

## 금속나노립자와 반도체량자점으로 구성된 혼합계의 3차비선형광학적감수률에 대한 연구

최충일, 김남철, 서광혁

오늘날 금속나노립자(MNP)들과 반도체량자점(SQD)들로 이루어진 혼합계들에 대한 연구가 활발히 벌어지고있다.[1-7]

우리는 선행연구방법[5]을 리용하여 MNP-SQD혼합계에서의 3차비선형광학적감수률에 미치는 엑시톤-플라즈몬결합효과를 이론적으로 연구하였다.

### 1. 이론적연구

이제 편극된 외부전기마당  $E = E_0 \cos(\omega t)$  속에 반경이 각각  $R, r$  인 구모양의 MNP와 SQD로 이루어진 혼합계가 있다고 하자. 이때 구의 대칭성으로 하여 구형량자점은 방향  $\alpha$  에 평행인 광학2중극들을 가지는 세가지 엑시톤을 가지게 된다. 여기서  $\alpha$  는  $x, y, z$  가 될 수 있다.[8]

진폭과 주파수가 각각  $E_c, \omega_c$  인 강한 전기조종마당에 의하여 구동되고 진폭과 주파수가 각각  $E_s, \omega_s$  인 약한 신호마당에 의하여 측정되는 MNP-SQD혼합계의 구성도와 에네르기준위도는 그림 1과 같다.

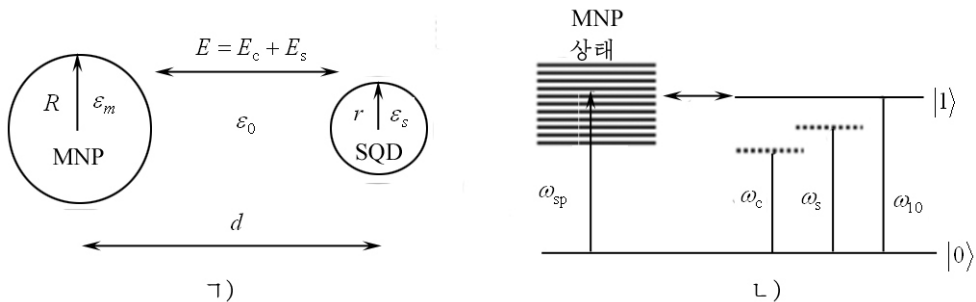


그림 1. MNP-SQD혼합계의 구성도(㉠)와 에네르기준위도(㉡)

$d$  는 나노립자들사이의 거리,  $\epsilon_0, \epsilon_s, \epsilon_m$  들은 각각 배경, 량자점과 금속나노립자의 유전률,  $\omega_{10}, \omega_{sp}$  는 각각 엑시톤 및 플라즈몬 주파수,  $\omega_c, \omega_s$  는 각각 조종마당과 신호마당의 주파수

MNP-SQD혼합계의 하밀토니안은 다음과 같이 쓸수 있다.[8]

$$\begin{aligned}
 H &= \hbar \Delta \hat{\sigma}_z - \mu (\tilde{E}_{\text{SQD}} \hat{\sigma}_{10} + \tilde{E}_{\text{SQD}}^* \hat{\sigma}_{01}) \\
 \tilde{E}_{\text{MNP}} &= E_c + E_s e^{-i\delta} + S_\alpha P_{\text{SQD}} / [3\epsilon_{\text{eff}} d] \\
 \epsilon_{\text{eff}} &= (2\epsilon_0 + \epsilon_s) / 3
 \end{aligned} \tag{1}$$

