

금속나노립자-V형세준위반도체량자점으로 이루어진 혼합나노계의 비선형광학선형감수를

고명철, 김남철

위대한 수령 김일성 동지께서는 다음과 같이 교시하시였다.

《새로운 과학분야를 개척하며 최신과학기술의 성과를 인민경제에 널리 받아들이기 위한 연구사업을 전망성있게 하여야 합니다.》(《김일성전집》 제72권 292페이지)

최근년간 반도체량자점(SQD), 금속나노립자(MNP), 금속나노선과 같은 플라즈몬나노구조들이 결합된 혼합나노계의 광학적성질에 대한 연구[1]가 활발히 진행되고있다.

혼합초나노구조인 금속나노립자-반도체량자점(MNP-SQD)혼합나노계에서는 반도체량자점의 러기자와 금속나노립자의 플라즈몬사이의 호상작용에 의하여 비선형파노효과[2], 단일플라즈몬생성[3], 회수터공진에너지수송[4], 강제러기자-플라즈몬-포톤전환[5] 등이 일어난다.

최근에는 약한 마당 또는 강한 마당속에 있는 MNP-SQD혼합나노계의 반전없는 증폭[6], 광학적쌍안정성[7]과 간섭성적으로 결합된 러기자-플라즈몬계에서 생기는 광학적비선형성, 심-껍데기구조(CdS-Ag)에서 량자점의 유효비선형흡수 및 굴절률이 CdS량자점에 비해볼 때 크게 증가된다[8]는것이 실험적으로 밝혀졌다. 또한 러기자-플라즈몬호상작용을 리용하여 새로운 간섭성광원인 스페이저(SPASER)를 만들어내기 위한 연구도 진행되고있다.

우리는 금속나노립자와 V형세준위반도체량자점으로 이루어진 혼합나노계에서의 비선형광학적응답을 리론적으로 연구하였다.

1. 모형과 리론

반경이 a 인 구모양의 금속나노립자와 반경이 r 이고 유전상수가 ϵ_s 인 반도체량자점이 유전상수가 ϵ_c 인 매질속에 있다고 하자.(그림 1) 이때 반도체량자점과 금속나노립자중심사이의 거리는 R 이다.

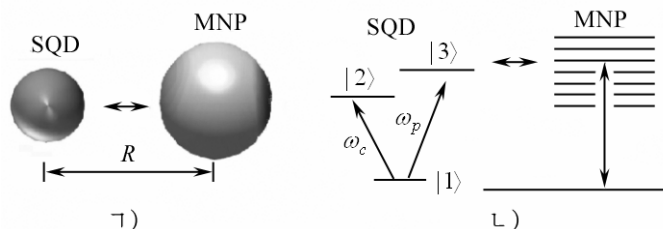


그림 1. 금속나노립자와 반도체량자점으로

이루어진 혼합나노계의 모형

㉠) 혼합나노계의 모형, ㉡) 혼합나노계의 에너지준위모형

금속나노립자는 유전함수 $\epsilon_m(\omega)$ 를 가진 고전립자를, 반도체량자점은 V형세 준위구조를 가지는 반도체량자점을 고찰하였는데 이때 3개 준위들을 각각 $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ 으로 표시하였다. 바닥준위 $|1\rangle$ 에서 웃준위들인 $|2\rangle$, $|3\rangle$ 으로의 이행주파수는 각각 ω_c , ω_p 라고 하였다.

주파수 ω_2 와 ω_3 을 가진 레이저마당은 각각 바닥상태 $|1\rangle$ 과 두 러기상태들인 $|2\rangle$, $|3\rangle$ 과 결합하는데 그것은 다음과 같이 주어진다.

$$\mathbf{E} = E_{21}\mathbf{u}_{21}\cos(\omega_2 t) + E_{31}\mathbf{u}_{31}\cos(\omega_3 t) = \frac{1}{2}E_{21}\mathbf{u}_{21}(e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t}) + \frac{1}{2}E_{31}\mathbf{u}_{31}(e^{i\omega_3 t} + e^{-i\omega_3 t})$$

여기서 E_{21} (E_{31})은 이행 $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ ($|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$)를 일으키는 마당의 방향 \mathbf{u}_{21} (\mathbf{u}_{31})을 따라 느리게 변하는 전기마당진폭이다. 간단히 $E_{21} = E_{31} = E$, $\omega_2 = \omega_3 = \omega$ 라고 표시한다.

