

ЛИНЕЙНО-ЦИРКУЛЯРНЫЙ ДИХРОИЗМ ПРИ ДВУХФОТОННОМ ПОГЛОЩЕНИИ СВЕТА В НАНОКРИСТАЛЛАХ CdSe

О.Э.Грешневикова, И.А.Кудрявцев, В.Ю.Некрасов,
В.Н.Трухин, И.Д.Ярошецкий

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН, Санкт-Петербург
Поступило в Редакцию 29 августа 1994 г.

Трехмерное размерное квантование в полупроводниках приводит к появлению дискретных энергетических уровней, что существенно изменяет нелинейно-оптические свойства полупроводника [1,2]. В этой связи важными представляются исследования поляризационных характеристик нелинейного поглощения в квантово-размерных структурах, так как поляризационные эффекты непосредственно связаны с кристаллической симметрией и особенностями зонной структуры исследуемых объектов.

В настоящей работе сообщается об обнаружении эффекта линейно-циркулярного дихроизма при двухфотонном поглощении света в нанокристаллах CdSe. Исследуемые структуры представляли собой диэлектрическую матрицу с вкрапленными в нее нанокристаллами полупроводника CdSe. Технология изготовления структур такова, что полупроводниковые нанокристаллы с большой точностью можно считать квазисферическими и хаотически расположенными в стеклянной матрице. Нанокристаллы CdSe имеют гексагональную структуру. В эксперименте были исследованы образцы со средним радиусом нанокристаллов 38 и 26 Å, в которых наличие квантово-размерного эффекта было доказано прямым измерением сдвига края поглощения [3].

Как известно [4], линейно-циркулярный дихроизм обусловлен различием коэффициентов поглощения света с линейной и циркулярной поляризацией. Для кристаллов со структурой вюрцита в общем случае вероятность двухфотонного поглощения определяется следующим выражением:

$$W^{(2)}(\mathbf{e}) = a_1 + a_2|\mathbf{e}\mathbf{e}|^2 + a_3|e_z|^4 + a_4(|e_x|^2 + |e_y|^2)^2 + a_5|(\mathbf{e}^* \times \mathbf{e})_z|^2. \quad (1)$$

Ось z направлена по оси шестого порядка C_6 . Величины коэффициентов a_i пропорциональны квадрату интенсивности света, зависят от частоты света ω и параметров кристаллов и не зависят от вектора поляризации \mathbf{e} . В выражении (1) второй и пятый члены зависят от поляризации света. Третий и четвертый члены зависят также от ориентации вектора поляризации \mathbf{e} относительно кристаллографических осей, т.е. определяют анизотропию вероятности двухфотонного поглощения. Для линейно поляризованного света, когда $\mathbf{e}\mathbf{e} = 1$ и $\mathbf{e}^*\mathbf{e} = 0$, согласно (1), вероятность $W_l^{(2)}(\mathbf{e})$ приобретает вид

$$W_l^{(2)}(\mathbf{e}) = a_1 + a_2 + a_3|e_z|^4 + a_4(|e_x|^2 + |e_y|^2)^2. \quad (2)$$

Для циркулярно поляризованного света, когда $e_e = 0$ и $e^*e = 1$, вероятность $W_c^{(2)}(e)$ будет равна

$$W_c^{(2)}(e) = a_1 + a_3|e_z|^4 + a_4(|e_x|^2 + |e_y|^2)^2 + a_5. \quad (3)$$

В случае хаотически ориентированных нанокристаллов вероятность двухфотонного поглощения можно вычислить, суммируя (2) и (3) по всем направлениям вектора поляризации относительно оси кристалла. В итоге получим

$$W_l^{(2)} = a_1 + a_2 + \frac{1}{5}a_3 + \frac{8}{15}a_4,$$

$$W_c^{(2)} = a_1 + \frac{2}{15}a_3 + \frac{7}{15}a_4 + a_5. \quad (4)$$

Следовательно, величина линейно-циркулярного дихроизма определяется отношением

$$\alpha = \frac{W_l^{(2)}}{W_c^{(2)}} = \frac{a_1 + a_2 + (1/5)a_3 + (8/15)a_4}{a_1 + a_5 + (2/15)a_3 + (7/15)a_4}. \quad (5)$$

Как видно из (5), существует значительная вероятность, что величина α отлична от единицы, что позволяет надеяться на наличие линейно-циркулярного дихроизма. Значения коэффициентов a_i могут быть получены лишь при расчете вероятности поглощения света с учетом реальной зонной структуры нанокристаллов.

