

Оптика наносистем



Тимошенко Виктор Юрьевич

*Московский Государственный Университет
им. М. В. Ломоносова, Физический факультет
Научно-Образовательный Центр по нанотехнологиям*

Содержание курса

Лекция 1. Основные понятия оптики конденсированных фаз вещества.

Лекция 2. Взаимодействие света с металлами и диэлектриками.

Лекция 3. Поглощение света в полупроводниках.

Лекция 4. Экситонное и примесное поглощение света.

Лекция 5. Эмиссия излучения из твердых тел.

Лекция 6. Оптические явления в неоднородных твердотельных системах.

Лекция 7. Оптические свойства твердотельных нанокомпозитов.

Лекция 8. Фотонные кристаллы и микрорезонаторы.

Лекция 9. Рассеяние света в твердых телах.

Лекции 10,11. Влияние размеров тел на их оптические свойства.

Лекции 12-14. Экситоны в полупроводниковых наноструктурах.

Лекция 15. Оптические свойства и применения полупроводниковых наноструктур.

Лекция 16. Элементы спиновой оптики и спинтроники.

Лекция 17. Нелинейные оптические явления в твердотельных системах.

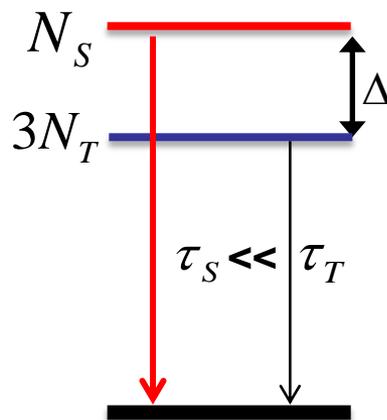
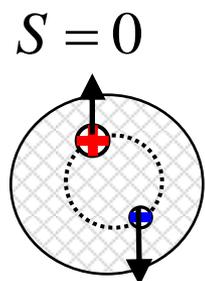
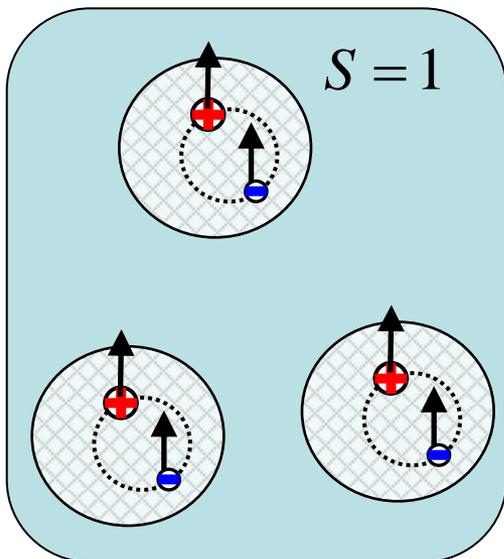
Лекция 18. Элементы нелинейной оптики наноструктур и нанокомпозитов.

Лекции 13-14:

Экситоны в полупроводниковых нанокристаллах (продолжение).

«Темные» и «светлые» экситоны в квантовых ямах и точках. Феноменологические модели возбуждения и рекомбинации неравновесных носителей заряда в полупроводниковых наноструктурах. Учет связи между подсистемами экситонов и неравновесных фотовозбужденных. Роль оже-рекомбинации и ударной ионизации в динамике рекомбинации экситонов в нанокристаллах. Эффект мультиплицирования экситонов и его возможные применения. Время жизни экситонов в ансамблях нанокристаллов. Фотосенсибилизация люминесценции редкоземельных ионов в структурах с нанокристаллами кремния.

Триpletные и синглетные экситоны в ансамблях нанокристаллов



$$N = 3N_T + N_S$$

$$N_S = N_T \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right)$$

$$N = N_T \left(3 + \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right) \right)$$

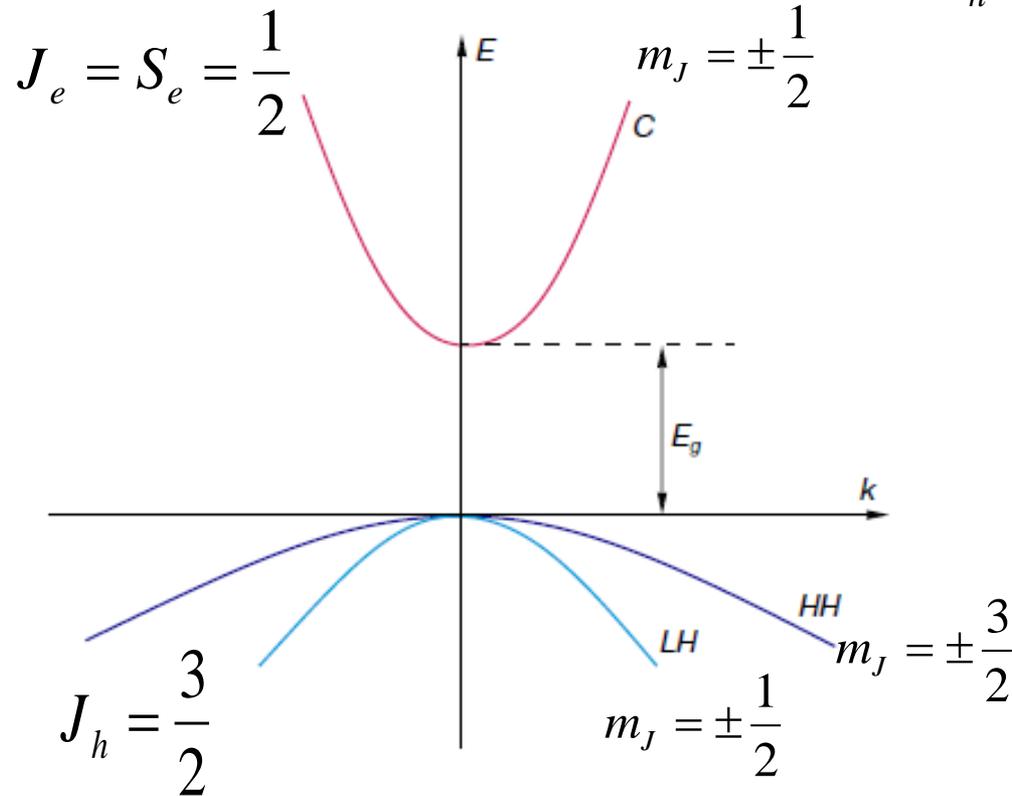
$$\frac{dN}{dt} = -3N_T \tau_T^{-1} - N_S \tau_S^{-1} = -N \left(3 + \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right) \right)^{-1} \left(3\tau_T^{-1} - \tau_S^{-1} \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right) \right)$$

