции электронов и дырок можно представить как

$$\mathcal{E}_{nlz}^{(c)} = E_g + E_{nlz}, \quad \mathcal{E}_{n'l'n'_z}^{(v)} = -E_{n'l'n'_z}, \quad (9)$$

$$\Psi_{nlz}^{(c)}(\mathbf{r}) = u_c(\mathbf{r})\Psi_{nlz}(\mathbf{r}), \quad (10)$$

$$\Psi_{n'l'n'_z}^{(v)}(\mathbf{r}) = u_v(\mathbf{r})\Psi_{n'l'n'_z}(\mathbf{r}).$$

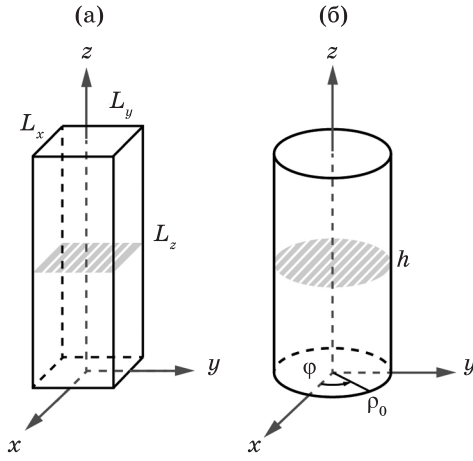


Рис. 1. Полупроводниковые наностержни в форме прямоугольного параллелепипеда (а) и цилиндра круглого сечения (б).

Соответствующий (9) энергетический спектр электрон-дырочных пар имеет вид

$$\mathcal{E}_{n_l n_z, n_l' n_z'} = E_g + E_{n_l n_z} + E_{n_l' n_z'}. \quad (11)$$

Для расчета внутризонного поглощения в наностержнях необходимо знать явный вид матричных элементов электрон-фотонного взаимодействия. В рамках принятых выше приближений матричные элементы оптических переходов в некоторое состояние электрон-дырочных пар $|j\rangle$ (индексом j для простоты обозначены шесть квантовых чисел электрон-дырочной пары) при их генерации имеют вид

$$|V_{j,0}^{(pu)}| = \delta_{v,v'} e Z_{cv} E_{pu}, \quad (12)$$

где $\delta_{v,v'}$ – произведение трех символов Кронекера, равное $\delta_{n_x, n_x'} \delta_{n_y, n_y'} \delta_{n_z, n_z'}$ и $\delta_{n, n'} \delta_{l, l'} \delta_{n_z, n_z'}$ для НК в форме прямоугольного параллелепипеда и цилиндра соответственно, $Z_{cv} = \sqrt{2} P / E_g$, P – пара-

метр Кейна [39], E_{pu} – напряженность электрического поля импульса накачки.

Из формулы (12) следует, что матричные элементы, отвечающие за генерацию электрон-дырочных пар, не зависят от размера НК. Отсюда следуют правила отбора: в дипольном приближении возможна генерация электрон-дырочных пар, квантовые числа электронов и дырок которых совпадают. Энергии таких электрон-дырочных пар для наностержней в форме параллелепипеда и цилиндра имеют вид

$$\mathcal{E}_j = E_g + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2\mu} \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2} + \frac{n_z^2}{L_z^2} \right), \quad (13)$$

$$\mathcal{E}_j = E_g + \frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\zeta_{nl}^2}{\rho_0^2} + \frac{\pi^2 n_z^2}{h^2} \right),$$

где $\mu = m_c m_v / (m_c + m_v)$.

Для теоретического описания нестационарного внутризонного поглощения света в наностержнях необходимо знать матричные элементы, соответствующие оптическим переходам из состояния электрон-дырочной пары $|j_2\rangle$ в другое состояние пары $|j_1\rangle$. Очевидно, что при поглощении одного фотона в результате процессов рассматриваемого типа электрон-дырочная пара не может перейти в состояние, в котором одновременно изменились квантовые числа электрона и дырки. Возможно лишь изменение квантовых чисел либо электрона, либо дырки. Отсюда следует, что матричные элементы внутризонных переходов [38] можно представить в виде

$$V_{j_1, j_2}^{(pr)} = \delta_{v_1, v_2} V_{v_1, v_2}^{(pr)}, \quad V_{j_1, j_2}^{(pr)} = -\delta_{v_1, v_2}^{(pr)} V_{v_1, v_2}^{(pr)}, \quad (14)$$