반도체량자점의 하밀토니안은 다음과 같다.

$$H = \hbar \sum_{j=1}^3 \omega_{j1} \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j - \mu_{21} E_{\text{SQD}}^{21} (\sigma_{21} + \sigma_{12}) - \mu_{31} E_{\text{SQD}}^{31} (\sigma_{31} + \sigma_{13}) \quad (1)$$

여기서 \hat{a}_j^\dagger 와 \hat{a}_j 는 각각 j 번째 러기자의 발생 및 소멸연산자, σ_{j1} 은 반도체량자점의 $|j\rangle$ 와 $|1\rangle$ 사이의 2중극이행연산자, μ_{j1} ($j=2, 3$)은 $|j\rangle$ 와 $|1\rangle$ 사이의 러기자이행의 내부2중극행렬원소, E_{SQD}^{21} 과 E_{SQD}^{31} 은 각각 $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$, $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ 이행때 반도체량자점에 작용하는 마당이다.

한편 2중극모멘트 $P_{\text{SQD}}^{j1} = \mu_{j1}(\rho_{j1} + \rho_{1j})$ ($j=2, 3$)에서 밀도행렬의 비대각선원소의 높은 주파수시간의존성을 분리하여 $\rho_{j1} = \tilde{\rho}_{j1} e^{i\omega_{j1} t}$, $\rho_{1j} = \tilde{\rho}_{1j} e^{-i\omega_{j1} t}$ 으로 보았다.

이로부터

$$E_{\text{SQD}}^{j1} = \frac{\hbar}{\mu_{j1}} \{ (\Omega_{j1} + G_{j1} \tilde{\rho}_{j1}) e^{-i\omega_{j1} t} + (\Omega_{j1}^* + G_{j1}^* \tilde{\rho}_{j1}) e^{i\omega_{j1} t} \} \quad (j=2, 3). \quad (2)$$

여기서 $G_{j1} = \frac{(S_\alpha^{j1})^2 \gamma(\omega) a^3 \mu_{j1}^2}{4\pi\epsilon_c \hbar \epsilon_{\text{effs}}^2 R^6}$, $\Omega_{j1} = \frac{E\mu_{j1}}{2\hbar\epsilon_{\text{effs}}} \left(1 + \frac{\gamma(\omega) a^3 S_\alpha^{j1}}{R^3} \right)$ 이며 S_α^{j1} 값은 \mathbf{u}_{j1} 이 z 축에 평행

일 때 2, 수직일 때 -1이다. z 축방향은 혼잡나노계의 축에 대응하며 유전체매질의 차폐를 고려하면 $\epsilon_{\text{effs}} = (2\epsilon_c + \epsilon_s)/(3\epsilon_B)$ 이다. Ω_{j1} 은 외부마당과 금속나노립자의 유도된 2중극모멘트

P_{MNP}^{j1} 에 의하여 발생하는 마당과 련관되는 규격화된 라비주파수이다. 계산을 간단히 하기 위하여 $\mu_{21} = \mu_{31} = \mu$ 라고 하자.

식 (1)과 (2)로부터 다음의 마스터방정식을 풀수 있다.

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \rho] + L(\rho) \quad (3)$$

여기서 $L(\rho)$ 는 완화행렬로서 다음과 같이 정의된다.

$$L(\rho) = \frac{1}{2} [\gamma_{21}(2a_1\rho a_1^\dagger - a_1^\dagger a_1 \rho - \rho a_1^\dagger a_1) + \gamma_{31}(2a_2\rho a_2^\dagger - a_2^\dagger a_2 \rho - \rho a_2^\dagger a_2)] \quad (4)$$

여기서 γ_{31} 과 γ_{21} 은 각각 자발방출률에 의한 러기상태들인 $|3\rangle$ 과 $|2\rangle$ 의 붕괴률을 나타낸다.