Полное время жизни экситона (собственное время жизни люминесценции) зависит от синглетных и триплетных времен, энергии обменного взаимодействия и температуры.

$$\tau_{\phi L} = \frac{3 + \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right)}{3\tau_T^{-1} + \tau_S^{-1} \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right)}$$

Излучательная аннигиляция триплетных экситонов запрещена правилами отбора в электродипольном приближении, поэтому они имеют длинные времена жизни и называются «темными». Синглетные экситоны иногда называются «светлыми».

Экситоны в гетероструктурах (учет спин-орбитального взаимодействия)



$$\vec{J}_h = \vec{L}_h + \vec{S}_h$$

$L_h = 1$ (l -состояние)

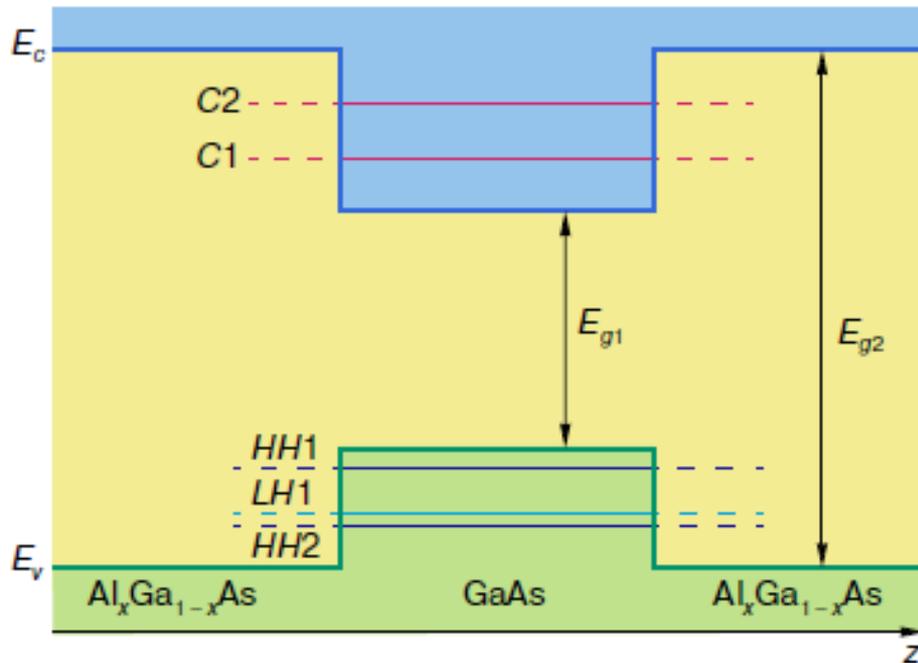
$\vec{J}_e = \vec{S}_e$
 r

Экситон может образовываться из электрона и тяжелой (НН) или легкой (ЛН) дырки. Полный момент экситона, образованного из тяжелой дырки $J_{\text{exc}}=1$ или 2.

В случае $J_{\text{exc}}=2$ излучательная аннигиляция экситона запрещена правилами отбора, и такой экситон является «темным», т.е. обладает большими временами жизни по сравнению со «светлым» экситоном ($J_{\text{exc}}=1$).

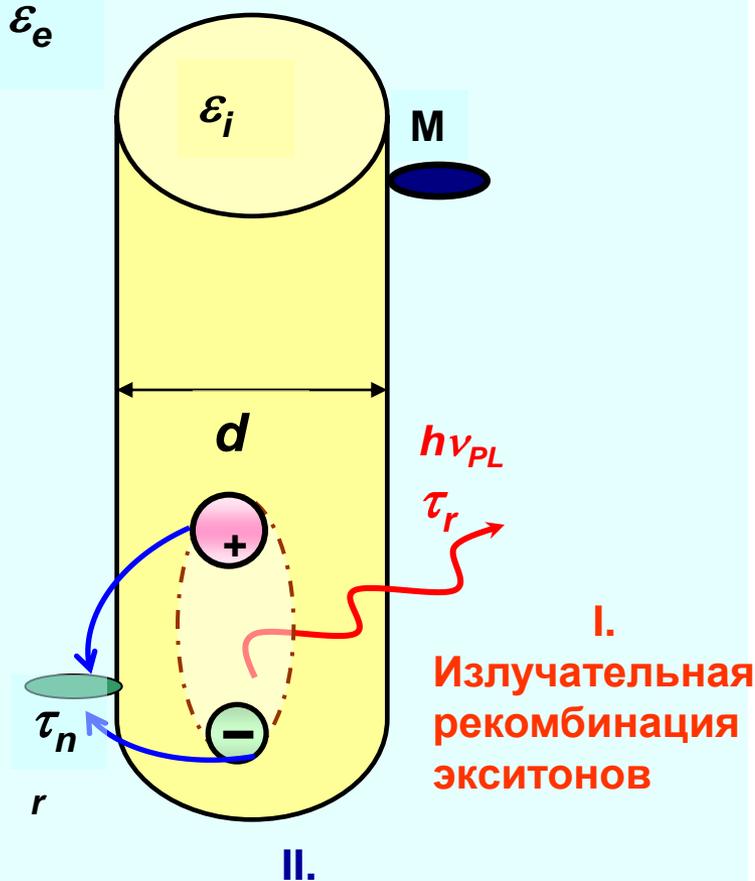
Экситоны в полупроводниковых гетероструктурных квантовых ямах и точках

