

doi: 10.3788/gzxb20124101.0054

核壳结构 CdSe/ZnS 量子点量子阱中 $1s_e1s_h$ 激子光跃迁的受激光子回波研究

龚少华^{1,2}, 傅军¹, 符运良¹, 沈振江¹

(1 海南师范大学 物理与电子工程学院, 海口 571158)

(2 中国科学院空间大气国家重点实验室, 北京 100000)

摘 要:在建模和理论分析的基础上, 对三脉冲飞秒激光作用下核壳结构 CdSe/ZnS 量子点量子阱中 $1s_e1s_h$ 激子光跃迁引起的受激光子回波效应进行了深入研究. 运用有效质量近似方法求解了载流子的静态薛定谔方程, 得到能量本征值和对应波函数. 基于光学 Bloch 方程, 分析了受激光子回波的参量相关性. 结果显示受激光子回波信号可以通过量子点量子阱结构和尺寸的改变进行有效调节. 同时, 在量子尺寸限制理论的基础上讨论了结构和尺寸的变化对受激光子回波信号的具体影响.

关键词:受激光子回波; 核壳结构量子点量子阱; 光学 Bloch 方程

中图分类号: O439; 4265G

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2012)01-0054-7

0 引言

当前, 无论是在微纳结构和器件的基础研究还是具体应用领域中, 半导体凝胶量子点受到了人们的极大关注^[1-3]. 由于具有出色的光学性质, 人们对核壳结构 CdSe/ZnS 凝胶量子点量子阱 (Quantum Dot-Quantum Well, QDQW) 进行了较多研究. 通过尺寸和结构的简单调节, 可以使其光致发光有效地覆盖可见光谱; 同时由于外壳层的表面钝化效应使其在室温下具有较好的光稳定性和量子化产率. 这些良好的特性使其可以广泛用作生物探针和量子信息领域的发光器件^[4], 还可以应用于薄膜发光二极管 (Light-Emitting Diode, LED)、纳晶量子点激光器等器件的制作领域^[5-6].

光子回波是一种经常出现在非均匀展宽原子系统的瞬态相干过程中的非线性光学现象. 通常来说, 有两脉冲光子回波、受激光子回波和时间积累的光子回波三种. 其中受激光子回波技术对于未来的量子通讯有着更重要的实际意义, 它能将强的光脉冲有效地存储在非均匀展宽的原子系统之中. 最近, Nicolas Sangouard 等人运用受激光子回波技术实现了单光子的光存储^[7]; A. Delfan Abazaril 等人试验研究了基于受激光子回波技术的量子通讯和计

算^[8]; Graham R. Fleming 小组利用受激光子回波技术测量了室温下单层纳米碳管中的激子的驰豫时间^[9].

尽管光子回波技术已经广泛地应用于很多科学领域, 但是它在不同低维半导体结构中的瞬态相干动力学理论本身还存在着一些争议. 基于光学 Bloch 方程, 本文对核壳结构 CdSe/ZnS 凝胶量子点量子阱中的 $1s_e1s_h$ 激子光跃迁的受激光子回波进行了理论研究. 结果显示, 光子回波信号依赖于量子点量子阱的结构和尺寸的变化, 回波效率可以通过对核的尺寸的改变进行有效调节和控制. 同时在量子尺寸限制理论的基础上, 此瞬态相干的动力学过程得到了适当的解释.

1 理论和模型

考虑一个由化学合成法^[10-11]得到的孤立的核壳结构 CdSe/ZnS 凝胶量子点量子阱, 模型结构和对应的激子光跃迁示意图如图 1. R_1 和 R_2 分别是量子点量子阱的内、外半径, V_1 和 V_2 为两种材料的化学势. 由于两种材料的不同带隙, 形成了一个中心势阱和壳层的势垒结构. 在有效质量近似下, 载流子的静态薛定谔方程可以写为

基金项目:海南省自然科学基金 (No. 110006, No. 511115)、海南师范大学光学重点学科建设项目 (No. HS-2-2011-070207) 和中国博士后自然科学基金 (No. 20110490609) 资助

第一作者:龚少华 (1976—), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为低维半导体纳米结构的光学性质研究. Email: shhgong@hainnu.edu.cn

收稿日期: 2011-08-09; **修回日期:** 2011-11-15

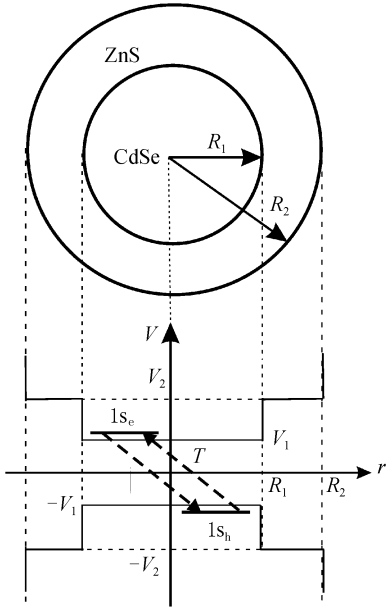


图1 核壳结构 CdSe/ZnS 量子点量子阱模型和相应的激子光跃迁示意图

Fig. 1 Model of core-shell CdSe/ZnS quantum dot-quantum well and corresponding schematic of potentials