식 (3)과 (4)를 회전파근사를 리용하여 풀면 다음과 같은 정상상태풀이를 얻을수 있다.

$$\rho_{j1} = -\frac{\Omega_{j1}(\rho_{11} - \rho_{jj})}{\delta + G_{j1}(\rho_{11} - \rho_{jj}) + i/T_2} = -\frac{\Omega_{j1}\Delta}{\delta + G_{j1}\Delta + i/T_2}. \quad (5)$$

따라서 반도체량자점과 금속나노립자의 선형감수율은 각각 다음과 같이 정의된다.

$$\chi_{\text{SQD}} = \sum_{j=2,3} \frac{2\Gamma}{\epsilon_0 E_0 V} \mu_{j1} \rho_{j1} \quad (6)$$

$$\chi_{\text{MNP}} = \frac{2}{\epsilon_0 E_0} P_{\text{MNP}}^{(+)} \quad (7)$$

여기서 Γ 는 광학적속박인자, V 는 반도체량자점의 체적, $P_{\text{MNP}}^{(+)}$ 는 금속나노립자의 편극이다.

2. 결과 및 해석

논문에서는 선행연구들[2, 3]에서와 같이 위상시간을 $T_2 = 0.3\text{ns}$ 로 주었다. $\epsilon_s = 6\epsilon_0$ (ϵ_0 은 진공유전률)이며 강하게 속박된 반도체량자점구역에서 $\Gamma/V = 5 \times 10^{23}\text{m}^{-3}$ 이다. $\epsilon_m(\omega)$ 는 금의 경우에 대응하는 실험값[1]을 리용하였다. 띠들 호상간 광학적이행행렬원소는 $\mu = 0.65e \cdot \text{nm}$ 이며 이때 2개 준위에너지들은 금속나노립자의 플라즈몬주파수근방에서 $2.5\text{eV} \pm 70\mu\text{eV}$ 이다.

우리는 반도체량자점, 금속나노립자, 혼합나노계의 선형감수율에서 에너지흡수와 관련이 있는 허수부만을 고찰하였다. 이때 $a = 3\text{nm}$, $r = 0.65\text{nm}$, $\epsilon_c = 1$, $s_\alpha^{12} = s_\alpha^{13} = 2$, $\mu_{12} = \mu_{13}$, $I = 10^2\text{W/cm}^2$ 로 설정하였다.

서로 다른 립자사이 거리에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부는 그림 2와 같다.

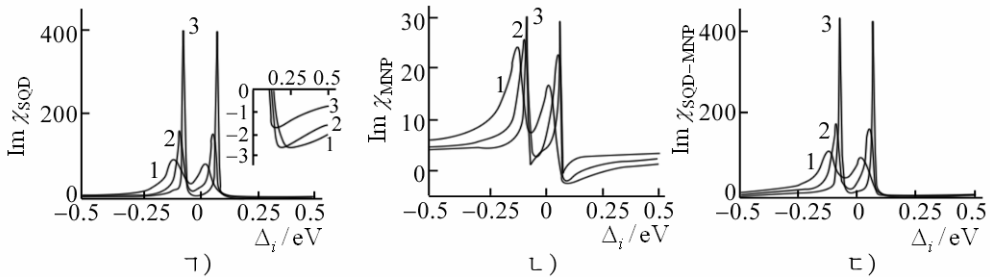


그림 2. 서로 다른 립자사이 거리에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부

㉠) 반도체량자점, ㉡) 금속나노립자, ㉢) 혼합나노계

1-3은 립자사이의 거리가 13, 15, 20nm인 경우

그림 2에서 보는바와 같이 반도체량자점, 금속나노립자, 혼합나노계의 선형감수율의 허수부는 립자사이 거리가 증가할수록 탈조량이 증가하는 방향으로 이동해간다. 특히 허수부는 특정한 주파수대역에서 부의 값을 가진다.(그림 2의 삽입그림) 이로부터 부의 주파수대역에서 증폭을 실현할수 있다는것을 알수 있다. 다시말하여 반도체량자점과 금속나노립자사이의 간섭성적인 호상작용으로 그것들사이에 에너지수송이 일어난다.