여기서  $\hat{\sigma}_{ij} (i, j=0, 1)$  는 량자점의 상태들인  $|i\rangle, |j\rangle$  들사이의 2중극이행연산자,  $\hat{\sigma}_z = (\hat{\sigma}_{11} - \hat{\sigma}_{00})/2$ ,  $\Delta = \omega_{10} - \omega_c$  는 엑시톤주파수  $\omega_{10}$  과 조종마당주파수  $\omega_c$  사이의 차,  $\tilde{E}_{\text{SQD}}$ ,  $\tilde{E}_{\text{MNP}}$  는 각각 량자점과 금속나노립자들이 받는 충전기마당,  $\delta = \omega_s - \omega_c$  는 신호마당과 조종마당의 주파수차,  $S_\alpha$  는 기하학적인자로서  $E$  가  $z$  축에 평행일 때 2, 수직일 때 -1과 같다. 우리는  $z$  축의 방향을 MNP-SQD혼합계의 축과 일치시켰다. 금속나노립자의 2중극  $P_{\text{MNP}} = \alpha_{\text{MNP}} \tilde{E}_{\text{MNP}}$  는 금속나노립자의 표면우에 유도된 전하로부터 생기는데 여기서  $\alpha_{\text{MNP}} = \epsilon_0 R^3 (\epsilon_m - \epsilon_0) / (2\epsilon_0 + \epsilon_m)$  [6]이고 량자점의 2중극모멘트는  $P_{\text{SQD}} = \mu \sigma_{10}$  [5]이다.

$\hat{\sigma}_{10}$ ,  $\sigma_z$  의 량자성을 무시하면 량자점에서의 엑시톤의 시간진화는 다음과 같은 하이젠베르그운동방정식에 의하여 결정된다.

$$\frac{d\hat{\sigma}_{01}}{dt} = -i\Delta\hat{\sigma}_{01} - 2i\frac{\mu(E_{\text{SQD}} + E_s e^{-i\delta})}{\hbar}\hat{\sigma}_z \quad (2)$$

$$\frac{d\hat{\sigma}_z}{dt} = i\frac{\mu}{\hbar}(E_{\text{SQD}}\hat{\sigma}_{10} - E_{\text{SQD}}^*\hat{\sigma}_{01}) + i\frac{\mu}{\hbar}(E_s e^{-i\delta}\hat{\sigma}_{10} - E_{\text{SQD}}^* e^{i\delta}\hat{\sigma}_{01}) \quad (3)$$

만일  $P = \mu \sigma_{10}$ ,  $w = 2\sigma_z$  로 설정하면 하이젠베르그운동방정식으로부터 다음 식을 얻게 된다.

$$\frac{dp}{dt} = (-1/T_2 - i\Delta)p - \frac{i\mu^2}{\hbar} wE \quad (4)$$

$$\frac{dw}{dt} = -(w+1)/T_1 + \frac{4}{\hbar} \text{Im}(pE^*) \quad (5)$$

이제  $p$ ,  $w$  를 각각 다음과 같이 표시하자.

$$p = p_0 + p_1 e^{-i\delta} + p_{-1} e^{i\delta} \quad (6)$$

$$w = w_0 + w_1 e^{-i\delta} + w_{-1} e^{i\delta} \quad (7)$$

식 (6), (7)을 식 (4), (5) 에 대입하면 다음의 정상상태방정식을 얻게 된다.

$$\begin{aligned} 0 &= -(1/T_2 + i\Delta)p_0 - \frac{i\mu^2 B}{\hbar} w_0 p_0 - \frac{i\mu^2 A}{\hbar} w_0 E_c \\ -i\delta p_1 &= -(1/T_2 + i\Delta)p_1 - \frac{i\mu^2 B}{\hbar} (w_0 p_1 + w_1 p_0) - \frac{i\mu^2}{\hbar} (A w_1 E_c + w_0 E_s) \\ i\delta p_{-1} &= -(1/T_2 + i\Delta)p_{-1} - \frac{i\mu^2 B}{\hbar} (w_0 p_{-1} + w_{-1} p_0) - \frac{i\mu^2 A}{\hbar} w_{-1} E_c \\ 0 &= -(w_0 + 1)p_0/T_1 + \frac{2i}{\hbar} A(p_0^* E_c - p_0 E_c) \\ -i\delta w_1 &= -w_1/T_1 + \frac{2i}{\hbar} [A(p_{-1}^* E_c - p_1 E_c^*) + p_0^* E_s] \\ i\delta w_{-1} &= -w_{-1}/T_1 + \frac{2i}{\hbar} [A(p_1^* E_c - p_{-1} E_c^*) - p_0 E_s^*] \end{aligned} \quad (8)$$

여기서  $A = 1 + \gamma R^3 S_\alpha / (\epsilon_{\text{eff1}} d^3)$ ,  $B = \gamma R^3 S_\alpha^2 / (\epsilon_{\text{eff1}} \epsilon_{\text{eff2}} d^6)$  이다.