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m_i^* r^2} \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] + V_i(r) \right\} \Phi_{nlm}(r) = E \Phi_{nlm}(r) \quad (1)$$

式中 m_i^* 、 $V_i(r)$ 分别为载流子的有效质量和对应的限制势,它们都和粒子所处的位置相关,其表达式为

$$m_i^* = \begin{cases} m_1^* & r \leq R_1 \\ m_2^* & R_1 < r \leq R_2 \end{cases} \quad (2)$$

$$V_i(r) = \begin{cases} V_1 & r \leq R_1 \\ V_2 & R_1 < r \leq R_2 \\ \infty & r > R_2 \end{cases} \quad (3)$$

由于质量和限制势的球对称性分布,载流子的波函数可以写为

$$\Phi_{nlm}(r, \theta, \phi) = R_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \phi) \quad (4)$$

$R_{nl}(r)$ 为径向波函数, $Y_{lm}(\theta, \phi)$ 为球谐函数. 采用文献[12]中的方法,可求解出 $1s$ 态 ($l=m=0$) 载流子的能量本征值 E 和对应的波函数 $\Phi_{n,l}$, 形式如下

(i) 在区域 $E > V_i$,

$$R_{nl}(r) = \begin{cases} A_1 j_l(k_{nl,1}r) + B_1 n_l(k_{nl,1}r) & r \leq R_1 \\ A_2 j_l(k_{nl,2}r) + B_2 n_l(k_{nl,2}r) & R_1 < r \leq R_2 \\ 0 & r > R_2 \end{cases} \quad (5)$$

(ii) 在区域 $E < V_i$,

$$R_{nl}(r) = \begin{cases} A'_1 j_l(k_{nl,1}r) + B'_1 n_l(k_{nl,1}r) & r \leq R_1 \\ A'_2 h_l^{(+)}(ik_{nl,2}r) + B'_2 h_l^{(-)}(ik_{nl,2}r) & R_1 < r \leq R_2 \\ 0 & r > R_2 \end{cases} \quad (6)$$

式中 $j_l(x)$ 、 $n_l(x)$ 、 $h_l^{(\pm)}(x)$ 分别为 Bessel 球谐函数、

Neumann 函数和 Hankel 函数, $k_{nl,i} = \sqrt{2m_i^* |E - V_i| / \hbar^2}$, 系数 A_1 、 A_2 、 B_1 、 B_2 、 A'_1 、 A'_2 、 B'_1 、 B'_2 是通过波函数的衔接条件和归一化条件求解的常量. 具体条件为

$$R_{nl,1}(R_1) = R_{nl,2}(R_1), R_{nl,2}(R_2) = 0;$$

$$\frac{1}{m_1^*} \frac{dR_{nl,1}}{dr} \Big|_{r=R_1} = \frac{1}{m_2^*} \frac{dR_{nl,2}}{dr} \Big|_{r=R_1};$$

$$\int_0^{r_1} r^2 R_{nl,1}^* R_{nl,1} dr + \int_{r_1}^{r_2} r^2 R_{nl,2}^* R_{nl,2} dr = 1 \quad (7)$$

将 $1s_e, 1s_h$ 激子中的库仑作用视作类氢的微扰项,可以求得对应的库仑作用能.

$$E_{\text{Coulomb}} = -\frac{e^2}{4\pi} \iint dr_e dr_h \frac{\Phi_e^*(r_e) \Phi_e^*(r_h) \Phi_e(r_e) \Phi_e(r_h)}{|r_e - r_h|} \times \frac{1}{\epsilon(r_e, r_h)} \quad (8)$$

这里 $\epsilon_r(r_e, r_h)$ 对应的是高频介电常量. 将 $\frac{1}{|r_e - r_h|}$ 项按球谐函数展开,并对角分量积分得到

$$E_{\text{Coulomb}} = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iint dr_e dr_h r_e^2 r_h^2 \frac{|R_e(r_e)|^2 |R_h(r_h)|^2}{\max(r_e, r_h)} \times \frac{1}{\bar{\epsilon}_r(r_e, r_h)} \quad (9)$$

$\bar{\epsilon}_r(r_e, r_h)$ 是电子和空穴之间材料的平均相对介电常量,并且它与量子点样品的尺寸有式(10)的关系^[13]

$$\bar{\epsilon}_\infty^{\text{dot}} = 1 + \frac{\epsilon_\infty^{\text{bulk}} - 1}{1 + (7.5 \text{ \AA} / 2r)^{1.2}} \quad (10)$$

式中 r 是样品的半径.