또한 립자사이 거리가 증가할 때 선형감수율의 허수부가 링으로 다가가는데 이것은 증폭이 링으로 된다는것을 의미한다.

$R=13\text{nm}$ 일 때 서로 다른 ϵ_c 값에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부는 그림 3과 같다.

그림 3에서 보는바와 같이 ϵ_c 값에 따라 선형감수율의 허수부모양은 크게 변화된다. 반도체량자점에서 선형감수율의 허수부는 $\epsilon_c = 1.0, 3.0$ 인 경우에는 쌍봉우리특성이 나타나지만 $\epsilon_c = 1.8$ 인 경우에는 그 특성이 아주 약해진다. 특히 금속나노립자에서 선형감수율의 허수

부는 $\epsilon_e = 1.0$ 인 경우 부의 극값을 가지는데 그것은 금속나노립자에서 반전없는 증폭이 아주 큰 값을 가진다는것을 의미한다. 하지만 혼합나노계의 선형감수율은 정의 값을 가진다.

$R = 13\text{nm}$, $\epsilon_e = 1$ 일 때 서로 다른 2중극모멘트에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부는 그림 4와 같다.

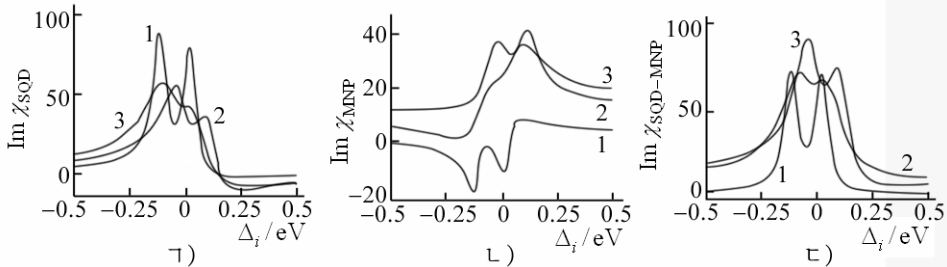


그림 3. 서로 다른 ϵ_e 값에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부

가) 반도체량자점, 나) 금속나노립자, 다) 혼합나노계

1-3은 ϵ_e 가 1.0, 1.8, 3.0인 경우

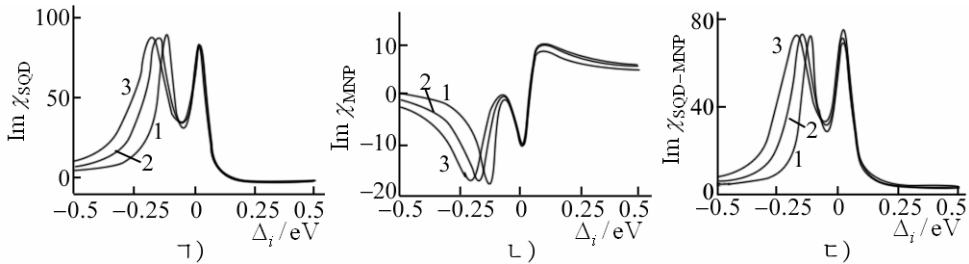


그림 4. 서로 다른 2중극모멘트에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부

가) 반도체량자점, 나) 금속나노립자, 다) 혼합나노계

1-3은 μ_{13}/μ_{12} 가 1.00, 1.29, 1.49인 경우

그림 4에서 보는바와 같이 2중극모멘트가 클수록 봉우리폭이 점점 더 넓어지면서 봉우리의 정점은 왼쪽(탈조가 커지는 방향)으로 이동해간다. 특히 금속나노립자에서 립자수 반전이 없이 증폭이 일어나는 주파수대역이 점점 더 넓어진다.