где для наностержней в форме прямоугольного параллелепипеда

$$V_{n_{1x} n_{1y} n_{1z}, n_{2x} n_{2y} n_{2z}}^{(pr)} = -e E_{(pr)} (e_x x_{n_{1x}, n_{2x}} \delta_{n_{1y}, n_{2y}} \delta_{n_{1z}, n_{2z}} + e_y y_{n_{1y}, n_{2y}} \delta_{n_{1x}, n_{2x}} \delta_{n_{1z}, n_{2z}} + e_z z_{n_{1z}, n_{2z}} \delta_{n_{1x}, n_{2x}} \delta_{n_{1y}, n_{2y}}), \quad (15)$$

e_α – проекция вектора поляризации \mathbf{e} электрического поля импульса зондирования (pr) на ось $\alpha = x, y$ или z ; $\alpha_{n_{1\alpha}, n_{2\alpha}}$ – матричный элемент координаты α , вычисленный на соответствующих

огнивающих волновых функциях (2) и определяемый выражением

$$\alpha_{n_{1\alpha}, n_{2\alpha}} = (-1)^{(n_{1\alpha} + n_{2\alpha} + 1)/2} \left[1 - (-1)^{n_{1\alpha} + n_{2\alpha}} \right] \frac{4 L_\alpha n_{1\alpha} n_{2\alpha}}{\pi^2 (n_{1\alpha}^2 - n_{2\alpha}^2)^2}. \quad (16)$$

Из (16) видно, что внутризонные электронные (дырочные) переходы возможны между состояниями, у которых сумма соответствующих квантовых чисел $n_{1a} + n_{2a}$ является нечетной.

$$V_{n_1 l_1 n_2, n_2 l_2 n_2 z}^{(\text{pr})} = eE_{(\text{pr})} (\delta_{n_1 z, n_2 z} \sum_{\mu=\pm 1} e^{i\mu} x_{n_1 l_1, n_2 l_2}^{(-\mu)} - e_z z_{n_1 z, n_2 z} \delta_{n_1, n_2} \delta_{l_1, l_2}), \quad (17)$$

где $e^{(\pm 1)} = \mp(e_x \pm ie_y) / \sqrt{2}$ и $x_{n_1 l_1, n_2 l_2}^{(\mu)} = \delta_{l_1, l_2 + \mu} 2\sqrt{2} \rho_0 \zeta_{n_1 l_1} \zeta_{n_2 l_2} / (\zeta_{n_1 l_1}^2 - \zeta_{n_2 l_2}^2)^2$.

Матричный элемент координаты $z_{n_1 z, n_2 z}$ вычисляется по формуле (16). Как и для предыдущего случая, правила отбора при этих переходах определяются символами Кронекера.

Поглощение импульса зондирования при каскадных межзонно-внутризонных переходах

Чтобы получить скорости релаксации энергии и скорости внутризонных переходов между состояниями электрон-дырочных пар можно ограничиться двумя схемами межзонно-внутризонных оптических переходов метода накачка-зондирование: каскадной (рис. 2а) и перекрестной (рис. 2б). Для случая каскадной схемы межзонно-внутризонных переходов импульс накачки с несущей частотой ω_{pu} резонансно возбуждает некоторое состояние электрон-дырочных пар $|i\rangle$, населенность которого благодаря взаимодействию с термостатом релаксирует в основное состояние $|0\rangle$ со скоростью $\gamma_{i,i}$. Зондирующий импульс с несущей частотой ω_{pr} , попадающей в резонанс с частотой перехода между состояниями $|i\rangle$ и $|j\rangle$, переводит электрон-дырочную пару в состояние $|j\rangle$. В результате энергия зондирующего импульса поглощается.