2D-0D



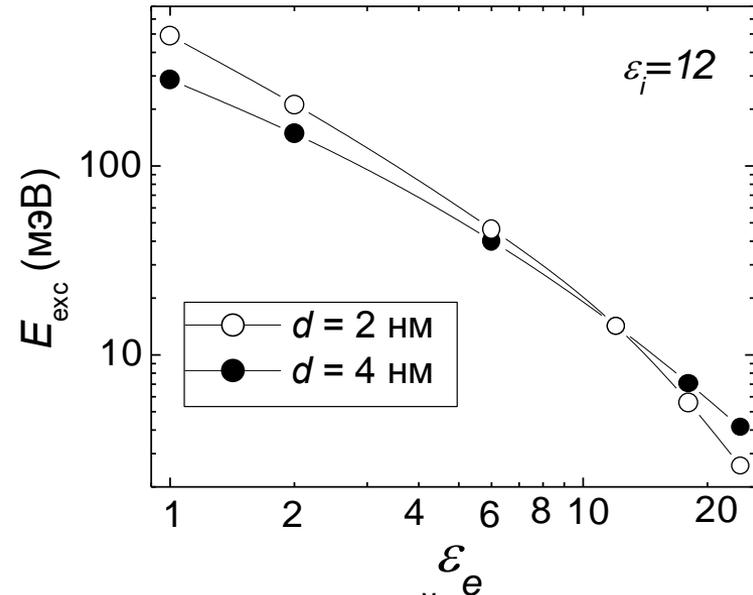
Для экситона в квантовой яме, нити или точке снимается вырождение уровней энергии легких и тяжелых дырок и возрастает роль спиновых состояний экситонов.

Экситон в кремниевых квантовых нитях: влияние размеров, поверхности и диэлектрической проницаемости



Молекулы на поверхности нанокристаллов (M) влияют на их зарядовое состояние. Параметры экситонов N_{ex} , E_{ex} , $h\nu_{PL}$ и τ_r зависят от d , N_M , ε_i , ε_e

Расчетные значения энергии связи экситонов E_{ex} в кремниевых квантовых нитях, окруженных диэлектрической средой с ε_e



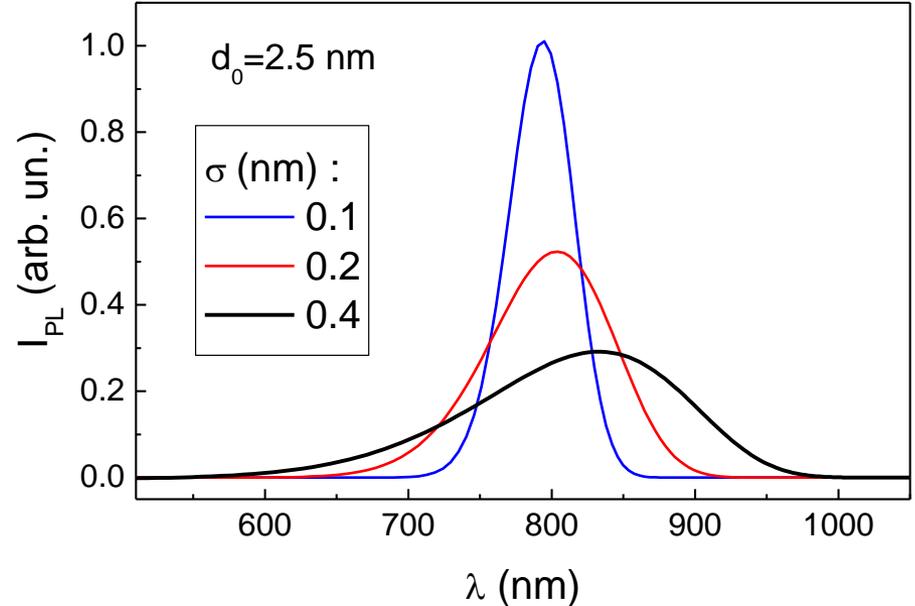
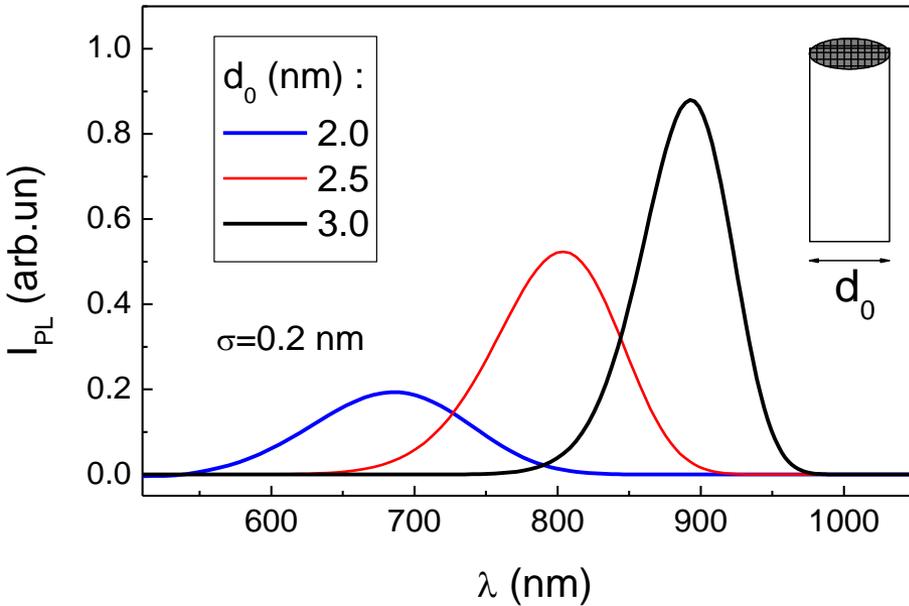
III. Влияние диэлектрической проницаемости среды на энергию связи и концентрацию экситонов