这样核壳结构 CdSe/ZnS 量子点量子阱的新带隙可以写为^[14]

$$E_{\text{gap}} = E_{e,1s} + E_{h,1s} + E_{\text{Coulomb}} + E_{\text{gap}}^{\text{bulk}} \quad (11)$$

对于非均匀展宽的二能级原子系统中的光学瞬态相干效应,可以运用光学 Bloch 方程描述为

$$\dot{u} = \Delta v - \gamma_{\text{ab}} u = \Delta v - \frac{u}{T_2} \quad (12a)$$

$$\dot{v} = -\Delta u + \chi w - \gamma_{\text{ab}} v = -\Delta u + \chi w - \frac{v}{T_2} \quad (12b)$$

$$\dot{w} = -\chi v - \gamma[w - w_0] = -\chi v - \frac{w - w_0}{T_1} \quad (12c)$$

这里, u 、 v 和 w 是 Bloch 矢量 $\mathbf{M} \equiv (u, v, w)$ 的三个参量, χ 是 Rabi 频率, $\gamma = 1/T_1$, $\gamma_{\text{ab}} = 1/T_2$, 其中 T_1 、 T_2 分别是纵向和横向驰豫时间. Δ 是入射激光脉冲的频率 (ω_{laser}) 和介质的共振频率 (ω_{ab}) 的偏差,写作

$$\Delta = \omega_{\text{laser}} - k v_z - \omega_{\text{ab}} \quad (13)$$

式中的 v_z 是原子热运动在激光脉冲方向上的速度分量.

认为系统处于极低的温度下,考虑三个飞秒激光脉冲作用下样品中的受激光子回波. 样品被如图

2 所示的脉冲共振激发. 三个飞秒激光脉冲具有相同的中心频率, 将第一个脉冲看作 50 fs 的写入脉冲 (Write Pulse), 第二个脉冲是 100 fs 的待存储的数据脉冲信号 (Data Pulse). 数据脉冲信号将被写入脉冲存储在二能级原子系统的 $1s_e 1s_h$ 态和基态中. 第三个脉冲是一个 50 fs 的读取脉冲 (Read Pulse), 它将重现这个存储过程并形成光子回波信号. 这里输入的脉冲面积都设定为 $\pi/2$.

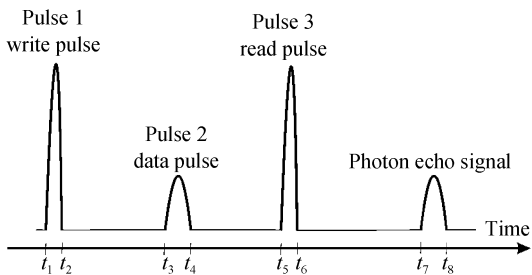


图 2 三脉冲受激光子回波示意图

Fig. 2 Pulse train for the three-pulse stimulated photon echo

由于系统处于低温下, 在第一个脉冲到达之前, 系统处于基态. 系统的初态用 Bloch 矢量可以描述为

$$\mathbf{M}(t_1) = \begin{pmatrix} u \\ v \\ \omega_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ n_a - n_b \end{pmatrix} \quad (14)$$

这里 $n_a - n_b$ 是两个态上初始粒子数之差, 并且 n_a 和 n_b 都遵循麦克斯韦速度分布函数.

在第一个脉冲作用过程中, 介质中进行了一个光学章动过程. 由于作用的脉冲的面积是 $\pi/2$, 光学 Bloch 矢量 \mathbf{M} 旋转了 $\pi/2$ 的角度^[12].

$$\mathbf{M}(t_2) = \begin{pmatrix} u(t_2) \\ v(t_2) \\ \omega(t_2) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ \omega_0 \sin \pi/2 \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ n_a - n_b \\ 0 \end{pmatrix} \quad (15)$$

在时间段 $t_2 \leq t \leq t_3$, 没有外场作用, 介质中经历一个自由感应衰变过程. 考虑到激发态寿命的衰减效应, 由公式 (12a~12c) 和初始条件公式 (15) 可以推出 t_3 时刻的 Bloch 矢量 $\mathbf{M}(t_3)$ 为

$$\mathbf{M}(t_3) = \begin{pmatrix} u(t_3) \\ v(t_3) \\ \omega(t_3) \end{pmatrix} = (n_a - n_b) \begin{pmatrix} \exp[-\gamma_{ab}(t_3 - t_2)] \sin \Delta(t_3 - t_2) \\ \exp[-\gamma_{ab}(t_3 - t_2)] \cos \Delta(t_3 - t_2) \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \exp[-2\gamma(t_3 - t_2)] \end{pmatrix} \quad (16)$$

同样的方法, 对于数据脉冲信号和读取脉冲的到来, 介质中将会依次重复光学章动过程和自由感应衰变过程各一次. 对应不同时刻的 Bloch 矢量 \mathbf{M} 的分量可以由公式 (12a~12c) 计算得到.

