

文章编号:1004-4213(2010)04-0630-4

极化子效应对核壳量子点中光学克尔效应的影响*

陈知红, 方天红

(孝感学院 物理与电子信息工程学院, 湖北 孝感 432000)

摘要:在有效质量近似下利用量子力学的密度矩阵理论,采用无限深势阱模型解三维薛定谔方程得到电子的本征能量和波函数,从理论上计算了考虑极化子效应后,在导带子带间跃迁时 ZnS/CdSe 柱型核壳结构量子点光学克尔效应的三阶极化率.通过数值计算,分析了电子-LO 声子和电子-IO 声子相互作用对 ZnS/CdSe 柱型核壳结构量子点光学克尔效应的三阶极化率的影响,结果表明:极化子效应对光学克尔效应的三阶极化率有很大影响,并且影响的大小与量子点的尺寸大小有关.

关键词:非线性光学;三阶极化率;极化子效应;光学克尔效应

中图分类号:0437

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20103904.0630

0 引言

自 1975 年 Esaki 等人第一次提出了量子线和量子点的概念后,近二十年来对低维半导体的研究在基础理论方面和应用开发方面都十分活跃^[1-2].在量子点结构中,电子、空穴和激子在三维空间受限,呈现具有分立能级的量子态,使得它具有独特的物理特性,与体材料相比有着显著的非线性光学效应,而且其激发阈值也大大降低,因此量子点体系的光学性质越来越受到人们的重视^[2-4].

随着分子束外延技术和金属有机物化学气相沉积技术等现代技术和工艺的发展,人们已能制造出几个分子厚度的量子点.过去大多数的理论研究都是把量子点当作理想的球形来处理^[5-6],实际上,量子点的形状与生长条件有关,量子点按其几何形状可分为矩形、三角形、薄盘形或柱形等多种形式.另外,十几年来,声子对电子、空穴或激子的影响成为低维体系研究的一个热点.1996 年, Liang 等人^[4]研究了量子线中激子的尺寸效应;1997 年,郭康闲、陈传誉等人^[7]讨论了电场作用下极化子效应对量子阱的二次谐波产生的影响;2002 年,刘翠红等人^[8]研究了量子盘中的极化子效应;2006 年,冯晓波、张熙^[5,9]等人计算了球形和柱形 ZnS/CdSe 量子点中的三阶极化率;Xie 和 chen 等人^[10]介绍了柱形量子点中的不同声子模式;Irina^[11]从实验上对 CdSe/ZnS 复合量子点进行了讨论.但迄今为止,很少有人

系统的研究极化子效应对低维量子系统非线性光学性质的影响.

目前,关于极化子效应对核壳结构量子点非线性光学性质的影响这方面的研究还比较少,而极化子效应对光学克尔效应的影响的相关研究就更少了.本文将选择柱型的 ZnS/CdSe 核壳结构量子点,讨论极化子效应对此量子点的光学克尔效应的三阶极化率的影响,并证明极化子效应对三阶极化率的影响是相当重要的.

1 理论

1.1 电子、声子以及电声相互作用哈密顿量

考虑一个电子被约束在柱型核壳结构量子点中,其中核材料为 ZnS,壳层材料为 CdSe.在量子点的外层空间充满非极性介质:水,可以用它来形成无限深势阱.柱型量子点的高度为 d ,核的半径为 R_1 ,壳的半径为 R_2 ,具体模型如图 1.