$R = 13\text{nm}$, $\epsilon_e = 1$, $\mu_{12} = \mu_{13}$ 일 때 각이한 편극상수값에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부는 그림 5와 같다.

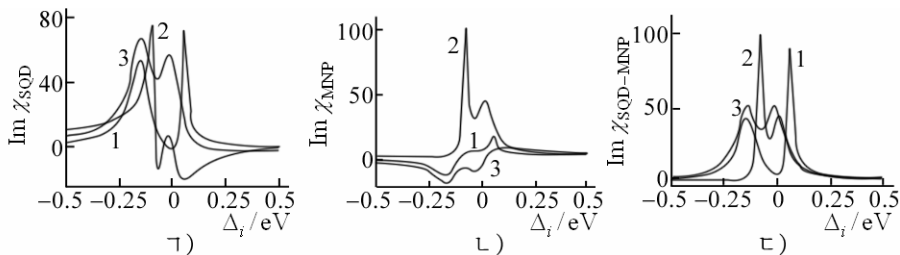


그림 5. 각이한 편극상수값에서 탈조량에 따르는 선형감수율의 허수부

가) 반도체량자점, 나) 금속나노립자, 다) 혼합나노계

1- $s_{\alpha}^{12} = -1$, $s_{\alpha}^{13} = 2$ 인 경우, 2- $s_{\alpha}^{12} = 2$, $s_{\alpha}^{13} = -1$ 인 경우,

3- $s_{\alpha}^{12} = 2$, $s_{\alpha}^{13} = 2$ 인 경우

그림 5에서 보는바와 같이 $s_{\alpha}^{12} = -1$, $s_{\alpha}^{13} = 2$ 인 경우와 $s_{\alpha}^{12} = 2$, $s_{\alpha}^{13} = -1$ 인 경우 반도체

량자점과 혼합나노계에서 선형감수률의 허수부의 최대값들이 서로 다른 위치들에서 나타나는데 이것은 외부마당과 평행일 때 호상작용이 세진다는것을 의미한다. 또한 외부마당과 수직인 방향의 편극을 가지는 에너지준위와 공진인 주파수대역에서의 선형감수률의 폭이 평행인 주파수에서보다 예리해진다.

맺는 말

량자점, 금속나노립자, 혼합나노계의 선형감수률을 정상상태에서 해석하고 여러가지 파라미터조종을 통하여 선형감수률을 간접성적으로 조종할수 있다는것을 밝혔다. 량자점과 금속나노립자, 혼합나노계의 선형감수률은 립자사이 거리와 배경매질의 유전률, 2중극모멘트, 편극상수를 변화시켜 조종할수 있으며 특히 어떤 주파수대역에서는 립자수반전이 없이 증폭을 실현할수 있다.

참고 문헌

- [1] S. M. Sadeghi; Phys. Rev., B 82, 035413, 2010.
- [2] Wei Zhang et al.; Phys. Rev. Lett., 97, 146804, 2006.
- [3] S. M. Sadeghi et al.; J. Phys., D 47, 165302, 2014.
- [4] A. O. Govorov et al.; Phys. Rev., B 76, 125308, 2007.
- [5] A. G. Tudela et al.; Phys. Rev. Lett., 106, 020501, 2011.
- [6] S. M. Sadeghi; Nanotechnology, 21, 455401, 2010.
- [7] J. B. Li et al.; Opt. Express, 20, 1856, 2012.
- [8] X. H. Wang et al.; J. Chem. Phys., 125, 2, 024707, 2006.

주체106(2017)년 3월 5일 원고접수

Nonlinear Optical Linear Susceptibility of Hybrid Nanosystem composed of Metallic Nanoparticle-V Type Three Level Semiconductor Quantum Dot

Ko Myong Chol, Kim Nam Chol

We have theoretically studied the non-linear optical response of the hybrid nanosystem composed of the V type three level quantum dot and metallic nanoparticle, where it could be controlled by adjusting the electric constant of background medium, interparticle distance and polarization of the SQD.

Key words: exciton, plasmon, linear susceptibility, quantum dot, metallic nanoparticle