$$\tau_{nr} = \tau_{nr}^0 \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right)$$

Влияние распределения по размерам кремниевых нанокристаллов на ФЛ пористого кремния (расчет)

$$\rho(d) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{d-d_0}{2\sigma^2}\right)$$

$$\rho(h\nu_{PL}) \cdot \partial(h\nu_{PL}) = \rho(d) \cdot \partial d$$



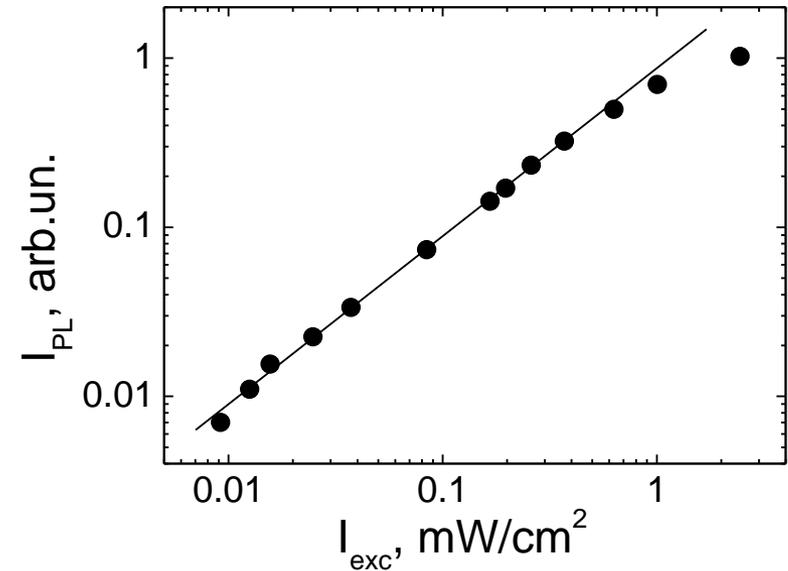
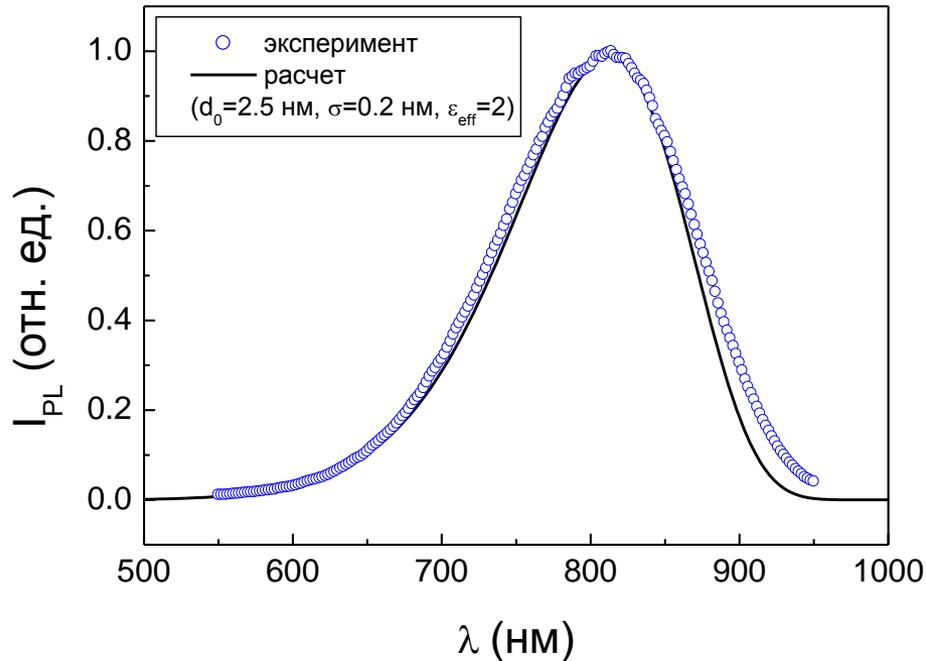
$$h\nu_{PL}(d) = E_{g0} + \frac{A}{d^2} - E_{exc}(d, \varepsilon_{eff})$$

$$\tau_r(d) \propto d^5$$

$$I_{PL} = \frac{N_0}{\tau_r} = \frac{g}{1 + \left[\tau_r \exp\left(-\frac{E_{exc}}{kT}\right) + C^{-1} \right] \tau_{nr}^{-1}}$$

- На положение максимума фотолюминесценции влияет как средний размер, так и разброс (дисперсия) размеров нанокристаллов.
- Интенсивность фотолюминесценции зависит от температуры сложным образом.