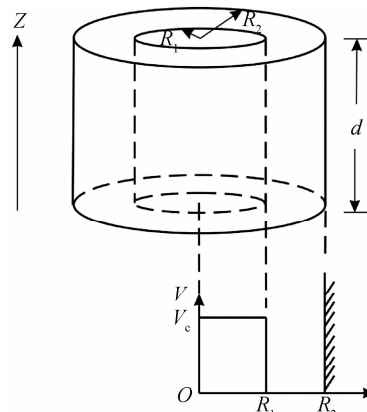


图 1 ZnS/CdSe 核-壳结构柱形量子点模型

Fig. 1 The model of a suppositional core-shell cylindrical quantum dot

*湖北省孝感学院科学研究项目(Z2010008)资助

Tel:0712-2345441

Email:zhihong9905@163.com

收稿日期:2009-08-31

修回日期:2009-10-28

在有效质量近似下,考虑核-壳结构量子点中的单电子,假设光电场沿 z 轴方向入射,采用有效质量近似,系统的哈密顿量可写为

$$H = H_e + H_{ph} + H_{e-ph} \quad (1)$$

第一项为电子的哈密顿量,在柱坐标下可写为

$$H_e = -\frac{\hbar}{2m_i^*} \nabla^2 + V_i \quad (2)$$

式中 m_i^* 是对应不同区域电子的有效质量, V_i 对应量子点不同区域的势能,它们分别满足

$$m_i^* = \begin{cases} m_1^*, & r \leq R_1 \\ m_2^*, & R_1 \leq r \leq R_2 \end{cases} \quad (3)$$

$$V_i(\mathbf{r}) = \begin{cases} V_c, & r < R_1 \\ 0, & R_1 \leq r \leq R_2 \\ \infty, & r > R_2 \end{cases} \quad (4)$$

式(1)中第二项为声子的哈密顿量

$$H_{ph} = H_{LO} + H_{IO} = H_{LO1} + H_{LO2} + H_{IO} \quad (5)$$

式(1)第三项为电子-声子相互作用的哈密顿量

$$H_{e-ph} = H_{e-LO} + H_{e-LO2} + H_{e-IO} \quad (6)$$

式(6)中 H_{e-IO} 是电子在核层与类体 LO 声子的相互作用哈密顿量

$$H_{e-LO1} = -\sum_{lmn} \left[\Gamma_{ml}^{LO1} J_m \left(\frac{x_{ml} r}{R_1} \right) \exp(-im\varphi) \cdot \sin \left(\frac{n\pi}{d} \right) a_{ml}^+ + H. c. \right] \quad (7)$$

式中

$$|\Gamma_{ml}^{LO1}|^2 = \frac{2e^2 \hbar \omega_{LO1}}{d^2 J_{m+1}^2(x_{ml}) \left[x_{ml}^2 + R_1^2 \left(\frac{n\pi}{d} \right)^2 \right]} \cdot \left(\frac{1}{\epsilon_{\infty 1}} - \frac{1}{\epsilon_{01}} \right) \quad (8)$$

式(6)中 H_{e-LO2} 是电子在壳层与类体 LO 声子的相互作用哈密顿量

$$H_{e-LO2} = -\sum_{lmn} \left[\Gamma_{ml}^{LO2} T_m \left(\frac{a_{ml} r}{R_1} \right) \exp(-im\varphi) \cdot \sin \left(\frac{n\pi}{d} \right) b_{ml}^+ + H. c. \right] \quad (9)$$

式中

$$|\Gamma_{ml}^{LO2}|^2 = \sqrt{\frac{4e^2 \hbar \omega_{LO2}}{d} \left(\frac{1}{\epsilon_{\infty 2}} - \frac{1}{\epsilon_{02}} \right)^{1/2}} \cdot \{ a_{ml}^2 [v^2 T_{m-1,l}^2(a_{ml} v) + v^2 T_{m+1,l}^2(a_{ml} v) - T_{m-1,l}^2(a_{ml}) - T_{m+1,l}^2(a_{ml})] - 2 \left(\frac{\pi}{d} \right)^2 \cdot R_1^2 [v^2 T_{m-1,l}(a_{ml} v) - T_{m+1,l}(a_{ml} v) - T_{m-1,l}(a_{ml}) T_{m+1,l}(a_{ml})] \}^{-1/2} \quad (10)$$

式中 d 为柱型量子点的长度, x_{ml} 为 m 阶贝塞尔函数的第 l 个零点, ϵ_{01} 和 ϵ_{02} 分别为不同区域的静态介电常量, $\epsilon_{\infty 1}$ 和 $\epsilon_{\infty 2}$ 分别为不同区域的高频介电常量.

