

Особенности нелинейного поглощения при резонансном одно- и двухфотонном возбуждении основного экситонного перехода в коллоидных квантовых точках CdSe/ZnS

В. С. Днепровский^{1,a}, Е. А. Жуков^{1,b}, М. В. Козлова¹, А. М. Смирнов¹, Т. Вумайер²

¹Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет,
кафедра физики полупроводников. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.

²Xinjiang Technical Institute of Physics and Chemistry, CAS, China.

E-mail: ^at-vdnepr@rambler.ru, ^beazhukov@bk.ru

Статья поступила 02.12.2011, подписана в печать 23.12.2011

Обнаружены особенности нелинейного поглощения квантовых точек CdSe/ZnS (коллоидный раствор) в случае резонансного одно- и двухфотонного возбуждения основного экситонного перехода мощными ультракороткими лазерными импульсами. При однофотонном возбуждении с ростом интенсивности импульсов уменьшение поглощения (просветление) сменяется увеличением поглощения, что связано с процессом заполнения состояний (насыщением) двухуровневой системы с зависящим от интенсивности света временем жизни возбужденного состояния. Возникающая френелевская или фраунгоферовская дифракция луча лазера, прошедшего через коллоидный раствор с высокой концентрацией квантовых точек, связана с формированием канала прозрачности и с самодифракцией луча лазера на наведенной диафрагме. При двухфотонном возбуждении особенности нелинейного поглощения и треков люминесценции (зависимости интенсивности люминесценции от расстояния) объяснены влиянием, помимо двухфотонного поглощения, процессов, ответственных за замедление роста нелинейного поглощения и тушение люминесценции при высокой интенсивности лазерных импульсов.

Ключевые слова: нелинейное поглощение, квантовая точка, экситон.

УДК: 538.915, 538.958. PACS: 42.65.-k, 73.21.La.

Введение

В последние годы возрастает интерес к изучению нелинейных оптических явлений в полупроводниковых наноструктурах и их использованию при создании новых оптоэлектронных устройств.

В полупроводниковых наноструктурах могут проявляться два типа оптических нелинейных процессов: 1) нелинейные оптические явления, обусловленные безынерционными (классическими) нелинейностями и возникающие при взаимодействии оптического поля высокой напряженности со связанными электронами; 2) нелинейные оптические явления, определяемые динамическими (инерционными) нелинейностями в поглащающих средах при возбуждении носителей интенсивным светом. Величина динамической нелинейности может резко возрастать при резонансном возбуждении наноструктур. Следует отметить, что в полупроводниковых квантовых точках (КТ) доминирующий нелинейный оптический процесс — заполнение состояний, сопровождающееся уменьшением (насыщением) поглощения [1].

Традиционно для описания процесса нелинейного поглощения при резонансном возбуждении среды мощным световым импульсом используют модель насыщения поглощения двухуровневой системы с заданным (фиксированным) временем жизни возбужденного состояния, позволяющую определить изменение во времени населенности за счет вынужденных и спонтанных переходов [2]. Так, в работах [1, 3, 4] при сравнении результатов экспериментов по измерению зависимости нелинейного поглощения в КТ от интенсивности

возбуждающего лазерного излучения с результатами расчетов время жизни возбужденного состояния КТ авторы считают постоянным (не зависящим от уровня возбуждения), что, по-видимому, справедливо лишь при умеренных значениях интенсивности возбуждения. При уровне возбуждения более одной электронно-дырочной пары в КТ время жизни возбужденного состояния резко уменьшается из-за оже-рекомбинации [5–7]. Можно предположить, что это должно приводить к уменьшению темпа насыщения поглощения с ростом интенсивности возбуждающего излучения.

Настоящая работа посвящена изучению особенностей нелинейного поглощения полупроводниковых коллоидных КТ CdSe/ZnS в случае резонансного одно- (первая часть работы) и двухфотонного (вторая часть) возбуждения основных разрешенных дискретных оптических электронно-дырочных переходов мощными ультракороткими импульсами лазера.

Для резонансного одно- или двухфотонного возбуждения основного электронно-дырочного (экситонного) перехода $1S_{3/2}(h)-1S(e)$ в КТ 30 пикосекундными импульсами второй гармоники или основного излучения Nd:YAG-лазера, работающего в режиме синхронизации мод, подбирались КТ подходящего размера (радиуса). На рис. 1 представлены спектры пропускания и фотолюминесценции коллоидного раствора КТ CdSe с оболочкой из ZnS (1–2 монослоя) и с препятствующим слippанию КТ гидрофобным триоктилфосфиновым слоем на внешней поверхности. Энергия основного экситонного перехода в КТ CdSe/ZnS определялась из спектров пропускания и возбуждения фотолюминес-