Экспериментальное исследование фотолюминесценции пористого кремния



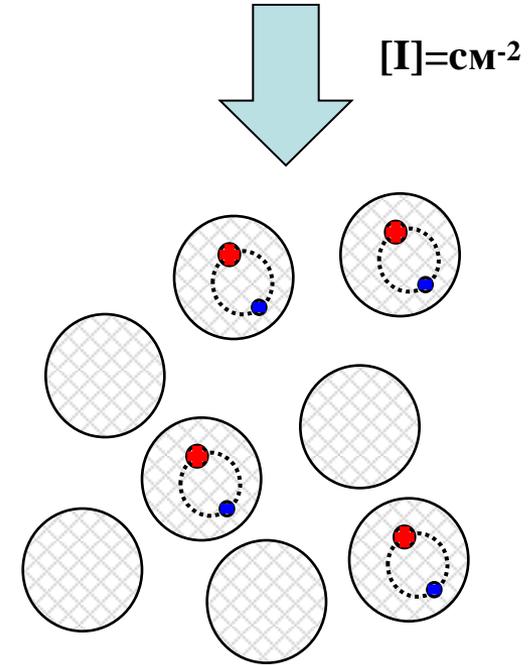
- Экспериментальные и расчетные спектры ФЛ хорошо согласуются.
- Наблюдается линейная зависимость интенсивности ФЛ с ростом интенсивности возбуждения, что находится в согласии с моделью.
- Отклонение от линейной зависимости при больших интенсивностях возбуждения указывают на ограниченность числа излучателей (квантовых точек).

Динамика экситонов в ансамблях квантовых точек

Полное число нанокристаллов: $N = N_0 + N_1 + N_2 + \dots = const$

Пусть нанокристаллы однократно возбуждены: $N = N_0 + N_1$

$$\frac{dN_1}{dt} = g - \frac{N_1}{\tau} = I \cdot \sigma (N - N_1) - \frac{N_1}{\tau}$$



Сечение поглощения света нанокристаллом: $[\sigma]=cm^2$

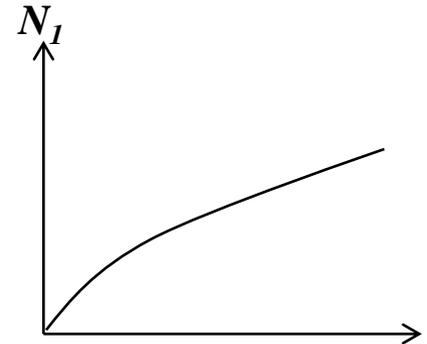
При большой энергии квантов света $h\nu \gg E_g$ кратность возбуждения возрастает (**эффект мультиплицирования экситонов**), что приводит к $\gamma \geq 2$, а темп генерации равен:

$$g = I \cdot \sigma \left(N - \frac{N_1}{\gamma} \right)$$

Пусть $\gamma = 1$, тогда: $\frac{dN_1}{dt} = g - \frac{N_1}{\tau} = I \cdot \sigma N - I \sigma N_1 - \frac{N_1}{\tau}$

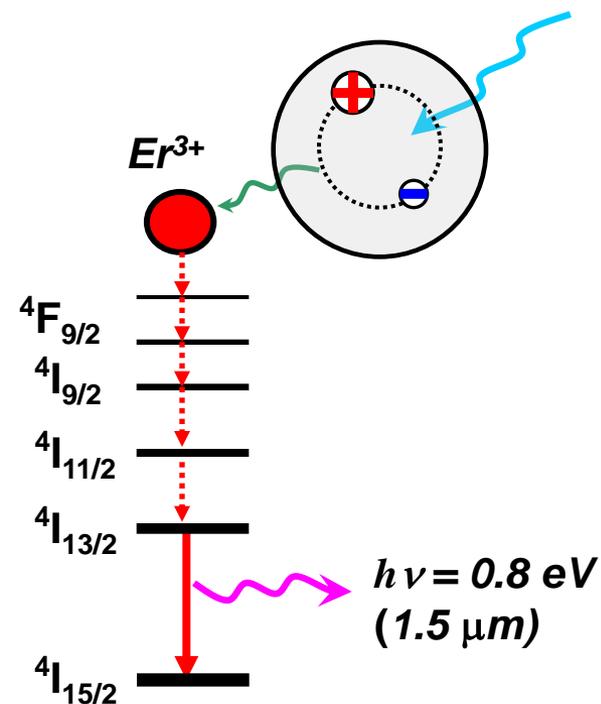
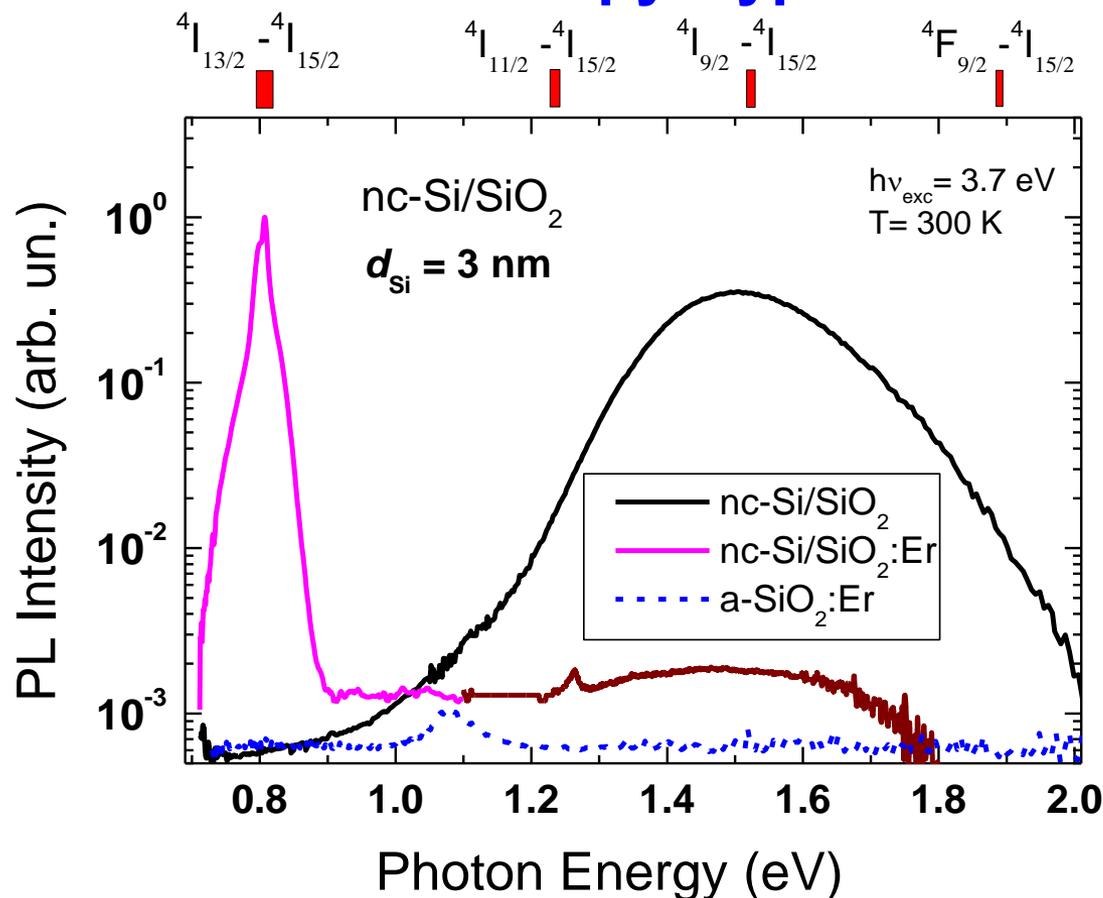
$$\frac{dN_1}{dt} = 0$$