式(6)中 H_{e-IO} 是电子与 IO 声子相互作用哈密

顿量^[10]

$$H_{e-IO} = -\sum [\Gamma_m^{IO} \exp(-im\varphi) \sin \left(\frac{n\pi d}{d} \right) c_{mm}^+ + H. c.] \times \begin{cases} K_m \left(\frac{n\pi}{d} R_1 \right) I_m \left(\frac{n\pi}{d} r \right) & r \leq R_1 \\ I_m \left(\frac{n\pi}{d} R_1 \right) K_m \left(\frac{n\pi}{d} r \right) & r > R_1 \end{cases} \quad (11)$$

$$|\Gamma_m^{IO}| = \frac{4e^2 \hbar \omega}{d^2 \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right)^2} \times \left\{ \left(\frac{1}{\epsilon_1 - \epsilon_{01}} - \frac{1}{\epsilon_1 - \epsilon_{\infty 1}} \right)^{-1} \times K_m^2 \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) I_m \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) \frac{m\pi}{d} R_1 \left[I_{m-1} \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) + I_{m+1} \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) \right] + I_m^2 \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) K_m \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) \frac{m\pi}{d} \cdot R_1 \left[K_{m-1} \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) + K_{m+1} \left(\frac{m\pi}{d} R_1 \right) \right] \times \left(\frac{1}{\epsilon_2 - \epsilon_{02}} - \frac{1}{\epsilon_2 - \epsilon_{\infty 2}} \right)^{-1} \right\}^{-1} \quad (12)$$

$$\epsilon_1 = \epsilon_{\infty 1} \frac{\omega^2 - \omega_{LO1}^2}{\omega^2 - \omega_{TO1}^2} \quad \epsilon_2 = \epsilon_{\infty 2} \frac{\omega^2 - \omega_{LO2}^2}{\omega^2 - \omega_{TO2}^2} \quad (13)$$

这里 $I_n(x)$ 和 $K_n(x)$ 分别为第一类和第二类变形 Bessel 函数.

1.2 系统波函数和三阶极化率

采用柱坐标,通过解 Schrödinger 方程,系统波函数可写为^[12]

$$\Psi_{ML}(r, z) = N_{ML} e^{im\varphi} \sin \left(\frac{L\pi z}{d} \right) \times \begin{cases} J_M(k_2 r) & r < R_1 \\ \frac{J_M(k_2 R_1)}{K_M(k_1 R_1)} & r \geq R_1 \end{cases} \quad (14)$$

式中 $K_M(x)$ 为第二类变形 Bessel 函数, N_{ML}^2 可写为

$$N_{ML}^2 = \frac{K_M^2(k_1 R_1)}{\pi R_1^2 d} \times [J_M^2(k_2 R_1) K_{M-1}^2(k_1 R_1) K_{M+1}^2(k_1 R_1) - K_M^2(k_1 R_1) J_{M-1}^2(k_2 R_1) J_{M+1}^2(k_2 R_1)]^{-1} \quad (15)$$

这里 $k_i^2 = \frac{2m_i^*}{\hbar^2} (E - V_i) - (l\pi/d)^2$

在电子-声子弱耦合情况下,可把电声相互作用项作为微扰项.假设讨论的是温度接近于零的情况,系统的基态是声子真空态,而且在光跃迁过程中认为只有单个声子的吸收和发射,极化子的波函数可以用量子力学微扰理论求得

$$|\Psi_i\rangle = |\Phi_i\rangle + \sum_{j \neq i} \frac{[H_{e-ph}]_{ji}}{E_i - E_j - \epsilon} |\Phi_j\rangle \quad (16)$$

式中 $\epsilon = \hbar \epsilon_{LO}$ (或者 $\hbar \epsilon_{IO}$) 是单个声子的能量.

