

반도체량자점-금속나노립자혼합계의 선형감수률에 대한 연구

최충일, 김남철

반도체량자점과 금속나노립자로 이루어진 혼합계에서 나노립자들의 위치는 혼합계의 광학적성질에 커다란 영향을 준다.[1-5]

우리는 구모양의 금속나노립자와 작은 반도체량자점으로 구성된 혼합계의 선형광학적 감수률을 계산하고 해석하였다.

1. 이론적연구

유전상수가 ϵ_{env} 인 매질속에서 반경이 a 인 구모양의 금속나노립자(MNP)와 반경이 b 인 반도체량자점(SQD)이 결합된 혼합계를 생각하자.(그림 1)

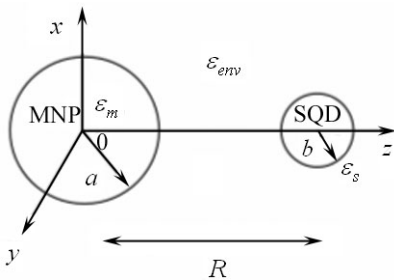


그림 1. 반도체량자점과 금속나노립자가 결합된 혼합계
 R - 두 립자의 중심사이 거리

반도체량자점의 반경이 금속나노립자의 반경보다 훨씬 작으며 또한 $R > a$ 라고 하자.

이 계는 z 축방향으로 작용하는 전기마당 $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ 와 호상작용하는데 이 마당은 반도체량자점의 2개 에너지준위사이 이행 $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 를 일으키며 이때 엑시톤에너지는 $\hbar\omega_0$ 이다. 또한 반도체량자점은 유전상수가 ϵ_s , 금속나노립자는 유전함수가 $\epsilon_m(\omega)$ 인 고전적인 립자로 취급한다.

한편 이 전기마당은 금속나노립자의 표면에서 플라스몬을 여기시키기도 한다. 이러한 표면플라스몬들은 엑시톤들에 강하게 영향을 주며 엑시톤과 플라스몬사이에 쌍극자-쌍극자호상작용을 일으킨다.[6]

따라서 연구하는 혼합계의 하밀토니안은 다음과 같이 구성할수 있다.

$$H = \hbar\omega_0|2\rangle\langle 2| - \mu E_{SQD}(|1\rangle\langle 2| + |2\rangle\langle 1|) \quad (1)$$

여기서 μ 는 엑시톤이동에 대응하는 반도체량자점의 쌍극자모멘트이다.

한편 E_{SQD} 는 반도체량자점안에서의 전기마당으로서 다음과 같이 표시된다.[7]

$$E_{SQD} = \frac{\hbar}{\mu} [(\Omega + G\sigma)e^{-i\omega t} + (\Omega^* + G^*\sigma^*)e^{i\omega t}] \quad (2)$$

여기서 $\sigma = \rho_{21}e^{i\omega t}$, $\sigma^* = \rho_{12}e^{-i\omega t}$, ρ_{ij} 는 밀도행렬원소, 파라메터 Ω 와 G 는 다음과 같이 표시된다.[7]

$$\begin{aligned}
 \Omega &= \frac{E_0 \mu}{2\hbar \varepsilon_{\text{effs}}} (1 + s_\alpha \gamma_1 a^3 / R^3) \\
 G &= \sum_{n=1}^N \frac{1}{4\pi \varepsilon_{\text{env}}} \frac{(n+1)^2 \gamma_n a^{2n+1} \mu^2}{\hbar \varepsilon_{\text{effs}}^2 R^{2n+4}} \\
 \gamma_n &= (\varepsilon_m(\omega) - \varepsilon_{\text{env}}) / (\varepsilon_m(\omega) + (n+1)\varepsilon_{\text{env}} / n) \\
 \varepsilon_{\text{effs}} &= (2\varepsilon_{\text{env}} + \varepsilon_s) / 3\varepsilon_{\text{env}}
 \end{aligned} \tag{3}$$

여기서 ε_0 은 진공의 유전률, s_α 는 기하학적인자로서 작용하는 마당이 계의 립자사이축(z 축)에 평행일 때 $s_\alpha = 2$ 이다.