$$N_1^{st} = \frac{I \sigma N}{I \sigma + \tau^{-1}}$$



Имеет место насыщающаяся зависимости интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждения

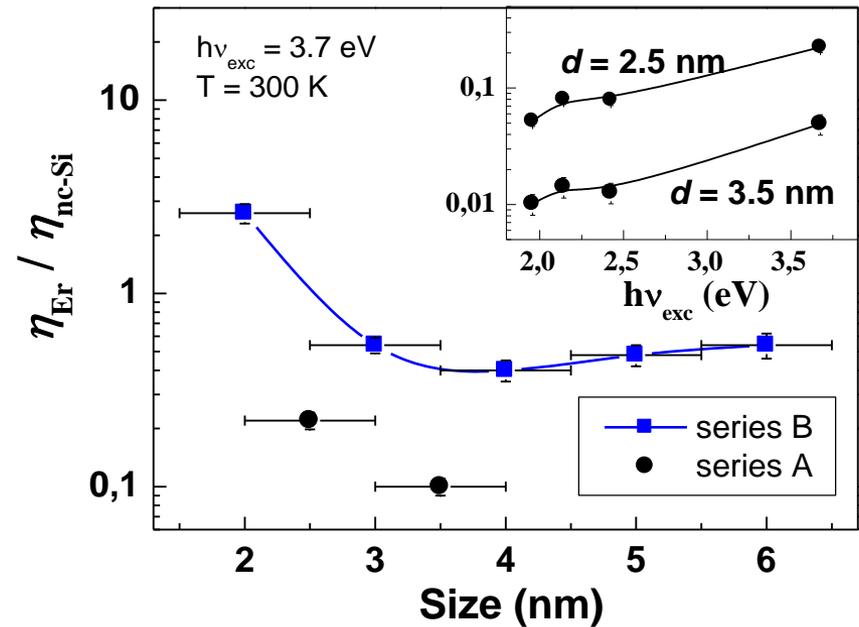
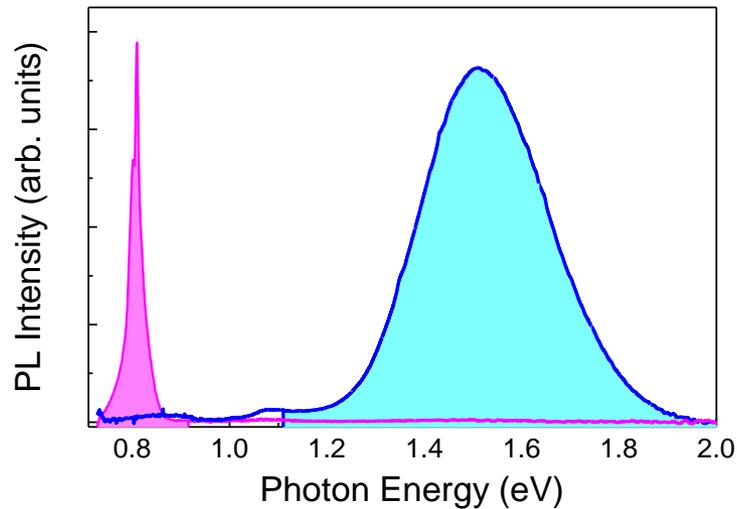
Фотосенсибилизация люминесценции ионов Er в структурах nc-Si/SiO₂: Er



P.K.Kashkarov et al., JETP 64,1123 (2003)

- Экситоны в нанокристаллах кремния выступают как доноры энергии (фотосенсибилизаторы) для расположенных в окружающем оксиде кремния ионов Er, оптические переходы в которых приводят к свечению на длине волны 1.5 мкм.
- Механизм передачи энергии от экситонов к ионам может быть описан теорией Ферстера-Декстера (индуктивно-резонансный перенос энергии).