利用密度矩阵方法,考虑系统的对称性,对于光学克尔效应,三阶非线性光学极化率的表达式可写为

$$\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega) = \frac{N e^4}{\epsilon \hbar^3} \mu_{12} \mu_{23} \mu_{34} \mu_{41} \times$$

$$\left[\frac{1}{(\omega_{21}^* - \omega)\omega_{31}^*(\omega_{41}^* - \omega)} + \frac{2}{(\omega_{21}^* + \omega)\omega_{31}^*(\omega_{41}^* - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{21}^* - \omega)\omega_{31}^*(\omega_{41}^* + \omega)} \right] \quad (17)$$

这里 $\mu_{ij} = \langle \Psi_i | r | \Psi_j \rangle$, $\hbar\omega_{ij} = E_j - E_i - i\Gamma_{ij}$

通过推导,已经得到未微扰时的波函数、本征能量以及电声相互作用哈密顿量,将推导的结论带入式(17),便可求得 $\chi^{(3)}$ 。

2 数值计算及讨论

以典型的 ZnS/CdSe 材料量子点为例进行数值计算. 计算中所用参量由表 1 给出.

表 1 材料参量

Table 1 The material parameters (m_0 is the rest electron mass)

Material	m^*/m_0	$\hbar\omega_{LO}/\text{meV}$	$\hbar\omega_{LO}/\text{meV}$	ϵ_0	ϵ_∞
ZnS	0.28	43.6	33.67	8.1	5.14
CdSe	0.13	26.41	20.83	9.56	6.23

另外, $N = 5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$; $V_c = 0.9 \text{ eV}$; 弛豫时间 $\tau = 300 \text{ fs}$.

光学克尔效应对应的三阶极化率为 $\chi^{(3)}(\omega) = \chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega)$, 具体计算结果如图 2~4.

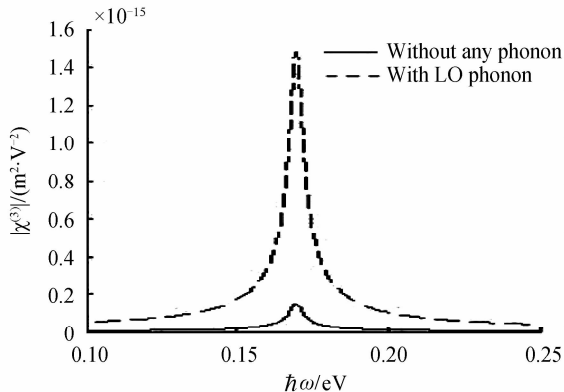


图 2 考虑 LO 声子和不考虑任何声子时 $\chi^{(3)}$ 随入射光能量变化曲线

Fig. 2 The third-order susceptibility is plotted as a function of the phonon energy $\hbar\omega$ for two cases: considering electron-LO-phonon interaction effects and ignoring electron-phonon interaction effects

图 2 画出了在量子点大小 $d = 4.0 \text{ nm}$, $R_1 = 4.5 \text{ nm}$, $R_2 = 7.4 \text{ nm}$ 时, $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega)$ 随入射光能量 $\hbar\omega$ 变化的关系曲线. 图中考虑了两种状况: 一种是实线画出的不考虑任何声子的情况, 另一种是虚线画出的考虑 LO 声子的情况. 由图 2 可以看出, 随着入射光能量的不同, LO 声子对三阶极化率的影响不同, 在峰值处的影响相对来说要明显得多. 当 $R_2 = 7.4 \text{ nm}$ 时, 在峰值处的三阶极化率考虑 LO 声子后大约是不考虑 LO 声子的 10 倍左右. 这主要是因为当考虑极化子效应后, 特别是考虑了电子-LO 声子相互作用后, 偶极跃迁矩阵元显著增加, 从

而三阶极化率得到显著加强.

图 3 画出了在量子点大小 $d = 4.0 \text{ nm}$, $R_1 = 4.5 \text{ nm}$, $R_2 = 7.4 \text{ nm}$ 时考虑 IO 声子和不考虑任何声子时 $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega)$ 随入射光能量变化的关系曲线, 图中实线是不考虑任何声子的情况, 虚线是考虑 IO 声子的情况. 由图 3 可以看出, 随着入射光能量的不同, IO 声子对三阶极化率的影响不同, 在峰值处的影响相对来说要明显得多. 当 $R_2 = 7.4 \text{ nm}$ 时, 在峰值处的三阶极化率考虑 IO 声子后大约是不考虑任何声子时的 1.2 倍. 相比较 LO 声子而言, 在 $R_2 = 7.4 \text{ nm}$, 其它量子点参量不变的条件下, LO 声子的影响远大于 IO 声子的影响.