Предположим, что в начальном состоянии наностержня электрон-дырочные пары отсутствуют, т.е. населенность его основного состояния $|0\rangle$ равна единице, а населенности всех возбуждаемых состояний равны нулю. Если импульс накачки отсутствует, то поглощения энергии зондирующего импульса не будет, поскольку состояния $|i\rangle$ и $|j\rangle$ имеют населенности $\rho_{i,i} = 0$ и $\rho_{j,j} = 0$. После окончания импульса накачки благодаря процессам релаксации, характеризваемым скоростью релаксации энергии $\gamma_{i,i}$, населенности $\rho_{0,0}$ и $\rho_{i,i}$ будут стремиться

Для случая внутризонных переходов [38] в наностержне цилиндрической формы матричный элемент имеет вид

к своим начальным значениям $\rho_{0,0} \rightarrow 1$ и $\rho_{i,i} \rightarrow 0$. Наличие населенности состояния $|i\rangle$ приведет к возникновению поглощения энергии зондирующего импульса, воздействующего на стержень одновременно или через некоторое время задержки τ после импульса накачки. Таким образом, населенности участвующих в процессе состояний наностержня и поглощение энергии зондирующего импульса становятся функциями времени, причем их зависимость от времени определяется скоростью релаксации $\gamma_{i,i}$. Отсюда следует, что измеряя поглощение зондирующего импульса в зависимости от времени задержки τ можно исследовать кинетику населенностей состояний наностержня, из анализа которой можно найти скорость релаксации энергии $\gamma_{i,i}$.

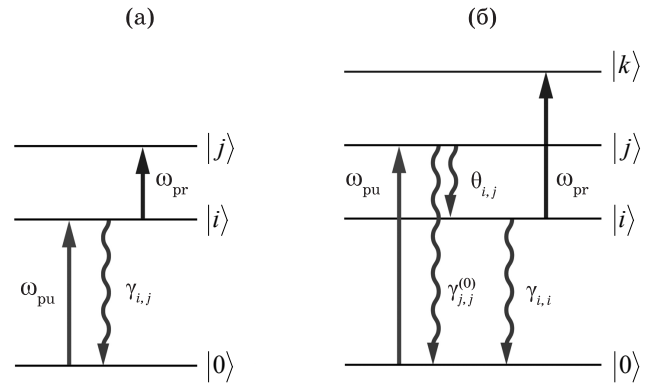


Рис. 2. Схема поглощения импульсов накачки (pu) и зондирования (pr) с несущими частотами ω_{pu} и ω_{pr} при каскадных (а) и перекрестных (б) межзонно-внутризонных переходах. Прямыми и волнистыми стрелками показаны оптические и релаксационные переходы. $|0\rangle$ и $|i\rangle, |j\rangle, |k\rangle$ – основное и возбужденные состояния электрон-дырочных пар; $\gamma_{i,i}$ – скорость релаксации населенности (обратное время жизни) состояния $|i\rangle$; $\gamma_{j,j}^{(0)}$ и $\theta_{i,j}$ – скорости переходов $|j\rangle \rightarrow |0\rangle$ и $|j\rangle \rightarrow |i\rangle$.

Очевидно, что такой процесс описывается в рамках трехуровневой модели наностержня (рис. 2а).

Полное решение задачи о внутризонном поглощении энергии зондирующего импульса для базиса $|0\rangle$, $|i\rangle$ и $|j\rangle$, основанное на формализме приведенной матрицы плотности [13–15], показывает, что в общем случае кинетика поглощения является мультиэкспоненциальной и зависит от формы импульса. Однако, решение задачи радикально упрощается при выполнении условий $\tau \gg \sigma_{pr}^{-1}$, σ_{pu}^{-1} и $\sigma_{pu}, \sigma_{pr} \gg \gamma_{i,i}, \gamma_{j,j}, \gamma_{i,0}$

$$E_{cas}^{(pr)}(\tau) = S e^{-\gamma_{i,i}\tau} = KN\hbar\omega_{pr} A_{cas}^{(pu)} A_{cas}^{(pr)} \left(\frac{2\sigma_{pu}}{\sigma_{pu}^2 + \Delta_{pu}^2} \right)^2 \left(\frac{2\sigma_{pr}}{\sigma_{pr}^2 + \Delta_{pr}^2} \right)^2 e^{-\gamma_{i,i}\tau}, \quad (18)$$