식 (8)을 풀면 다음 식을 얻게 된다.

$$w_{-1} = -\frac{A\mu^2 w_0 E_s^* E_c T_2^2}{\hbar^2 D(\delta_c)} (2 + i\delta_c)[1 - i(\Delta_c + B_c w_0)][1 + i(\delta_c + \Delta_c + B_c w_0)] \quad (9)$$

$$p_{-1} = \frac{iA^2 \mu^4 w_0 E_s^* E_c^2 T_2^3}{\hbar^3 D(\delta_c)[1 + i(\Delta_c + B_c w_0)]} (1 + i\Delta_c)(2 + i\delta_c)[1 - i(\Delta_c + B_c w_0)]$$

여기서  $\Omega_c^2 = \mu^2 |E_c|^2 T_2^2 / \hbar^2$  은 조종마당의 일반화된 세기,  $\delta_c = \delta T_2$ ,  $\Delta_c = \Delta T_2$ ,  $B_c = \mu^2 B T_2 / \hbar^2$  이다.

따라서 비선형광학감수율은 다음과 같다.

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \frac{N p_{-1}}{3 E_c^2 E_s^*} = \frac{i N A^2 \mu^4 w_0 T_2^3 (1 + i\Delta_c)(2 + i\delta_c)[1 - i(\Delta_c + B_c w_0)]}{3 \hbar^3 D(\delta_c)[1 + i(\Delta_c + B_c w_0)]} \quad (10)$$

$$D(\delta_c) = 2(i\delta_c + T_2/T_1)[1 + (\Delta_c + B_c w_0)^2][(1 + i\delta_c)^2 + (\Delta_c + B_c w_0)^2] + 2A^2 \Omega_c^2 [(1 + \Delta_c^2)(1 + i\delta_c) - B_c w_0(B_c w_0 - i\delta_c \Delta_c)] \quad (11)$$

$$w_0 = -A^2 \Omega(T_1/T_2) w_0 / [1 + (\Delta_c + B_c w_0)^2] - 1/4 \quad (12)$$

$N$ 은 혼합계의 립자수밀도,  $\text{Im} \chi_{\text{eff}}^{(3)}$ ,  $\text{Re} \chi_{\text{eff}}^{(3)}$  들은 각각 비선형 흡수 및 굴절률을 나타낸다.

## 2. 결과 및 해석

문제를 간단히 하기 위하여 우리는 반경이  $R = 7.5\text{nm}$  인 Au금속나노립자를 선택하고 배경 및 량자점의 유전률들은 각각  $\epsilon_0 = 1$ ,  $\epsilon_s = 6$  과 같다고 하였다.[7] 또한 량자점의 완화시간과 2중극모멘트들을  $T_1 = 0.8\text{ns}$ ,  $T_2 = 0.3\text{ns}$ ,  $\mu = 10^{-28}(\text{C} \cdot \text{m})$ ,  $N = 10^{20} \text{m}^{-3}$ , 엑시톤공명주파수를  $3.8 \times 10^{15} \text{Hz}(2.5\text{eV})$ 로 설정하였다.[8]

$\Delta_c = (\omega_{10} - \omega_c)T_2 = 1$ ,  $R = 17, 18, 19\text{nm}$  일 때 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형 흡수( $\text{Im} \chi_{\text{eff}}^{(3)}$ )와 굴절률( $\text{Re} \chi_{\text{eff}}^{(3)}$ )의 변화는 그림 2와 같다.