식 (3)에서 보는바와 같이 파라메터 Ω 는 바깥전기마당과 이 전기마당에 의하여 금속 나노립자에 유도된 전기마당에도 관계된다. 또한 파라메터 G 는 반도체량자점의 자체호상 작용을 나타낸다. 즉 바깥전기마당은 먼저 반도체량자점을 편극시키며 계속하여 금속나노립자를 편극시키고 다음 금속나노립자는 반도체량자점과 호상작용하는 마당(2중효과)을 발생시킨다.

우리는 광학적효과를 보다 정밀하게 연구하기 위하여 다중효과를 리용하였다.[7] 먼저 회전파근사를 리용하여 식 (1)을 풀면 다음과 같은 방정식체를 얻는다.

$$\dot{\sigma}(t) = -\frac{1}{T_2} \sigma(t) + i\Omega \Delta(t) + iG_I \sigma(t) \sigma^*(t) + i\delta \sigma(t) \tag{4}$$

$$\dot{\Delta}(t) = 2i\Omega^* \sigma(t) - 2i\Omega \sigma^*(t) + 4G_I \sigma(t) \sigma^*(t) - \frac{\Delta(t) - 1}{T_1} \tag{5}$$

여기서 $\Delta(t) = \rho_{11}(t) - \rho_{22}(t)$ 는 두 에네르기준위사이의 확률차, $\delta = \omega - \omega_0$ 은 공진주파수로부터 바깥전기마당의 탈조량이며 G_I 는 파라메터 G 의 허수부, T_1 은 확률완화시간, T_2 는 금속나노립자가 존재할 때의 반도체량자점의 위상과정완화시간이다.

식 (4)로부터 정상상태에서 다음식을 얻을수 있다.

$$\sigma = -\frac{\Omega \Delta}{\delta + G\Delta + i/T_2} \tag{6}$$

식 (6)에 식 (5)를 대입하고 정상상태에서 방정식을 풀어 $\Delta(t)$ 의 1차근사값을 계산하면 $\Delta(t) \approx 1$ 이다.

한편 $\chi_{\text{SQD}} = 2\Gamma \mu \sigma / (\varepsilon_0 E_0 V)$ 이므로 반도체량자점의 선형감수률에 대한 다음식을 얻을수 있다.

$$\chi_{\text{SQD}} = -\frac{\Gamma}{V} \frac{\mu^2 \kappa T_2}{\hbar \varepsilon_0} \frac{T_2(\delta + G_R) - i(1 + T_2 G_I)}{[(1 + T_2 G_I)^2 + T_2^2(\delta + G_R)^2]} \tag{7}$$

여기서 Γ 는 광학적속박인자, V 는 반도체량자점의 체적[7], $\kappa = (1 + s_\alpha \gamma_1 a^3 / R^3) / \varepsilon_{\text{effs}}$ 이다.

다음 금속나노립자의 선형감수률에 대한 식을 계산하자.

금속나노립자의 편극은 다음과 같이 쓸수 있다.[8]

$$P_{\text{MNP}} = P_{\text{MNP}}^{(+)} e^{-i\omega t} + c.c \tag{8}$$

$$P_{\text{MNP}}^{(+)} = 3\varepsilon_{\text{env}} \gamma_1 \left[\frac{E_0}{2} + \frac{1}{4\pi \varepsilon_{\text{env}}} \frac{s_\alpha \mu \sigma}{\varepsilon_{\text{effs}} R^3} \right] \tag{9}$$

이제 $\chi_{MNP} = 2P_{MNP}^{(+)} / (\epsilon_0 E_0)$ 임을 고려하면 금속나노립자의 선형감수율에 대한 다음식을 얻을 수 있다.