где $\Delta_{pr} = \omega_j - \omega_i - \omega_{pr}$, $\Delta_{pu} = \omega_i - \omega_{pu}$, $A_{cas}^{(pr)} = |V_{j,i}^{(pr)}|^2 / \hbar^2$, $A_{cas}^{(pu)} = |V_{i,0}^{(pu)}|^2 / \hbar^2$, $V_{j,i}^{(pr)}$ и $V_{i,0}^{(pu)}$ определяются выражениями (12) и (15) или (17), N – число наностержней, K – кратность вырождения по частоте перехода $i \leftrightarrow j$. Из соотношения (18) видно, что $E_{cas}^{(pr)}(\tau)/S$ представляет собой моноэкспоненциальную функцию τ .

Таким образом, для экспериментального определения $\gamma_{i,i}$ при каскадных переходах достаточно измерить $E_{cas}^{(pr)}(\tau)$ для двух значений времени задержки τ_1 и τ_2 между импульсами

$$\gamma_{i,i} = \frac{1}{\tau_2 - \tau_1} \ln \left(\frac{E_{cas}^{(pr)}(\tau_1)}{E_{cas}^{(pr)}(\tau_2)} \right). \quad (19)$$

Поглощение импульса зондирования при перекрестных межзонно-внутризонных переходах

Рассмотрим схему поглощения энергии импульса зондирования наностержнем при перекрестных межзонно-внутризонных переходах (рис. 2б). В этом случае импульс накачки с несущей частотой ω_{pu} резонансно возбуждает некоторое состояние электрон-дырочных пар $|j\rangle$. Населенность этого состояния релаксирует в основное состояние со скоростью $\gamma_{j,j}^{(0)}$ либо в состояние $|i\rangle$ со скоростью $\theta_{i,j}$, населенность, которого в свою очередь релаксирует в основное состояние $|0\rangle$ со скоростью $\gamma_{i,i}$. Полная скорость релаксации населенности j -го состояния равна

(σ_{pu} , σ_{pr} – спектральная ширина импульсов накачки и зондирования, $\gamma_{i,0} = \gamma_{i,i} / 2 + \hat{\gamma}_{i,0}$ – скорость полной дефазировки перехода $|0\rangle \leftrightarrow |i\rangle$, $\hat{\gamma}_{i,0}$ – скорость чистой дефазировки этого перехода), которые легко реализуются экспериментально при низких температурах. В результате получаем выражение для поглощенной энергии зондирующего импульса одиночным наностержнем или ансамблем идентичных наностержней в случае каскадных (cas) межзонно-внутризонных переходов:

$\gamma_{j,j} = \gamma_{j,j}^{(0)} + \theta_{i,j}$. Несущая частота зондирующего импульса ω_{pr} попадает в резонанс с частотой перехода между состоянием $|i\rangle$ и состоянием $|k\rangle$, первое из которых имеет энергию меньшую, а второе большую, чем энергия состояния $|j\rangle$. В этой схеме отсутствуют состояния, связанные электрон-фотонным взаимодействием сразу с обоими импульсами. В данном случае мы имеем дело с четырехуровневой моделью наностержня, два уровня которого ($|0\rangle$ и $|j\rangle$) участвуют в переходах, возбуждаемых импульсом накачки, а переходы между двумя другими уровнями ($|i\rangle$ и $|k\rangle$) вызываются импульсом зондирования. Пары этих уровней связаны друг с другом релаксационными процессами.

Как и прежде будем считать, что в начальном состоянии наностержня электрон-дырочные пары отсутствуют, т.е. населенность его основного состояния $|0\rangle$ равна единице, а населенности всех возбуждаемых состояний равны нулю. Если импульс накачки отсутствует, тогда поглощение энергии зондирующего импульса не наблюдается. Пусть на стержень приходит импульс накачки. Поглощение его энергии приводит к непосредственному изменению населенностей $\rho_{0,0}$ и $\rho_{j,j}$ и опосредованному изменению населенности $\rho_{i,i}$ благодаря процессам релаксации со скоростью $\theta_{i,j}$. Зондирующий импульс, приходящий одновременно с импульсом накачки или через время задержки τ после него, будет поглощаться, если населенность $\rho_{i,i}$ окажется ненулевой. Таким образом, населенности участвующих в рассматриваемом процессе состояний наностержня и поглощение энергии зондирующего импульса становятся функция-