在时间段 $t > t_6$ 时, Bloch 矢量 \mathbf{M} 的 $v(t > t_6)$ 分量为

$$v(t) = \frac{1}{2} (n_a - n_b) \exp[-\gamma_{ab}(t - t_6)] \{ \cos \Delta(t - t_6) - \cos \Delta(t - t_6) \exp[-2\gamma(t_5 - t_4)] + 2 \cos \Delta(t - t_6) \cos \Delta(t_3 - t_2) \exp[-\gamma_{ab}(t_3 - t_2) - 2\gamma(t_5 - t_4)] + \sin \Delta(t - t_6) \sin \Delta(t_5 - t_4) \cdot \exp[-\gamma_{ab}(t_3 - t_2) - 2\gamma(t_5 - t_4)] - \sin \Delta(t - t_6) \sin \Delta(t_5 - t_4) \exp[-\gamma_{ab}(t_5 - t_4)] - 2 \sin \Delta(t - t_6) \cos \Delta(t_5 - t_4) \sin \Delta(t_3 - t_2) \exp[-\gamma_{ab}(t_3 - t_2 + t_5 - t_4)] \} \quad (17)$$

由于再辐射场仅仅与 Bloch 矢量 \mathbf{M} 的 $v(t)$ 分量相关, 样品中在垂直于入射激光方向上的有效极化强度为

$$P_{\text{eff}} = -\mu_{ab} \int_{-\infty}^{\infty} v(t) dt \quad (18)$$

式中 μ_{ab} 是 $1s_e 1s_h$ 激子光跃迁的电偶极矩阵元

$$\mu_{ab} = \langle \Phi_a | -e \cdot r | \Phi_b \rangle \quad (19)$$

如是, 时间段 $t > t_6$ 再辐射出的光子回波信号为

$$I_{\text{echo}} = \frac{\omega_{ab}^2 L^2}{8\epsilon_0 c} P_{\text{eff}}^2(t - \tau) \quad (20)$$

式中 L 和 τ 分别是激光脉冲穿过样品所通过的距离和所用的时间, ϵ_0 和 c 是光在真空中的传播常量.

2 结果与讨论

为了研究核壳结构 CdSe/ZnS 凝胶量子点量子阱中的受激光子回波效应, 探讨了受激光子回波信号随样品的结构和尺寸变化的改变情况. 计算过程中的参量值为: $t_3 - t_2 = 300$ fs, $t_5 - t_4 = 400$ fs; $m_{e, \text{CdSe}}^* = 0.135 m_0$, $m_{h, \text{CdSe}}^* = 0.410 m_0$ ^[18]; $m_{e, \text{ZnS}}^* = 0.420 m_0$, $m_{h, \text{ZnS}}^* = 0.610 m_0$ ^[19]; $E_{\text{gap, CdSe}}^{\text{bulk}} = 1.68$ eV, $E_{\text{gap, ZnS}}^{\text{bulk}} = 3.62$ eV^[20]; $n_a - n_b = 5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ^[21-22]. (m_0 是自由电子的质量.)

首先, 保持样品的外半径不变 $R_2 = 5.6$ nm, 内半径 R_1 从 2.6 nm 增加到 5.2 nm, 此时由 $1s_e 1s_h$ 激子光跃迁得到的受激光子回波信号变化情况如图 3

所示.可以看出受激光子回波信号有四个回波峰,依次出现在 100 fs、300 fs、400 fs 和 700 fs 处.由公式(17)知,第一个出现在 $t=t_6 + [(t_5 - t_4) - (t_3 - t_2)]$ 的光子回波峰才是三脉冲激发串的受激光子回波的信号;第二个出现在 $t=t_6 + (t_5 - t_4)$ 的光子回波峰是由数据脉冲信号和读取脉冲激发的两脉冲光子回波信号;第三个出现在 $t=t_6 + (t_3 - t_2)$ 的光子回波峰是写入脉冲和数据脉冲信号激发的两脉冲光子回波信号;最后一个出现在 $t=t_6 + [(t_5 - t_4) + (t_3 - t_2)]$ 代表的是写入脉冲和读取脉冲激发的两脉冲光子回波信号.