그림 2에서 봉우리 1-3은 각각 세포톤공명, 강제레일레이공명, 슈타르크공명으로부터 생기는 흡수 및 굴절스펙트르봉우리이다.[5]

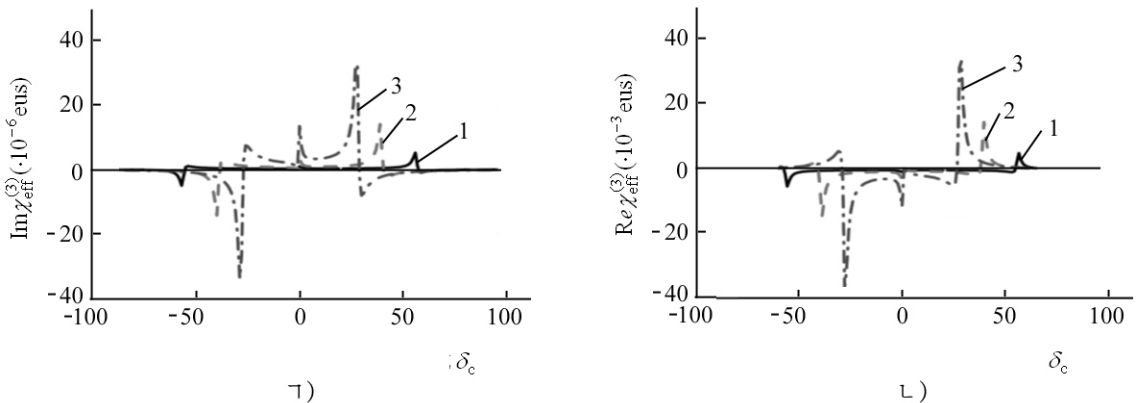


그림. 2. 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형 흡수(a)와 굴절률(b)의 변화  
1-3은  $R$  가 각각 17, 18, 19nm인 경우

그림 2에서 보는바와 같이 공진거리로부터 공진근방의 러기에로의 흡수 및 굴절스펙트르의 변화는 우와 같은 세가지 공명들의 역할이 련속적으로 변한다는것을 보여준다. 또한 비선형광학응답이 짧은 거리령역에서는 립자간거리에 매우 예민하다.

다음  $\Omega_c^2=1$ ,  $\Delta_c=(\omega_{10}-\omega_c)T_2=1$ ,  $R$  가 각각  $R=25, 30, 35\text{nm}$ ,  $R=50, 60, 65\text{nm}$  일 때 탈조량  $\delta_c=(\omega_s-\omega_c)T_2$  에 따르는 비선형굴절률( $\text{Re}\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ )의 변화는 그림 3과 같다.

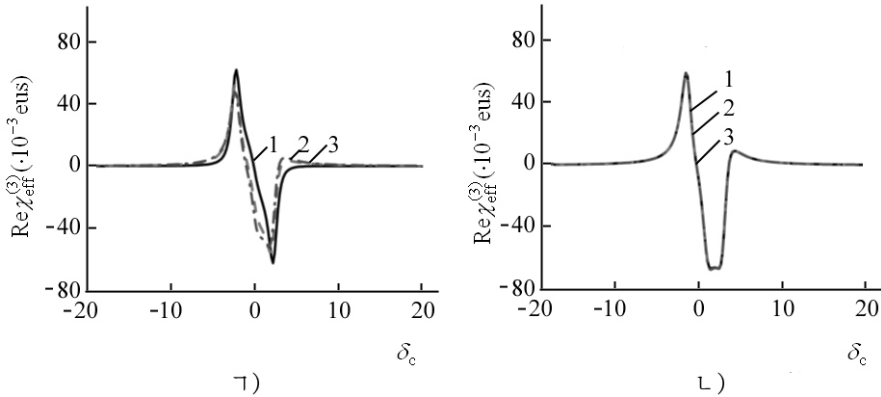


그림 3. 탈조량  $\delta_c=(\omega_s-\omega_c)T_2$  에 따르는 비선형굴절률의 변화

1)  $R=25, 30, 35\text{nm}$ , 2)  $R=50, 60, 65\text{nm}$

그림 3의 1)에서 보는바와 같이 굴절률스펙트르세기가 립자간거리가 더 작을수록 커 지는데 이것은 다음과 같이 설명할수 있다. 금속나노립자와 량자점사이의 끌롱호상작용으로부터 생기는 국부마당은 외부마당과 반대방향으로 작용하여 그것을 상쇄시키며 결국 매 질속에서의 전체 마당은 약화된다. 금속나노립자와 량자점사이의 거리가 더 짧을수록 끌롱 호상작용은 더 강해지며 따라서 전체 마당이 더 약화되게 되고 굴절률스펙트르세기는 커 진다. 또한 그림 3의 2)에서 보는바와 같이 약 50nm이상의 립자간거리에 대하여서는 굴절률이 립자간거리에 거의 의존하지 않는다.