ми времени, причем их зависимость от времени определяется скоростями релаксации $\gamma_{i,i}$ и $\gamma_{j,j}$ и $\theta_{i,j}$. Очевидно, что в самом начале и в конце эволюции населенностей величина $\rho_{i,i} \approx 0$, т.е. кинетика поглощенной энергии зондирующего импульса должна описываться кривой с максимумом. Измеряя поглощение зондирующего импульса в зависимости от времени задержки τ можно исследовать кинетику населенностей состояний наностержня, из анализа которой можно найти скорости релаксации энергии $\gamma_{i,i}$ и $\gamma_{j,j}$.

Применяя метод решения системы уравнений для элементов приведенной матрицы плотности [13–15] и используя условия $\tau \gg \sigma_{pr}^{-1}$, σ_{pu}^{-1} и $\sigma_{pu}, \sigma_{pr} \gg \gamma_{i,i}, \gamma_{j,j}, \gamma_{k,k}, \gamma_{j,0}$, получаем выражение для поглощения энергии зондирующего импульса одиночным наностержнем или ансамблем идентичных наностержней в случае перекрестных (cro) межзонно-внутризонных переходов

$$E_{cas}^{(pr)}(\tau) = S \left(e^{-\gamma_{j,j}\tau} - e^{-\gamma_{i,i}\tau} \right) =$$

$$= KN\hbar\omega_{pr} A_{cro}^{(pu)} A_{cro}^{(pr)} \left(\frac{2\sigma_{pu}}{\sigma_{pu}^2 + \Delta_{pu}^2} \right)^2 \times \quad (20)$$

$$\times \left(\frac{2\sigma_{pr}}{\sigma_{pr}^2 + \Delta_{pr}^2} \right)^2 \beta \left(e^{-\gamma_{j,j}\tau} - e^{-\gamma_{i,i}\tau} \right),$$

где $\beta = \theta_{i,j} / (\gamma_{i,i} - \gamma_{j,j})$, $\Delta_{pr} = \omega_k - \omega_i - \omega_{pr}$, $\Delta_{pu} = \omega_i - \omega_{pu}$, $A_{cro}^{(pr)} = |V_{k,i}^{(pr)}|^2 / \hbar^2$, K – кратность вырождения по частоте перехода $i \leftrightarrow k$, матричные элементы $V_{k,i}^{(pr)}$

и $V_{j,0}^{(pu)}$ определяются выражениями (12) и (15) или (17).

На рис. 3а и 3б представлена зависимость $E_{cro}^{(pr)}/S$ от времени задержки для различных релаксационных параметров наностержней. Как и следовало ожидать, эта зависимость обладает максимумом при $\tau = \tau_0$, где

$$\tau_0 = \frac{1}{\gamma_{i,i} - \gamma_{j,j}} \ln \left(\frac{\gamma_{i,i}}{\gamma_{j,j}} \right). \quad (21)$$

Наличие этого максимума облегчает анализ экспериментальных данных. Для рассматриваемого случая перекрестных межзонно-внутризонных переходов величины $\gamma_{i,i}$ и $\gamma_{j,j}$ определяются в результате трехпараметрической аппроксимации экспериментальной кинетики поглощения энергии зондирующего импульса. Соотношение (21) позволяет уменьшить число подгоночных параметров до двух.

Заключение

Исследовано внутризонное поглощение энергии зондирующих импульсов, индуцируемое импульсами накачки, для двух схем оптических переходов в полупроводниковых наностержнях в форме прямоугольного параллелепипеда или цилиндра. Определены условия, при которых зависимость поглощенной энергии зондирующих импульсов от времени задержки по отношению к импульсам накачки при внутризонных переходах описывается