$$\chi_{MNP} = 3\gamma_1 \left[\frac{\epsilon_{env}}{\epsilon_0} - \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_{effs}} \frac{s_a \mu^2 \kappa T_2}{\hbar R^3} \times \frac{T_2(\delta + G_R) - i(1 + T_2 G_I)}{[(1 + T_2 G_I)^2 + T_2^2(\delta + G_R)^2]} \right] \quad (10)$$

식 (10)에서 보는바와 같이 반도체량자점의 엑시톤과 금속나노립자표면플라즈몬사이의 호상작용에서 에너기가 금속나노립자에서 반도체량자점으로 이동하므로 금속나노립자는 반전이 없는 증폭도 가능하게 한다.

2. 결과 및 해석

R 의 값차가 크지 않은 경우 먼저 $\Gamma/V = 5 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, $a = 7.5 \text{ nm}$, $T_2 = 0.3 \text{ nm}$, $\epsilon_{env} = \epsilon_0$, $\epsilon_s = 6\epsilon_0$, $\hbar\omega_0 = 2.5 \text{ eV}$, $\mu = 0.65 \text{ e} \cdot \text{nm}$ 일 때 탈조량에 따르는 반도체량자점의 선형감수율 χ_{SQD} , 금속나노립자의 선형감수율 χ_{MNP} , 계의 선형감수율 $\chi^{(1)}$ 의 실수부와 허수부변화를 계산하면 그림 2-4와 같다.

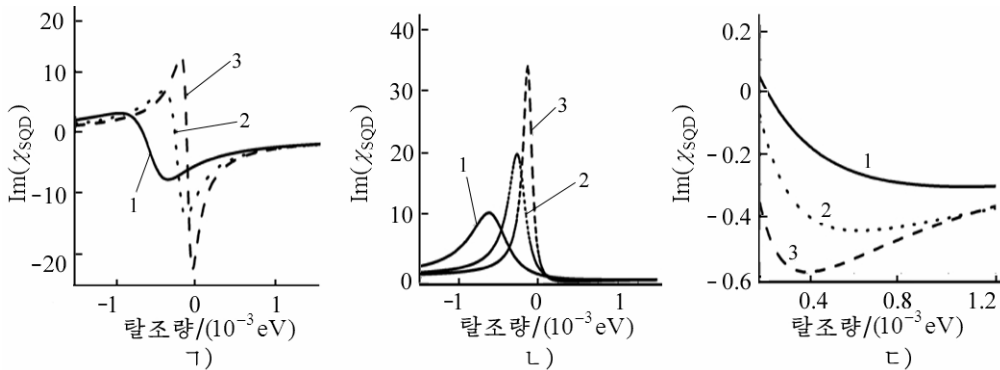


그림 2. 반도체량자점의 선형감수율 χ_{SQD} 의 실수부(㉠), 허수부(㉡, ㉢)