$R=18\text{nm}$ ,  $\Delta_c=(\omega_{10}-\omega_c)T_2=20, 40, 60$ , 조종빛의 라비주파수가  $\Omega_c^2=10$  일 때 탈조량  $\delta_c=(\omega_s-\omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수 및 굴절스펙트르의 변화는 그림 4와 같다.

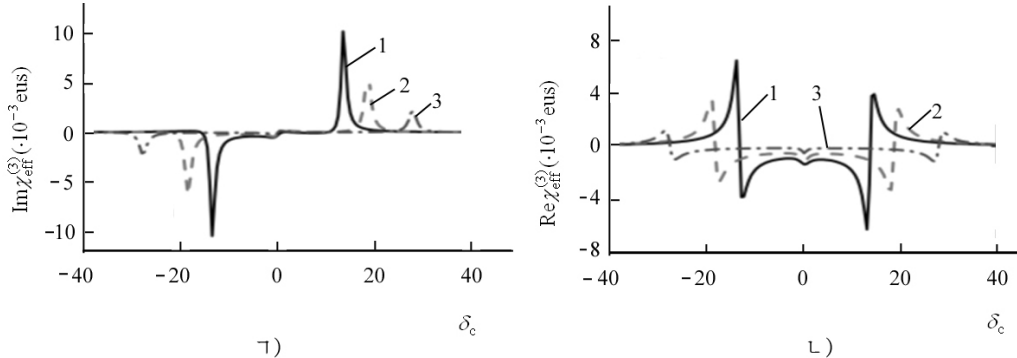


그림 4. 탈조량  $\delta_c=(\omega_s-\omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수(1))와

굴절률(2))스펙트르의 변화

1-3은  $\Delta_c$  가 각각 20, 40, 60인 경우

그림 4의 ㄱ)에서 보는바와 같이 흡수봉우리의 높이는 탈조량이 증가함에 따라 낮아진다. 여기서 나타나는 비선형성은 양자점의 두 준위계에서 높은 레이저출력의 흡수가 포화되기때문에 생기는것이다. 금속나노립자의 역할은 엑시톤-플라즈몬공명영역에서 이러한 비선형성을 증가시킨다.

$E$ 가 혼합계의 축과 평행 또는 수직이고  $R=18\text{nm}$ ,  $\Delta_c = (\omega_{10} - \omega_c)T_2 = 1$ ,  $\Omega_c^2 = 80, 100, 120$  일 때 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수 및 굴절률스펙트럼의 변화는 그림 5와 같다.