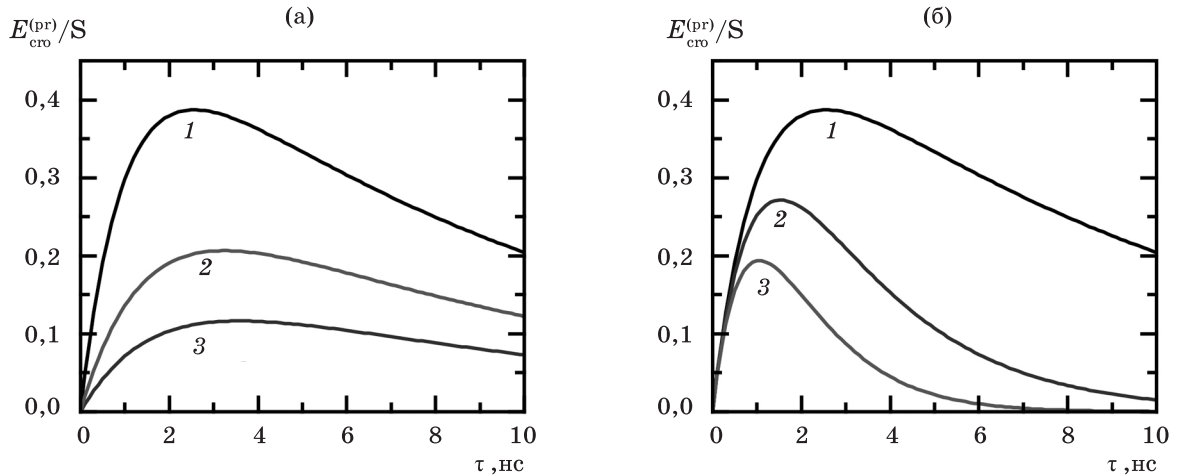


Рис. 3. Зависимости поглощенной энергии импульса зондирования от времени задержки τ . Для (а) $\gamma_{j,j}^{(0)} = 5 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$ и $\gamma_{i,i} = 10^8 \text{ c}^{-1}$: (1) – $\theta_{i,j} = 5 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$, (2) – $\theta_{i,j} = 2 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$, (3) – $\theta_{i,j} = 10^8 \text{ c}^{-1}$. Для (б) $\gamma_{j,j}^{(0)} = 5 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$, $\theta_{i,j} = 5 \times 10^8$: (1) – $\gamma_{i,i} = 10^8 \text{ c}^{-1}$, (2) – $\gamma_{i,i} = 4 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$, (3) – $\gamma_{i,i} = 9 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$.

одной или двумя экспоненциальными функциями с показателями, пропорциональными скоростям релаксации энергии состояний электронной подсистемы наностержней.

Представленные в работе аналитические выражения поглощения энергии зондирующего импульса имеют практическое значение для анализа экспериментальных данных, касающихся динамики квантовых переходов в наностержнях. Эти формулы позволяют определить полные скорости релаксации энергии электронных состояний нанокристаллов. Предложенные

способы определения скоростей релаксации энергии электронных состояний наностержней могут быть использованы в качестве физической основы для разработки и развития неразрушающих оптических экспресс-методов диагностики релаксационных процессов в наноструктурах.

Авторы работы считают своим долгом поблагодарить Министерство образования и науки Российской Федерации (Грант Правительства РФ № 14.В25.31.0002) за финансовую поддержку.