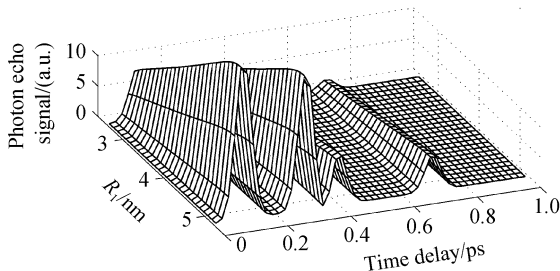


图3 样品的外半径不变 $R_2 = 5.6$ nm, 受激光子回波信号随内半径 R_1 增大的变化

Fig. 3 Stimulated photon echo signals change with the size variation of quantum dot-quantum well's inner radius R_1 when the external radius $R_2 = 5.6$ nm kept steady

通过比较回波信号的强度发现,在延迟的时间坐标轴方向上,这四个光子回波信号依次减弱.通常来说,受激光子回波的信号才是被利用光子回波技术存储在介质中的有用信息.但是图3的结果显示:脉冲两两之间激发的两脉冲光子回波信号也很强.所以,在具体的三脉冲光子回波技术应用中,的确需要注意来自两脉冲光子回波信号的干扰.这在以前的关于三脉冲光子回波技术应用的文献中很少被提到,但是当激发态的寿命衰减被考虑进去以后两脉冲光子回波信号的干扰的确存在,不可忽视.

同时,从图3可以看出,在样品的外半径 $R_2 = 5.6$ nm 保持不变,内半径 R_1 逐渐从 2.6 nm 增加到 5.2 nm 的过程中,回波信号的振幅出现先增大后减小的现象,并且在 $R_1 = 5.1$ nm 时信号最强.这说明三脉冲光子回波信号强度依赖于样品的尺寸结构,此时的最佳结构是在 $R_1 = 5.1$ nm 时.由公式(18~20)知,受激光子回波信号强度的变化的一个主要原因是 $1s_e, 1s_h$ 激子的光跃迁对应的跃迁偶极矩阵元的大小变化.本文分析了样品结构和尺寸的变化在此过程中对光跃迁偶极矩阵元的影响,具体结果见图4.

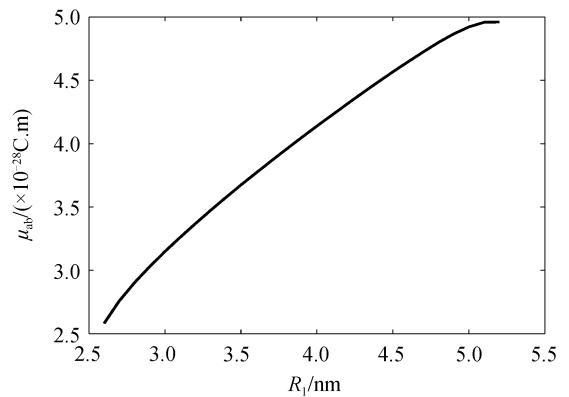


图4 样品的外半径不变 $R_2 = 5.6$ nm, 光跃迁偶极矩随内半径 R_1 增大的变化

Fig. 4 The electric transition dipole moment for the optical transition of $1s_e, 1s_h$ excitons changed with the growth of inner radius R_1 when the external radius $R_2 = 5.6$ nm kept steady

图4显示,在内半径 R_1 逐渐从 2.6 nm 增加到 5.2 nm 的过程中,跃迁偶极矩阵元 μ_{ab} 快速从 2.5804×10^{-28} C·m 增加到 4.9609×10^{-28} C·m, 然后逐渐减小,且在 $R_1 = 5.1$ nm 时取到最大.这说明在 $R_2 = 5.6$ nm 时, $R_1 = 5.1$ nm 是受激光子回波最佳结构.

通常来说,当量子点的尺寸增加时,由于量子限制效应的减弱,载流子的量子限制能减小,两能级间的间隙也会减小,这将直接导致两能级间的光跃迁偶极矩阵元的增加.为了分析两能级间的光跃迁偶极矩阵元随样品尺寸和结构的变化,本文计算了此时的载流子的量子限制能以及它们之间的库仑相互作用能,具体结果见图5.

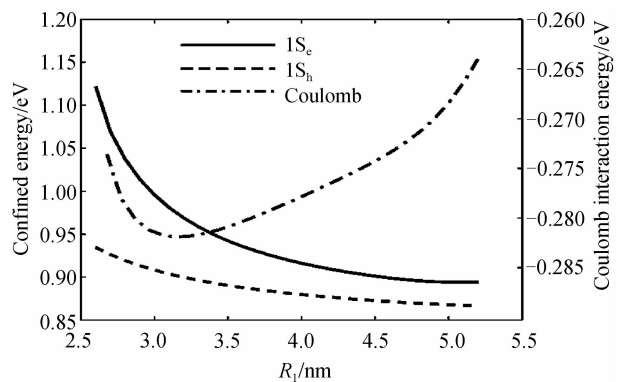


图5 样品的外半径不变 $R_2 = 5.6$ nm, 载流子的能量及相互库仑作用能随内半径 R_1 增大的变化

Fig. 5 Variation of the energies of carriers as the inner radius R_1 grew and the external radius $R_2 = 5.6$ nm kept steady