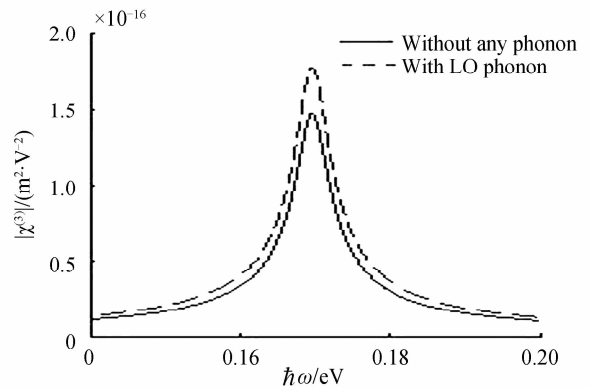


图 3 考虑 IO 声子和不考虑任何声子时 $\chi^{(3)}$ 随入射光能量变化曲线

Fig. 3 The third-order susceptibility is plotted as a function of the phonon energy $\hbar\omega$ for two cases: considering electron-IO-phonon interaction effects and ignoring electron-phonon interaction effects

图 4 分别给出了 R_2 取 6.3 nm , 6.8 nm , 7.3 nm 时 $\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega)$ 随入射光能量 $\hbar\omega$ 变化的关系曲线. 由图 4 可以看出, 当量子点的大小发生变化时, 光学克尔效应的三阶极化率将发生较大变化, 在峰值处变化更是明显; 不考虑极化子时, 三阶极化

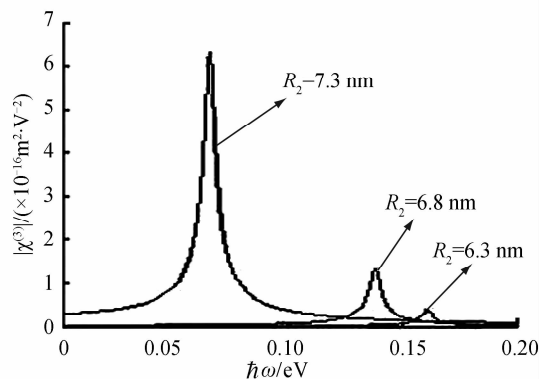


图 4 R_2 取 6.3 nm , 6.8 nm , 7.3 nm 光学克尔效应 $\chi^{(3)}$ 随入射光能量变化曲线

Fig. 4 The third-order susceptibility $\chi^{(3)}$ is plotted as a function of the phonon energy $\hbar\omega$ ($R_2 = 7.3 \text{ nm}$, 6.8 nm , 6.3 nm)

率的峰值随半径的减小而减小,且峰值位置发生蓝移。

3 结论

利用密度矩阵方法,在有效质量近似下,研究了极化子效应对核壳量子点三阶极化率的影响,从数值上计算了 ZnS/CdSe 核壳柱型量子点中电子-LO 声子相互作用和电子-IO 声子相互作用对光学克尔效应的影响。结果显示,LO 声子和 IO 声子都对光学克尔效应的三阶极化率有比较大的影响,考虑极化子效应后,光学克尔效应的三阶极化率显著增大了;不考虑极化子时,三阶极化率的峰值随半径的减小而减小,峰值位置也发生了蓝移。上面的讨论为实验研究和实际应用提供了理论依据,对超快光开关、调制器和光运输等问题的研究和改进有参考价值。

参考文献

- [1] GUI Zhou-qi, XIONG Gui-guang, ZHANG Xi. Size-dependent third-order nonlinear susceptibility of parabolic AlGaIn/GaN quantum dots[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(12): 2235-2238.
桂周琦,熊贵光,张熙. AlGaIn/GaN 抛物量子点的尺寸相关三阶非线性极化率研究[J]. *光子学报*, 2007, **36**(12): 2235-2238.
- [2] REISS P, CARAYON S, BLEUSE J, *et al.* Low polydispersity core/shell nanocrystals of CdSe/ZnSe and CdSe/ZnSe/ZnS type: preparation and optical studies[J]. *Synthetic Metals*, 2003, **139**: 649-652.
- [3] LIAO Qing-hong, LIU Zheng-dong, YOU Su-ping, *et al.* Stimulated emission behavior of single quantum dot in microcavity[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(5): 883-886.