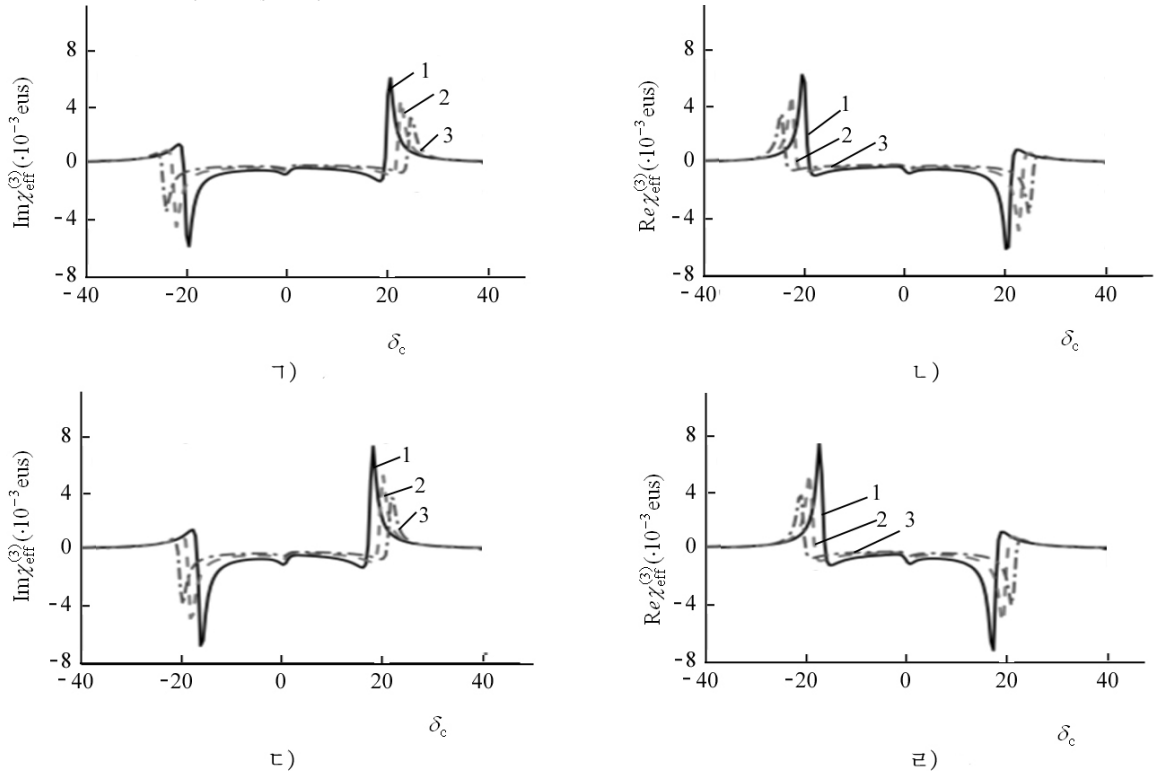


그림 5. 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수와 굴절률스펙트럼의 변화

ㄱ), ㄴ)는 각각  $E$ 가 혼합계의 축과 평행일 때, ㄷ), ㄹ)는 각각  $E$ 가 혼합계의 축에 수직일 때

그림 5에서 보는바와 같이  $E$ 가 혼합계의 축과 평행일 때 라비주파수가 작을수록 조종 빛은 비선형광학흡수 및 굴절률스펙트럼세기를 증가시키며 라비주파수가 클수록 비선형광학흡수 및 굴절률스펙트럼세기의 최대봉우리위치는 공진점  $\delta_c = 0$  으로부터 더 멀어진다. 또한  $E$ 가 혼합계의 축에 수직일 때에는 평행일 때보다 흡수 및 굴절률스펙트럼세기가 커지고 최대봉우리의 위치는 공진점에 더 가깝게 놓인다.

$E$ 가 혼합계의 축과 평행 또는 수직이고  $R=18\text{nm}$ ,  $\Delta_c = (\omega_{10} - \omega_c)T_2 = 20$ ,  $\Omega_c^2 = 100, 10$  일 때 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수스펙트럼의 변화는 그림 6과 같다.

그림 6에서 보는바와 같이 흡수율은  $E$ 가 혼합계의 축과 평행일 때보다 수직일 때 증가한다. 또한 파라메터들을  $\Delta_c = 20$ ,  $\Omega_c^2 = 100$  으로 설정하는 경우에는 흡수율이  $E$ 가 혼합계의 축과 평행일 때보다 수직일 때 작아진다.