* * * * *

ЛИТЕРАТУРА

1. Wolf C.R., Thonke K., Sauer R. Single-electron transistors based on self-assembled silicon-on-insulator quantum dots // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 96. № 14. P. 142108.
2. Rafailov E.U., Cataluna M.A., Avrutin E.A. Ultrafast lasers based on quantum dot structures: physics and devices. Weinheim: Wiley-VCH, 2011. P. 272.
3. Nozik A.J. Nanoscience and nanostructures for photovoltaics and solar fuels // Nano Lett. 2010. V. 10. № 8. P. 2735–2741.
4. Dusanowski L., Golnik A., Syperek M., Nawrocki M., Sek G., Misiewicz J., Shlereth W.T., Schneider C., Hofling S., Kamp M., Forchel A. Single photon emission in the red spectral range from a GaAs-based self-assembled quantum dot // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. № 10. P. 103108.
5. Press D., Ladd T., Zhang B., Yamamoto Y. Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses // Nature. 2008. V. 456. P. 218–221.
6. Vodnik V.V., Saponjic Z., Dzunuzovic J.V., Bogdanovic U., Mitric M., Nedeljkovic J. Anisotropic silver nanoparticles as filler for the formation of hybrid nanocomposites // Mater. Res. Bull. 2013. V. 48. № 1. P. 52–57.
7. Kolper C., Sabathil M., Romer F., Mandl M., Strassburg M., Witzigmann B. Core-shell InGaN nanorod light emitting diodes: electronic and optical device properties // Phys. Stat. Solidi A. 2012. V. 209. № 11. P. 2304–2312.
8. Lim Y.T., Son J.Y., Rhee J.S. Vertical ZnO nanorod array as an effective hydrogen gas sensor // Ceramics Intern. 2013. V. 39. № 1. P. 887–890.
9. Baranov A.V., Davydov V., Fedorov A.V., Ren H.W., Sugou S., Masumoto Y. Coherent control of stress-induced InGaAs quantum dots by means of phonon-assisted resonant photoluminescence // Phys. Stat. Solidi B. 2001. V. 224. № 2. P. 461–464.
10. Федоров А.В., Баранов А.В., Масумото Ю. Когерентный контроль квазиупругого резонансного вторичного свечения: полупроводниковые квантовые точки // Опт. и спектр. 2002. Т. 92. № 5. P. 797–803.
11. Федоров А.В., Баранов А.В., Масумото Ю. Когерентный контроль резонансного вторичного свечения с участием оптических фононов в полупроводниковых квантовых точках // Опт. и спектр. 2002. V. 93. № 1. P. 56–65.
12. Федоров А.В., Баранов А.В., Масумото Ю. Когерентный контроль термализованной люминесценции полупроводниковых квантовых точек // Опт. и спектр. 2002. Т. 93. № 4. P. 604–608.
13. Леонов М.Ю., Баранов А.В., Федоров А.В. Нестационарное межзонное поглощение света квантовыми точками: вырожденный случай спектроскопии накачка – зондирование // Опт. и спектр. 2010. Т. 109. № 3. С. 398–406.
14. Леонов М.Ю., Баранов А.В., Федоров А.В. Нестационарное межзонное поглощение света квантовыми точками: невырожденный случай спектроскопии накачка – зондирование // Опт. и спектр. 2011. Т. 110. № 1. С. 28–36.
15. Леонов М.Ю., Баранов А.В., Федоров А.В. Нестационарное внутризонное поглощение света квантовыми точками: спектроскопии накачка – зондирование // Опт. и спектр. 2011. Т. 111. № 5. С. 821–830.
16. Sanguinetti S., Guzzi M., Grilli E., Gurioli M., Seravalli L., Frigeri P., Franchi S., Capizzi M., Mazzucato S., Polimeni A. Effective phonon bottleneck in the carrier thermalization of InAs/GaAs quantum dots // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. № 8. P. 085313.
17. Fedorov A.V., Baranov A.V., Masumoto Y. Acoustic phonon problem in nanocrystal-dielectric matrix systems // Solid State Commun. 2002. V. 22. № 3–4. P. 139–144.