从图5可知,在样品的内半径逐渐从 2.6 nm 增大到 5.2 nm 的过程中, $1s_e$ 的能量减小了 0.226 eV (从 1.123 eV 到 0.897 eV), 而 $1s_h$ 的能量值减小了

0.068 eV(从 0.935 eV 到 0.867 eV). 同时它们之间的库仑作用能先增加后减小, 一共减小了 0.010 eV, 相对于前面两者的改变, 库仑作用能的变化对光跃迁偶极矩阵元的影响可以忽略不计. 但是库仑作用能曲线可以说明载流子密度在样品中的分布状态的变化, 图 5 中的点划线表明此时样品中的载流子密度的布居情况几乎不随核的尺寸增大而变化^[17].

在样品的内径不变外半径逐渐增大的情况下, 分析了受激光子回波信号的变化情况. 如图 6, 在内半径 $R_1=3$ nm 不变, 外半径 R_2 从 3.1 nm 增加到 5.6 nm, 受激光子回波信号的强度先是迅速增加且在 $R_2=3.7$ nm 处达到最大, 然后逐渐减小. 这说明受激光子回波信号强度能够通过外半径的变化进行有效调节, 且此时样品的最佳尺寸是 $R_2=3.7$ nm 处.

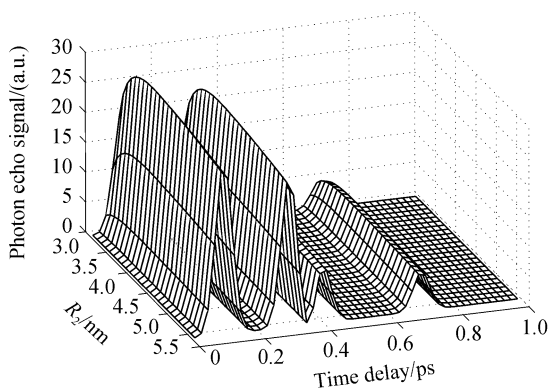


图 6 在内半径 $R_1=3$ nm 保持不变时, 受激光子回波信号随样品外半径 R_2 增大的变化

Fig. 6 The photon echo signals change with the size variation of quantum dot-quantum well's external radius R_2 when the inner radius $R_1=3$ nm kept steady

同样的方法, 此过程中 $1s_e1s_h$ 激子的光跃迁偶极矩阵元、载流子的量子限制能以及库仑作用能的大小变化得到了分析, 具体如图 7 和图 8. 在图 7

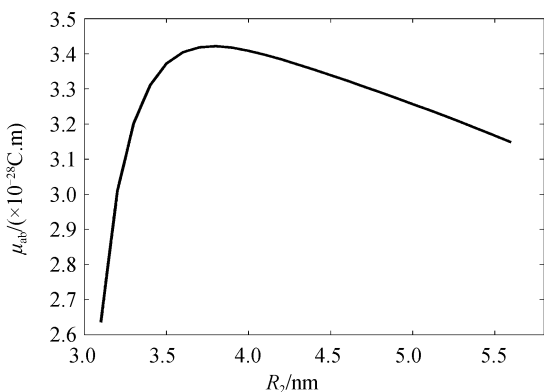


图 7 在内半径 $R_1=3$ nm 保持不变时, $1s_e1s_h$ 激子光跃迁偶极矩阵元随样品外半径 R_2 增大的变化

Fig. 7 The electric transition dipole moment for the optical transition of $1s_e1s_h$ excitons changed with the growth of external radius R_2 when the inner radius $R_1=3$ nm kept steady

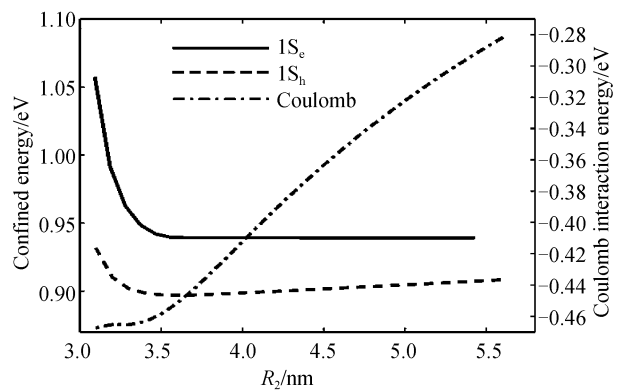


图 8 在内半径 $R_1=3$ nm 保持不变时, 载流子的能量及相互库仑作用能随外半径 R_2 增大的变化

Fig. 8 Variation of the energies of carriers as the external radius R_2 grew and the inner radius $R_1=3$ nm kept steady