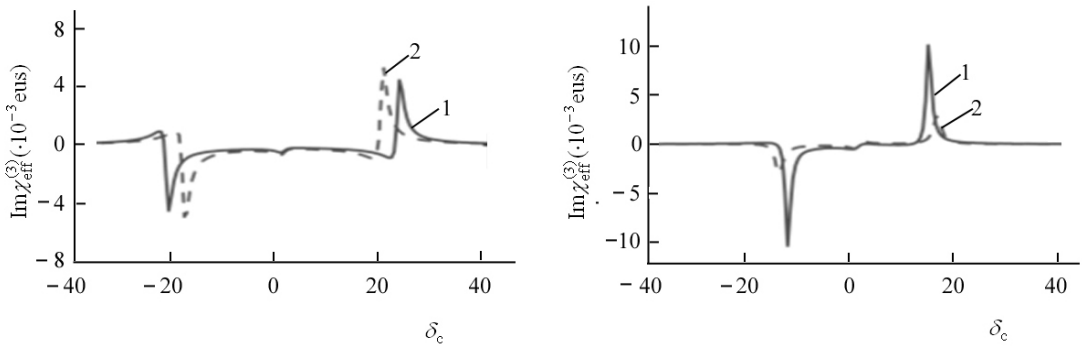


그림 6. 탈조량  $\delta_c = (\omega_s - \omega_c)T_2$  에 따르는 비선형흡수스펙트럼의 변화

ㄱ), ㄴ)는  $\Omega_c^2$  가 각각 100, 10인 경우, 1- $E$  가 혼합계의 축에  
평행인 경우, 2- $E$  가 혼합계의 축에 수직인 경우

그림 6에서 보는바와 같이 조종마당이나 신호마당의 탈조량, 립자들사이의 거리, 혼합계에 작용하는 전기마당의 방향이나 라비주파수 등을 변화시키면 각이한 비선형흡수 및 굴절률스펙트럼을 얻을수 있다. 이것은 MNP와 SQD사이의 끌롱호상작용으로부터 생기는 국부마당의 작용때문이다. 일반적으로 MNP와 SQD에 작용하는 유효마당은 외부마당과 유도된 내부마당들의 중첩이며 이 유효마당의 증강 및 억제는 편극에 의존한다. 따라서 그림 6의 ㄱ), ㄴ)에서 나타나는 편극의존성도 역시 외부 및 유도된 내부마당들의 간섭의 결과이라는데를 알수 있다.

## 맺 는 말

- 1) 엑시톤립자수와 유효3차광학적감수율에 대한 해석식을 유도하고 혼합계의 비선형광학적응답을 해석하였다.
- 2) 조종마당의 주파수, 세기 및 편극방향을 변화시키거나 립자간거리를 조절하여 비선형광학흡수 및 굴절률을 조종할수 있다.
- 3) 얻어진 결과들은 광학스위치와 같은 나노척도의 광학장치들을 제작하는데 응용할수 있다.

## 참 고 문 헌

- [1] M. Achermann; J. Phys. Chem. Lett., 1, 2837, 2010.
- [2] S. M. Sadeghi; Phys. Rev., B 82, 035413, 2010.
- [3] Wei Zhang et al.; Phys. Rev., B 84, 081405(R), 2011.
- [4] A. O. Govorov et al.; Nano Lett., 6, 984, 2006.
- [5] R. W. Boyd; Nonlinear Opt., New York, 315~321, 2007.
- [6] M. T. Cheng et al.; Opt. Lett., 32, 15, 2125, 2007.
- [7] N. C. Kim; Opt. Express., 20, 2, 1856, 2012.
- [8] W. Zhang et al.; Phys. Rev. Lett., 97, 146804, 2006.

주체104(2015)년 3월 5일 원고접수

**On the Third-Order Optical Nonlinearity of a Coherently Coupled  
Hybrid System of a Metal Nanoparticle and  
a Semiconductor Quantum Dot**

*Choe Chung Il, Kim Nam Chol and So Kwang Hyok*

We have theoretically studied the exciton-plasmon coupling effects on the third-order optical nonlinearity of a coherently coupled hybrid system of a metal nanoparticle (MNP) and a semiconductor quantum dot (SQD) in the presence of a strong control field with a weak probe field. We deduced the analytic formulas of exciton population dynamics and the effective third-order optical susceptibility and numerically analyzed the nonlinear optical response of the hybrid system which is greatly enhanced due to exciton-plasmon couplings. Our results show that one can manipulate the nonlinear optical absorption and refraction by controlling the frequency of the control light or varying the intensity and the direction of the light and adjusting the interparticle distance.

Key words: susceptibility, exciton, surface plasmon