18. *Inoshita T., Sakaki H.* Electron relaxation in a quantum dot: significance of multiphonon processes // *Phys. Rev. B.* 1992. V. 46. № 11. P. 7260–7263.
19. *Inoshita T., Sakaki H.* Density of states and phonon-induced relaxation of electrons in semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B.* 1997. V. 56. № 8. P. R4355–R4358.
20. *Li X., Nakayama H., Arakawa Y.* Phonon bottleneck in quantum dots: role of lifetime of the confined optical phonons // *Phys. Rev. B.* 1999. V. 59. № 7. P. 5069–5073.
21. *Baranov A.V., Fedorov A.V., Rukhlenko I.D., Masumoto Y.* Intraband carrier relaxation in quantum dots embedded in doped heterostructures // *Phys. Rev. B.* 2003. V. 68. № 20. P. 205318.
22. *Fedorov A.V., Baranov A.V., Rukhlenko I.D., Masumoto Y.* New many-body mechanism of intraband carrier relaxation in quantum dots embedded in doped heterostructures // *Solid State Commun.* 2003. V. 128. № 6–7. P. 219–223.
23. *Федоров А.В., Баранов А.В.* Релаксация носителей заряда в квантовых точках с участием плазмон-фононных мод // *Физика и техника полупроводников.* 2004. Т. 38. № 9. С. 1101–1109.
24. *Федоров А.В., Баранов А.В.* Внутризонная релаксация носителей заряда в квантовых точках с участием поверхностных плазмон-фононных возбуждений // *Опт. и спектр.* 2004. Т. 97. № 5. С. 853–864.
25. *Fedorov A.V., Baranov A.V., Rukhlenko I.D., Gaponenko S.V.* Enhanced intraband carrier relaxation in quantum dots due to the effect of plasmon-LO-phonon density of states in doped heterostructures // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. № 19. P. 195310.
26. *Guyot-Sionnest P., Wehrenberg B., Yu D.* Intraband relaxation in CdSe nanocrystals and the strong influence of the surface ligands // *J. Chem. Phys.* 2005. V. 123. № 7. P. 074709.
27. *Sercel P.C.* Multiphonon-assisted tunneling through deep levels: a rapid energy-relaxation mechanism in nonideal quantum-dot heterostructures // *Phys. Rev. B.* 1995. V. 51. № 20. P. 14532–14541.
28. *Schroeter D.F., Griffiths D.J., Sercel P.C.* Defect-assisted relaxation in quantum dots at low temperature // *Phys. Rev. B.* 1996. V. 54. № 3. P. 1486–1489.
29. *Vasilevskiy M.I., Anda E.V., Makler S.S.* Electron-phonon interaction effects in semiconductor quantum dots: a nonperturbative approach // *Phys. Rev. B.* 2004. V. 70. № 3. P. 035318.
30. *Narvaez G.A., Bester G., Zunger A.* Carrier relaxation mechanisms in self-assembled (In,Ga)As/GaAs quantum dots: efficient $P \rightarrow S$ auger relaxation of electrons // *Phys. Rev. B.* 2006. V. 74. № 7. P. 075403.
31. *Kruchinin S.Yu., Fedorov A.V., Baranov A.V., Perova T.S., Berwick K.* Resonant energy transfer in quantum dots: frequency-domain luminescent spectroscopy // *Phys. Rev. B.* 2008. V. 78. № 12. P. 125311.
32. *Kruchinin S.Yu., Fedorov A.V., Baranov A.V., Perova T.S., Berwick K.* Double quantum dot photoluminescence mediated by incoherent reversible energy transport // *Phys. Rev. B.* 2010. V. 81. № 24. P. 245303.
33. *Kurtze H., Seebeck J., Gartner P., Yakovlev D.R., Reuter D., Wieck A.D., Bayer M., Jahnke F.* Carrier relaxation dynamics in self-assembled semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B.* 2009. V. 80. № 23. P. 235319.
34. *Berstermann T., Auer T., Kurtze H., Schwab M., Yakovlev D.R., Bayer M., Wiersig J., Gies C., Jahnke F., Reuter D., Wieck A.D.* Systematic study of carrier correlations in the electron-hole recombination dynamics of quantum dots // *Phys. Rev. B.* 2007. V. 76. № 16. P. 165318.
35. *Miyajima K., Edamatsub K., Itoh T.* Infrared transient absorption and excited-state of excitons and biexcitons confined in CuCl quantum dots // *J. Lumin.* 2004. V. 108. № 1–4. P. 371–374.
36. *Urayama J., Norris T.B., Jiang H., Singh J., Bhattacharya P.* Temperature-dependent carrier dynamics in self-assembled InGaAs quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* 2002. V. 80. № 12. P. 2162.
37. *Федоров А.В., Рухленко И.Д., Баранов А.В., Кручинин С.Ю.* Оптические свойства полупроводниковых квантовых точек. СПб.: Наука, 2011. 188 с.
38. *Турков В.К., Кручинин С.Ю., Федоров А.В.* Внутризонные оптические переходы в полупроводниковых квантовых точках: радиационное время жизни электронных возбуждений // *Опт. и спектр.* 2011. Т. 110. № 5. С. 733–780.
39. *Ансельм А.И.* Введение в теорию полупроводников. М.: Мир, 1978. 616 с.