- 廖庆洪,刘正东,尤素萍,等. 微腔中单量子点的受激辐射行为研究[J]. *光子学报*, 2008, **37**(5): 883-886.
- [4] LIANG S D, CHEN C Y, JIANG S C, *et al.* Size effect on exciton-phonon scattering in quantum wires[J]. *Phys Rev B*, 1996, **53**: 15459-15461.
- [5] FENG Xiao-bo, XIONG Gui-guang, ZHANG Xi, *et al.* Third-order nonlinear optical susceptibilities associated with intersubband transitions in CdSe/ZnS core-shell quantum dots[J]. *Physica B*, 2006, **383**(2): 207.
- [6] GONG Shao-hua, YAO Duan-zheng, FENG Xiao-bo, *et al.* Quantum size dependent optical nutation in a core-shell CdSe/ZnS quantum dot[J]. *Microelectronics Journal*, 2006, **37**: 904-909.
- [7] GUO K X. Influence of electron-confined phonon interaction on third-order optical nonlinearity in a quantum wire with parabolic potential[J]. *Solid State Commun*, 1997, **103**: 255-258.
- [8] LIU Cui-hong. Third-order nonlinear optical susceptibility in a cylindrical quantum dot[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(11): 1740-1744.
刘翠红. 柱形量子点中的三阶极化率[J]. *光子学报*, 2005, **34**(11): 1740-1744.
- [9] ZHANG Xi, XIONG Gui-guang, FENG Xiao-bo. Well width-dependent third-order optical nonlinearities of a ZnS/CdSe cylindrical quantum dot quantum well[J]. *Physica E*, 2006, **33**(1): 120.
- [10] XIE Hong-jing, CHEN Chuan-yu, MA Ben-kun. The bound polaron in a cylindrical quantum well wire with a finite confining potential[J]. *J Phys: Condens Matter*, 2000, **12**: 8623-8640.
- [11] GERDOVA I, HACHÉ A. Third-order non-linear spectroscopy of CdSe and CdSe/ZnS core shell quantum dots[J]. *Opt Communications*, 2005, **246**: 205-212.
- [12] XIE Hong-jing, LIU Xiao-Yan. Polarons in a cylindrical quantum well wire with finite confining potential [J]. *Superlattices and Microstructures*, 2006, **39**: 489-500.

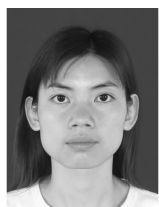
Polaron Effect on the Optical Kerr Effect in a Core-shell Quantum Dot Quantum Well

CHEN Zhi-hong, FANG Tian-hong

(School of Physics and Electronic-information Engineering, Xiaogan University, Xiaogan, Hubei 432000, China)

Abstract: The effect of the electron-phonon interaction on the Optical Kerr effect is investigated theoretically for electrons confined in a core-shell quantum dot. The interactions of electrons with different phonon modes in the core-shell system, including the confined longitudinal optical (LO) and the interface optical (IO) phonon modes, are investigated. It carried a detailed calculation of Optical Kerr effect on a ZnS/CdSe core-shell quantum dot as a function of pump photon energy with different incident photon energy and under different sizes. The results reveal that the polaron effects are quite important especially around the peak value of the third-order susceptibility.

Key words: Nonlinear optical; Third-order susceptibilities; Polaron effect; Optical Kerr effect



CHEN Zhi-hong was born in 1980. She obtained her M. S. degree in 2007. Now she is a lecturer at School of Physics and Electronic-information Engineering Xiaogan University, and her research interests focus on nonlinear optical in low-dimensional semiconductor structures.