1-3은 R 가 각각 11, 12, 13nm인 경우

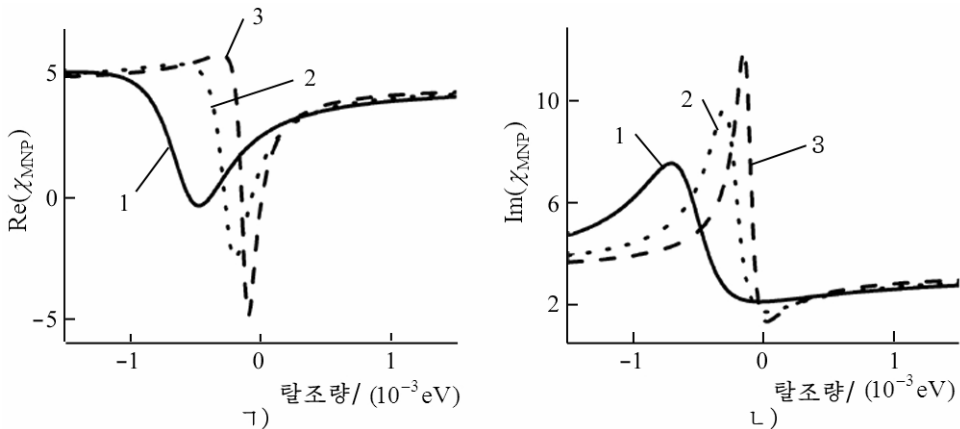


그림 3. 금속나노립자의 선형감수율 χ_{MNP} 의 실수부(㉠), 허수부(㉡)

1-3은 그림 2의 경우와 같음

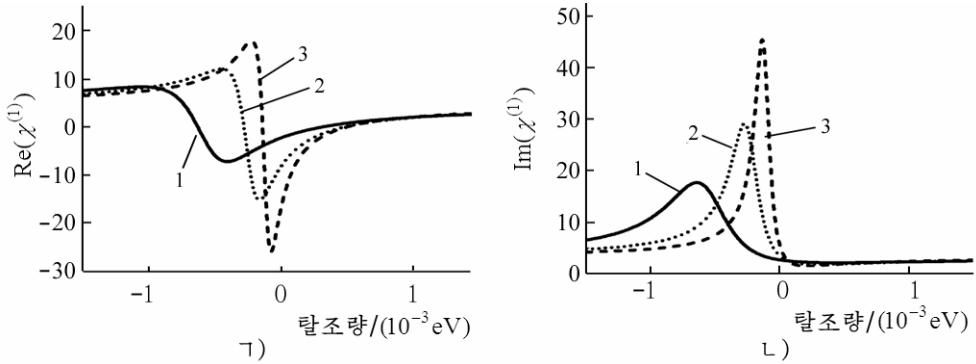


그림 4. 계의 선형감수율 $\chi^{(1)}$ 의 실수부(τ), 허수부(ι)
1-3은 그림 2의 경우와 같음

그림 2-4의 경우에 $1/T_2$ 이라는 항은 G 의 실수부와 허수부보다 훨씬 작고 그것의 기여는 보다 중요하지 않으므로 거의 무시할수 있다.

다음으로 R 의 값차가 큰 경우 $\Gamma/V = 5 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$, $a = 7.5 \text{nm}$, $T_2 = 0.3 \text{nm}$, $\epsilon_{\text{env}} = \epsilon_0$, $\epsilon_s = 6\epsilon_0$, $\hbar\omega_0 = 2.5 \text{eV}$, $\mu = 0.65 \text{e} \cdot \text{nm}$ 일 때 탈조량에 따르는 반도체량자점의 선형감수율 χ_{SQD} , 금속나노립자의 선형감수율 χ_{MNP} , 계의 선형감수율 $\chi^{(1)}$ 의 실수부와 허수부변화를 계산하면 그림 5-7과 같다.