Для определения поляризационных характеристик многофотонного поглощения света в нанокристаллах CdSe исследовалась фотолюминесценция нанокристаллов. В качестве источника света служил лазер на кристалле алюмоиттриевого граната, генерирующий световые импульсы с длиной волны $1.06 \mu\text{m}$ и длительностью $\sim 12 \text{ ns}$. Для сравнения исследовалась также фотолюминесценция при однофотонном возбуждении второй гармоникой лазера ($\lambda = 0.53 \mu\text{m}$), полученной путем нелинейного преобразования основного излучения лазера в кристалле йодата лития. Образцы охлаждались до температуры жидкого азота. Регистрация фотолюминесценции осуществлялась с помощью монохроматора МДР-23 и фотоэлектронного умножителя. Сигнал с ФЭУ подавался на стробоскопический преобразователь напряжения В9-5, который был связан с ЭВМ. Временное разрешение системы регистрации составляло 15 ns .

На рис. 1 представлены спектры фотолюминесценции двух образцов ($a = 38$ и 26 \AA), полученные при возбуждении светом с $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$, при этом временная задержка была установлена по максимуму сигнала. Здесь же приведены спектры поглощения из [3]. В спектрах фотолюминесценции наблюдаются полосы, максимумы которых расположены на 2.01 и 2.17 eV для образцов со средним радиусом $a = 38$ и 26 \AA соответственно. Отметим, что для образца с $a = 38 \text{ \AA}$ наблюдается небольшой пик в низкоэнергетической части основной полосы люминесценции. Первые максимумы в спектрах поглощения наблюдаются при энергии света 2.06 и 2.25 eV соответственно для образцов с $a = 38$ и 26 \AA и, как отмечалось в работе [3], обусловлены переходами $1S_{3/2} - 1S_e$

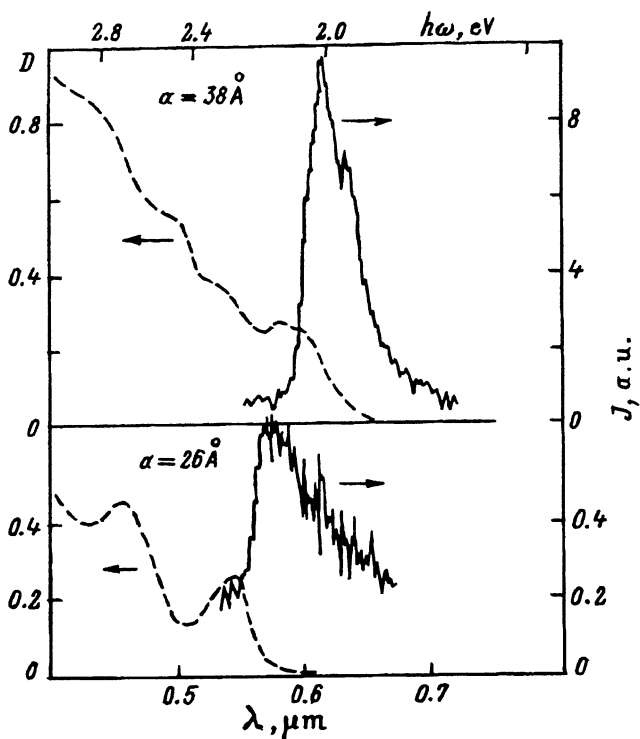


Рис. 1. Спектры поглощения (штриховая линия) и спектры люминесценции (сплошная линия) при возбуждении светом с $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ для образцов со средним радиусом 38 и 26 \AA , $I = 10^8 \text{ W/cm}^2$.