中, 当样品的外半径 R_2 从 3.1 nm 增长到 5.6 nm, 光跃迁偶极矩阵元先快速从 $2.6352 \times 10^{-28} \text{ C} \cdot \text{m}$ 增大到 $3.4216 \times 10^{-28} \text{ C} \cdot \text{m}$, 然后慢慢减小到 $3.1480 \times 10^{-28} \text{ C} \cdot \text{m}$, 这直接导致光子回波信号(不管是受激光子回波信号还是其它两脉冲光子回波信号)的强度发生如图 6 所示的变化情况.

然而, 从图 8 可以看出, 在 $R_2 \in (3.1 \text{ nm}, 3.5 \text{ nm})$ 时, 载流子的限制能 ($E_{e,1s} + E_{h,1s}$) 快速地减少了 0.1620 eV ($0.1276 \text{ eV} + 0.0344 \text{ eV}$), 而库仑作用能 E_{Coulomb} 却只减小了 0.0246 eV. 由等式 (11) 知, 这时 $1s_e1s_h$ 激子的能隙的变化将由载流子的量子限制能的变化所决定. 这将使得 $1s_e1s_h$ 激子的能隙快速减小, 从而导致图 7 中光跃迁偶极矩阵元快速增大了 $7.864 \times 10^{-29} \text{ C} \cdot \text{m}$. 后来, 在 $R_2 \in (3.5 \text{ nm}, 5.6 \text{ nm})$ 时, 库仑作用能项 E_{Coulomb} 显著地减小了 0.1832 eV, 而量子限制能项 ($E_{e,1s} + E_{h,1s}$) 几乎没有变化, 这时 $1s_e1s_h$ 激子的能隙的变化将由载流子的库仑作用能的变化所决定. 进而导致图 7 中光跃迁偶极矩阵元逐渐减小.

通过比较样品的两种结构和尺寸的变化对光子回波信号的影响, 发现受激光子回波信号对样品的内半径的尺寸变化更加敏感. 图 4 中光跃迁偶极矩阵元急剧地增加了 $2.3805 \times 10^{-28} \text{ C} \cdot \text{m}$, 而在图 7 中只改变了 $7.864 \times 10^{-29} \text{ C} \cdot \text{m}$; 图 5 中载流子的量子限制能项 ($E_{e,1s} + E_{h,1s}$) 减小了 0.226 eV, 而在图 8 中载流子的限制能项只减小了 0.0666 eV. 这些说明可以通过设计核的尺寸大小来更有效地调控 $1s_e1s_h$ 激子光跃迁对应的受激光子回波信号强度.

另一方面, 在图 8 中的库仑作用能在 $R_2=3.5$ nm 点以后显著地减小, 这意味着载流子在核壳结构的样品中的密度分布出现剧烈变化, 在核中存在的有效激发载流子密度会随着壳层厚度的增加而

明显减少;由于壳层量子限制强度的减弱,使得更多的有效激发载流子会转移到壳层中去^[17]。也就是说,虽然此时由于壳层厚度继续增加,样品的抗光氧化的光化学稳定性得到了提高,但是会导致样品的量子荧光产率的下降,从而导致受激光子回波信号强度的降低。这个结论和参考文献[11]的实验报道结果是一致的,量子荧光产率会先随着前两分子层的增加而增长,但是随后会出现逐渐减小的现象。

3 结论

在光学 Bloch 方程的基础上,对核壳结构 CdSe/ZnS 量子点量子阱中的 $1s_e, 1s_h$ 激子光跃迁的受激光子回波现象进行了理论模拟。研究结果显示受激光子回波信号对样品的结构和尺寸的变化较敏感,可以通过核的尺寸控制来有效调节受激光子回波信号的能量效率。同时适当的壳层厚度对实际样品的光化学稳定性和量子化产率都有很重要的意义。这些结果说明 CdSe/ZnS 凝胶量子点量子阱在未来的量子通讯、光存储和计算领域有着巨大的应用前景。