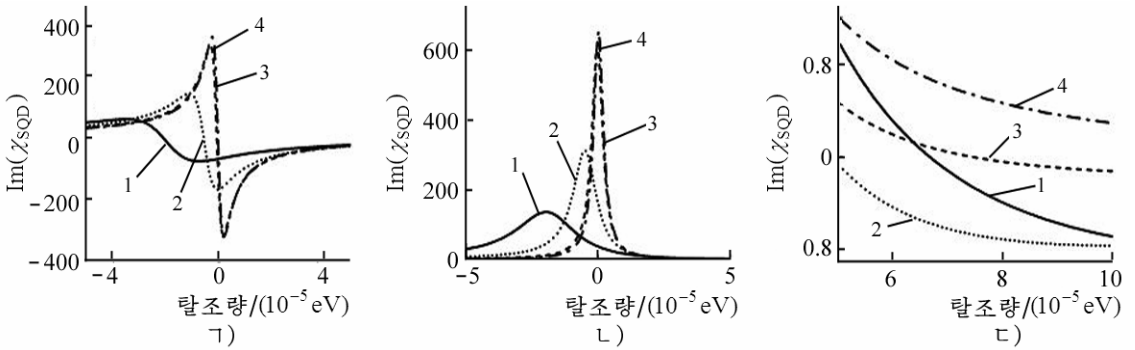


그림 5. 반도체량자점의 선형감수율의 실수부(τ)와 허수부(ι , ς)
1-4는 R 가 각각 16.5, 20.0, 30.0, 80.0nm인 경우

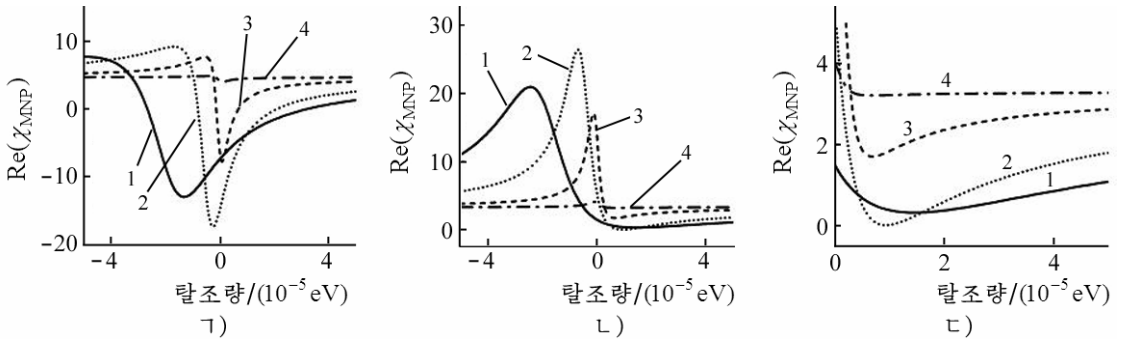


그림 6. 금속나노립자의 선형감수율의 실수부(τ)와 허수부(ι , ς)
1-4는 그림 5의 경우와 같음

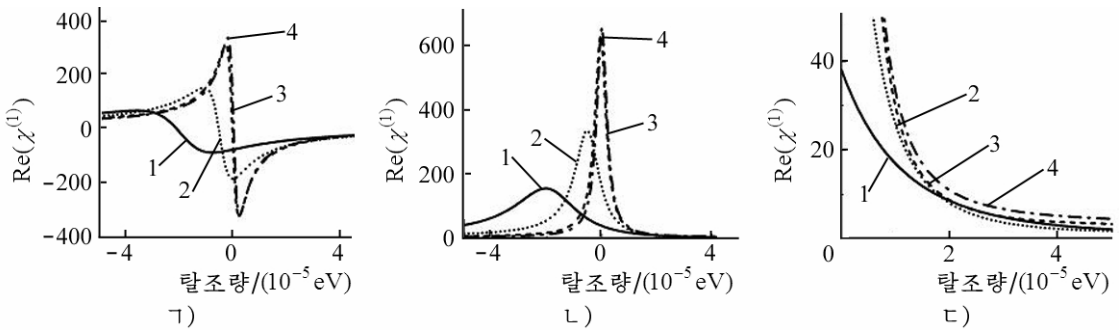


그림 7. 계의 선형감수률의 실수부(1)와 허수부(2, 3, 4)

1-4는 그림 5의 경우와 같음

그림 2-7에서 보는바와 같이 공진위치는 R 가 증가함에 따라 탈조량이 커지는쪽으로 이동한다. 이것은 립자사이의 거리가 증가할 때 3개의 파라메터 G_R , G_I , κ_I/κ_R 가 감소하기때문이다.