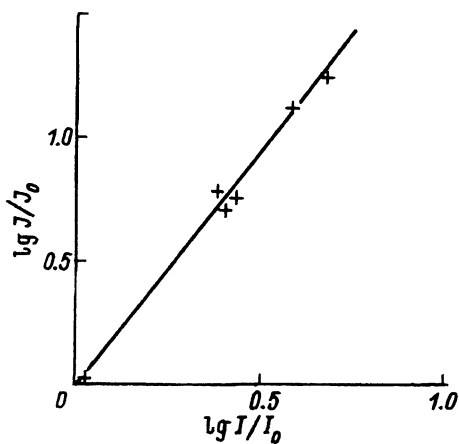


Рис. 2. Зависимость интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждения.

(между первыми уровнями дырок и электронов). Отметим, что амплитуда люминесценции для образца с $a = 38 \text{ \AA}$ на порядок больше, чем для образца с $a = 26 \text{ \AA}$. При однофотонном же возбуждении нанокристаллов CdSe светом с $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$ величины фотолюминесценции для двух образцов имеют величину одного порядка. В дальнейшем при исследовании поляризационных зависимостей был использован образец с $a = 38 \text{ \AA}$.

На рис. 2 представлена зависимость интенсивности фотолюминесценции от интенсивности возбуждающего линейно поляризованного света с $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$. Видно, что имеет место зависимость вида $J \sim I^2$, которая характерна для двухфотонного поглощения света (J — интенсивность люминесценции, I — интенсивность возбуждающего света). При возбуждении нанокристаллов CdSe ($a = 38 \text{ \AA}$) циркулярно поляризованным светом наблюдается аналогичная зависимость. Двухфотонные переходы в данных образцах соответствуют переходам $1P_{1/2}^i - 1P_e$ в соответствии с расчетами работы [3]. Используя полученную зависимость, можно с помощью простого способа, не требующего подробного рассмотрения механизма рекомбинации, определить поляризационную зависимость коэффициента двухфотонного поглощения из фотолюминесценции. Действительно, интенсивность фотолюминесценции J является функцией скорости генерации электронов и дырок, которая в свою очередь определяется вероятностью многофотонного поглощения света $W^{(2)} = \sigma^{(2)} I^2$, где $\sigma^{(2)}$ — сечение поглощения.

Тот факт, что на опыте наблюдается зависимость $J \sim I^2$, дает основание записать величину линейно-циркулярного дихроизма в виде

$$\alpha = J_l(I)/J_c(I).$$

Величина α , полученная в эксперименте для нанокристаллов CdSe с $a = 38 \text{ \AA}$, составляет 1.15, что свидетельствует об обнаружении линейно-циркулярного дихроизма в нанокристаллах. Заметим, что полученная величина α слабо зависит от интенсивности возбуждающего света.

Таким образом, было экспериментально определено, что свет с линейной поляризацией поглощается в нанокристаллах CdSe сильнее, чем свет с циркулярной поляризацией.

В заключение авторы выражают признательность Е.Л.Ивченко за полезное обсуждение работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (контракт № 94-02-05903-а).

Список литературы

- [1] Schmitt-Rink S., Miller D.A.B., Chemla D.S. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. P. 8113-8125.
- [2] Hanamura E. // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. P. 1273-1279.
- [3] Ekimov A.I., Hache F., Schanne-Klein M.C., Kicard D., Flytzanis C., Kudryavtsev I.A., Yazera T.V., Rodina A.V., Efros A.L. // J. Opt. Soc. Amer. B. 193. V. 10. N 1. P. 100-107.
- [4] Берегулин Е.В., Дворников Д.П., Ивченко Е.Л., Ярощевский И.Д. // ФТП. 1975. Т. 9. С. 876-885.