参考文献

- [1] ZHANG C, XU J, ZHU T, *et al.* Quantum efficiency of stimulated emission in colloidal semiconductor nanocrystal quantum dots[J]. *Physical Review B*, 2009, **80**(3): 5333-5338.
- [2] SONG T, ZHANG F, SHEN X, *et al.* Efficient light harvesting in hybrid CdTe nanocrystal/bulk GaAs p-i-n photovoltaic devices[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, **95**(23): 3502-3504.
- [3] GMEZ D E, VERNON K C, MULVANEY P, *et al.* Surface plasmon mediated strong exciton-photon coupling in semiconductor nanocrystals[J]. *Nano Letters*, 2010, **10**(1): 274-278.
- [4] JAISWAL J K, MATTOUSSI H, MAURO J M, *et al.* Long-term multiple color imaging of live cells using quantum dot bioconjugates[J]. *Nature Biotechnology*, 2002, **21**(1): 47-51.
- [5] KLIMOV V I, MIKHAILOVSKY A A, McBRANCH D W, *et al.* Quantization of multiparticle auger rates in semiconductor quantum dots[J]. *Science*, 2000, **287**(5455): 1011-1013.
- [6] MIKHAILOVSKY A A, MALKO A V, HOOLINGSWORTH J A, *et al.* Multiparticle interactions and stimulated emission in chemically synthesized quantum dots[J]. *Applied Physics Letters*, 2002, **80**(13): 2380-2382.
- [7] SANGOUARD N, SIMON C, AFZELIUS M, *et al.* Impossibility of faithfully storing single photons with the three-pulse photon echo[J]. *Physical Review A*, 2010, **81**(6): 2333-2338.
- [8] ABAZARI A D, SAGLAM YUREK E, RICKEN R, *et al.* State transformation in photon-echo quantum memory[J]. *Quantum Physics*, 2009, arXiv:0910.2457v2.
- [9] GRAHAM M W, MA Y, FIEMING G R. Femtosecond photon echo spectroscopy of semiconducting single-walled carbon nanotubes[J]. *Nano Letters*, 2008, **8**(11): 3936-3941.
- [10] HINES M A, GUYOT-SINNEST P. Synthesis and characterization of strongly luminescing znS-capped cdse nanocrystals[J]. *Journal of Physical Chemistry*, 1996, **100**(2): 468-471.
- [11] XIE R, KOLB U, MEWS A, *et al.* Synthesis and characterization of highly luminescent CdSe-Core CdS/Zn_{0.5}Cd_{0.5}S/ZnS multishell nanocrystals[J]. *Journal of American Chemical Society*, 2005, **127**(20): 7480-7488.
- [12] GONG S, YAO D. Optical nutation induced by transition between levels inside and outside the well in a core-shell CdSe/ZnS quantum dot[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2006, **18**(48): 10989-10995.
- [13] WANG Lin-wang, ZUNGER A. Pseudopotential calculations of nanoscale CdSe quantum dots[J]. *Physical Review B*, 1996, **53**(15): 9579-9582.
- [14] GONG S, YAO D, JIANG H, *et al.* Parameter-dependent photo echo induced in CdS/ZnS quantum dot quantum well[J]. *Physics Letters A*, 2008, **372**(18): 3325-3332.
- [15] LAKOWICZ J R. Principles of fluorescence spectroscopy [M]. New York: Kluwer, Academic/Plenum Press, 1999.
- [16] TOPTYGIN D. Effects of the solvent refractive index and its dispersion on the radiative decay rate and extinction coefficient of a fluorescent solute [J]. *Journal of Fluorescence*, 2003, **13**(3): 201-219.
- [17] MARIN J L, RIERA R, CRUZ S A. Confinement of excitons in spherical quantum dots[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 1998, **10**(6): 1349-1358.
- [18] LIPPENS P E, LANNOO M. Calculation of the band gap for small CdS and ZnS crystallites [J]. *Physical Review B*, 1989, **39**(15): 10935-10942.
- [19] WOGGON U, GINDELE F, LANGBEIN W. Quantum kinetic exciton-LO-phonon interaction in CdSe[J]. *Physical Review B*, 2000, **61**(3): 1935-1940.

Investigation on Stimulated Photon Echo Induced by Optical Transition of $1s_e 1s_h$ Excitons in Core-shell CdSe/ZnS Quantum Dot-quantum Well

GONG Shao-hua^{1,2}, FU Jun¹, FU Yun-liang¹, SHEN Zhen-jiang¹

(1 *School of Physics and Electronics Engineering, Hainan Normal University, Haikou 571158, China*)

(2 *State Key Laboratory of Space Weather, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100000, China*)

Abstract: Excited with three femtosecond laser pulses, the stimulated photon echo phenomenon is studied, which is induced by the optical transition of $1s_e 1s_h$ excitons in a core-shell CdSe/ZnS quantum dot-quantum well. The energy eigenvalues and eigenfunctions of charge carriers were obtained by solving the stationary Schrödinger equation under the effective-mass approximation. The parameter dependence of the photon echo signals was investigated employing the optical Bloch equations. The numerical results reveal that the stimulated photon echo phenomenon can be effectively controlled by the variation of the size and structure of quantum dot-quantum well. And the corresponding mechanism was discussed in terms of the quantum size confined effect theory.

Key words: Stimulated photon echo; Core-shell quantum dot-quantum well; Optical Bloch equations