Экспериментальное исследование эффективности фотосенсибилизации люминесценции ионов Er



$$\eta_{Er} = \int_{0.7\text{eV}}^{0.9\text{eV}} \frac{I_{PL}(E)}{E} dE$$

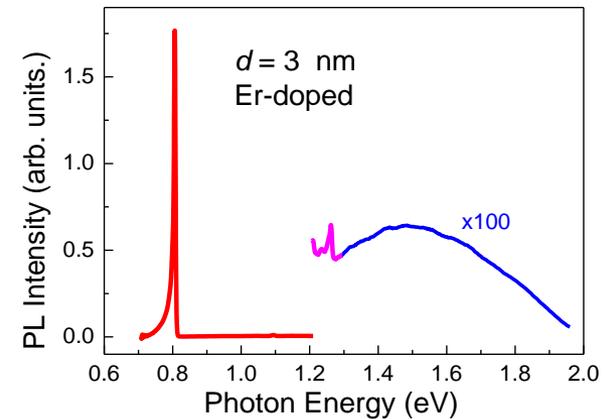
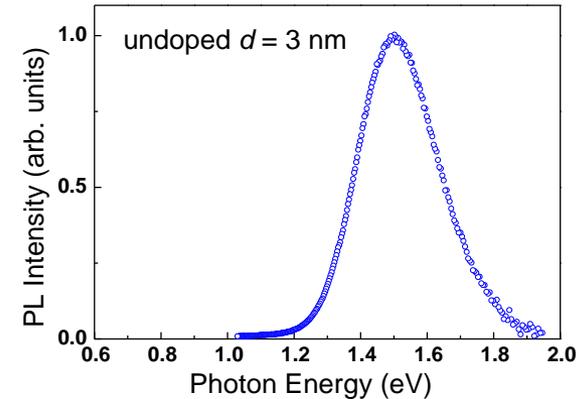
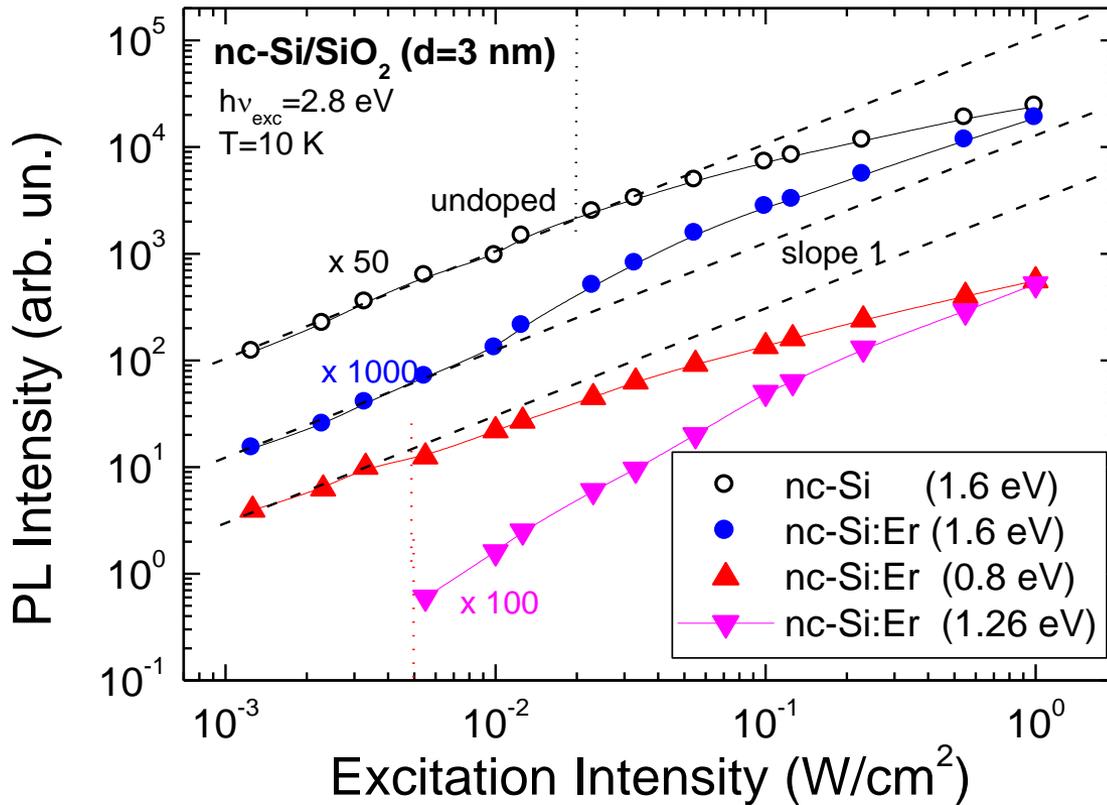
$$\eta_{nc-Si} = \int_{1.1\text{V}}^{2.0\text{eV}} \frac{I_{PL}(E)}{E} dE$$

$$N_{nc-Si} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

$$N_{Er} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ (A) or } 5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ (B)}$$

- Эффективность передачи энергии от нанокристаллов возрастает с уменьшением их размера.
- Один нанокристалл может возбуждать несколько расположенных рядом ионов Er^{+3} .

Зависимости интенсивности фотолюминесценции от интенсивности оптического возбуждения



V.Yu.Timoshenko et al., *Phys. Sol. St.* (2005)

- При высоких уровнях оптического возбуждения интенсивность экситонной фотолюминесценции ограничивается безызлучательной оже-рекомбинацией.
- Передача энергии от экситонов к нанокристаллам Er³⁺ ослабляет потери, вызванные безызлучательной рекомбинацией.
- Интенсивность эрбиевой фотолюминесценции с энергией фотонов 0.8 эВ имеет тенденцию к насыщению при оптическом возбуждении с $I_{exc} > 10$ мВт/см², что указывает на достижение инверсии населенностей уровней в подсистеме ионов Er³⁺.