또한 그림 2-5에서 보는바와 같이 R 의 모든 값에 대하여 흡수결수 $\text{Im}[\chi_{\text{SQD}}]$ 는 일정한 탈조량범위에서 부의 값으로 되며 흡수봉우리의 오른쪽에 놓인다. 반도체량자점감수률의 허수부가 부의 값을 가지는것은 이 주파수영역에서 증폭을 얻을수 있다는것을 의미한다. 그 원인은 반도체량자점과 금속나노립자의 표면에서 유도된 플라즈몬사이의 간섭성 호상작용에 있으며 이때 유도된 에너지는 이 호상작용에 의하여 반도체량자점과 금속나노립자사이를 이동한다.

한편 그림 5-7에서 보는바와 같이 R 가 증가할수록 흡수공진주파수는 보다 높은 값쪽으로 옮겨간다. 2개의 나노립자가 서로 멀리 떨어져있는 특별한 경우에 증폭봉우리는 없어진다. 그림 2의 1)와 5의 1)에서 보는바와 같이 $R=16.5\text{nm}$ 일 때 증폭봉우리는 가장 높은 값에 도달한다. 그러나 립자사이거리가 보다 작거나 클 때 증폭봉우리는 보다 약해지고 이것이 관측되는 탈조량구간은 보다 날카로와진다.

그림 3의 1), 6의 1), 1)에서 보는바와 같이 $\text{Im}[\chi_{\text{MNP}}]$ 는 R 의 매우 좁은 값구간에서 부의 값으로 된다. 그러나 그림 4의 1), 7의 1), 1)에서 보는바와 같이 반도체량자점과 금속나노립자의 부의 허수부에 대하여 전체 감수률의 허수부는 정의 값을 가진다. 그것은 이 혼합계에서 에너지보존법칙이 성립하기때문이다. 또한 반도체량자점과 금속나노립자의 감수률이 둘 다 부의 값을 가지는 경우에도(그림 6의 1), 5의 1)) 전체 감수률은 정수값을 가진다.

맺 는 말

1) 밀도행렬방정식의 정상상태극한에서 반도체량자점, 금속나노립자, 전체 계의 선형감수률에 대한 닫힌형태의 표현식을 얻었다.

2) 물질파라메터뿐만아니라 립자호상간거리에 따르는 감수률의 의존성을 보여주었다. 반도체량자점의 흡수스펙트르는 특별한 주파수에서 링으로 되며 주파수영역에서 반전이 없는 증폭이 일어난다.

3) 금속나노립자의 선형감수률은 반도체량자점에 의하여 강한 영향을 받는다.

참 고 문 헌

- [1] M. T. Cheng et al.; Opt. Lett., **32**, 2125, 2007.
- [2] S. M. Sadeghi; Nanotechnology, **20**, 225401, 2009.
- [3] S. M. Sadeghi; Nanotechnology, **21**, 355501, 2010.
- [4] A. Ridolfo et al.; Phys. Rev. Lett., **105**, 263601, 2010.
- [5] E. Waks et al.; Phys. Rev., **A 82**, 043845, 2010.
- [6] W. Zhang et al.; Phys. Rev. Lett., **97**, 146804, 2006.
- [7] J. Y. Yan et al.; Phys. Rev., **B 77**, 165301, 2008.
- [8] P. B. Johnson et al.; Phys. Rev., **B 6**, 4370, 1972.

주제 104(2015)년 7월 5일 원고접수

Linear Susceptibility of a Semiconductor Quantum Dot– Metal Nanoparticle Hybrid System

Choe Chung Il, Kim Nam Chol

We study optical effects in a hybrid system composed of a semiconductor quantum dot and a spherical metal nanoparticle that interacts with a weak probe electromagnetic field. We use modified nonlinear density matrix equations for the description of the optical properties of the system and obtain a closed-form expression for the linear susceptibilities of the quantum dot, the metal nanoparticle, and the total system. We then investigate the dependence of the susceptibility on the interparticle distance as well as on the material parameters of the hybrid system.

Key words: susceptibility, hybrid system, exciton, surface plasmon