Кинетические уравнения для системы Er^{3+} / nc-Si

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = \sigma \cdot I \cdot n_0 - \frac{n_1}{\tau} - c \cdot N_0 \cdot n_1 \\ \frac{dN_1}{dt} = c \cdot n_1 \cdot N_0 - \frac{N_1}{\tau_0} \end{cases}$$

$$\begin{cases} N_{Er} = N_0 + N_1 = const \\ N_{nc-Si} = n_0 + n_1 = const \\ \tau = 0.01 \div 0.1 \text{ ms} \\ \tau_0 = 1 \div 10 \text{ ms} \end{cases}$$



$$g \equiv c \cdot n_1$$

$$t \gg \tau \Rightarrow g \approx const$$

$$\frac{dN_1}{dt} = gN_{Er} - N_1(\tau_0^{-1} + g)$$

$$\tau_1^{-1} = g + \tau_0^{-1}$$

$$\frac{d}{dt} = 0: N_1 = \frac{gN_{Er}}{g + \tau_0^{-1}} = gN_{Er}\tau_1$$

$$\frac{N_1}{N_{Er}} = g\tau_1 = 1 - \frac{\tau_1}{\tau_0}$$

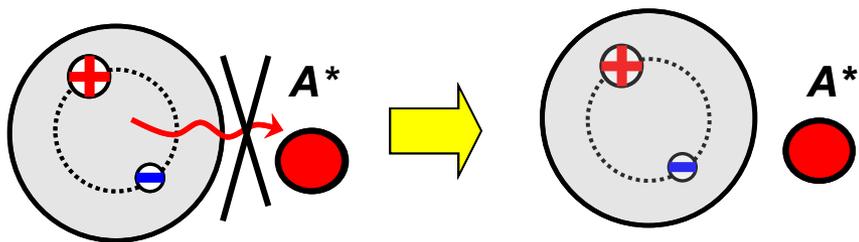
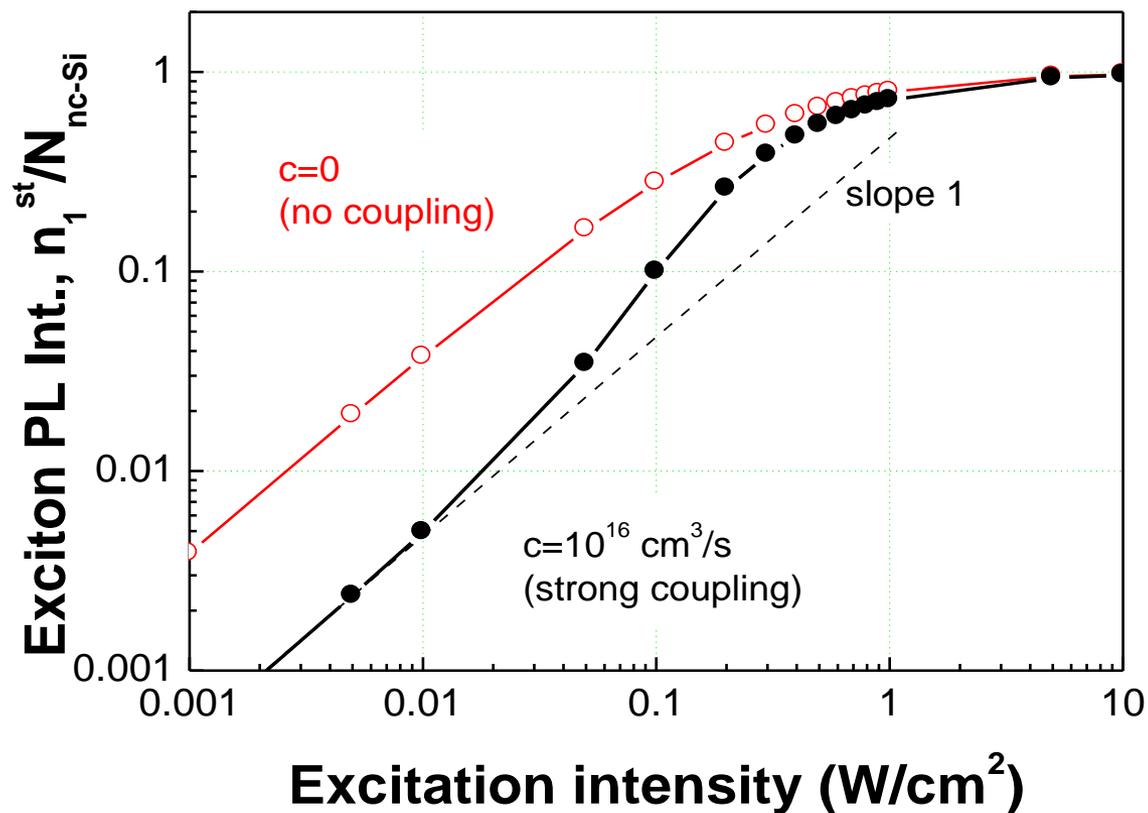


$$\text{Inversion: } N_1/N_{Er} > 1/2$$



- Времена жизни фотолюминесценции ионов эрбия Er^{3+} зависят от уровня их возбуждения, что можно использовать для количественного анализа населенности уровней.

Моделирование динамики населенности в связанной системе nc-Si/акцептор энергии



Контрольные вопросы к Лекциям 13-14:

- Чем отличаются «темные» и «светлые» экситоны ?
- Каковы особенности динамики рекомбинации экситонов в ансамблях нанокристаллов?
- Что такое эффект мультиплицирования экситонов и каковы его возможные применения?
- Как реализуется и как может быть использована фотосенсибилизация люминесценции редкоземельных ионов в структурах с нанокристаллами кремния?