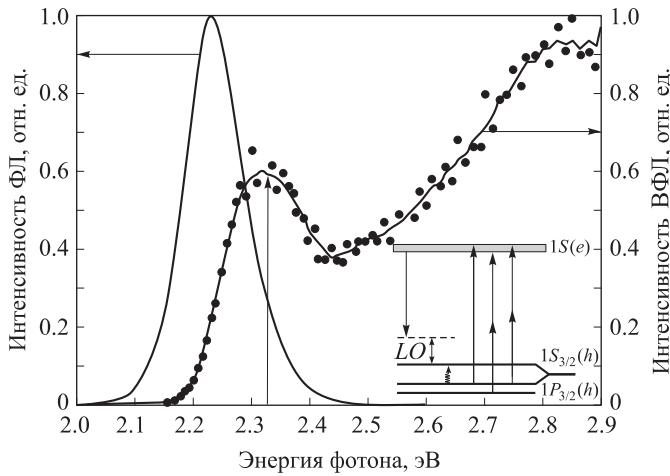


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции и возбуждения фотолюминесценции КТ CdSe/ZnS (коллоидный раствор). Энергия фотона второй гармоники Nd:YAG-лазера указана стрелкой. На вставке приведена схема разрешенных одно- и двухфотонных переходов

ценции [8]. Радиус КТ (2.5 ± 0.4 нм) и дисперсия размеров были определены при сравнении энергии этого перехода и полуширины спектра пропускания с результатами теоретических расчетов [9] зависимости энергии квантовых переходов в КТ CdSe от радиуса.

Нелинейное поглощение квантовых точек CdSe/ZnS при резонансном однофотонном возбуждении

На рис. 2 представлена измеренная зависимость отношения энергии импульса второй гармоники лазера, прошедшего через кювету толщиной 1 мм с коллоидным раствором КТ CdSe/ZnS, к энергии импульса на входе от интенсивности возбуждающего излучения. Концентрация КТ равна 10^{17} см $^{-3}$, линейное пропускание кюветы 0.02. При высоких уровнях возбуждения обнаружено замедление темпа увеличения пропускания и даже уменьшение пропускания. Такую

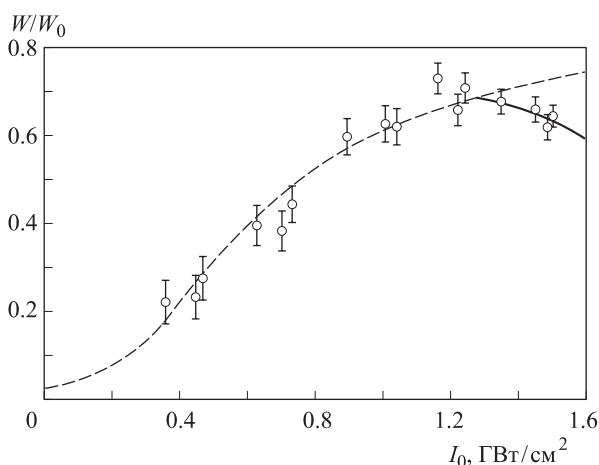


Рис. 2. Отношение прошедшей энергии импульса к падающей от интенсивности импульса на входе в кювету с коллоидным раствором КТ CdSe/ZnS. Пунктир — результат расчета при постоянном, сплошная линия — при уменьшающемся из-за оже-рекомбинации времени жизни возбужденного состояния

зависимость можно объяснить процессом заполнения состояний в КТ, у которых время жизни возбужденного состояния зависит от уровня возбуждения.

При анализе нелинейного поглощения ультракоротких мощных импульсов лазера в случае однофотонного резонансного возбуждения экситонов в КТ CdSe/ZnS использована модель заполнения состояний (насыщения поглощения) двухуровневой системы. Соответствующие уравнения для изменения населенности n электронов в возбужденном состоянии и интенсивности света имеют вид

$$\frac{\partial n}{\partial t} = I(x, t)(N - 2n)\sigma - \frac{n}{\tau_{\text{ex}}}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial I}{\partial x} = -I(x, t)(N - 2n)\sigma. \quad (2)$$

Здесь $I(x, t)$ — поток фотонов в образце на глубине x в момент времени t , σ — сечение поглощения одной КТ, τ_{ex} — время жизни в возбужденном состоянии, N — концентрация КТ.

Следуя [10], можно получить уравнение в безразмерной форме для определения изменения во времени пропускания $T(\chi_1, \tau)$ коллоидного раствора КТ фиксированной толщины x_1 , где $\chi_1 = N\sigma x_1 = -\ln T_0$:

$$\frac{d}{d\tau}(\ln T) + \ln T = 2\xi f(\tau)(1 - T) + \ln T_0. \quad (3)$$

Здесь $\tau \equiv t/\tau_{\text{ex}}$ — безразмерное время, $N' = n/N$, $\xi \equiv \sigma I_0 \tau_{\text{ex}}$, I_0 — поток фотонов лазера на входе в кювету с коллоидным раствором КТ, T_0 — пропускание коллоидного раствора КТ толщиной x_1 при слабом возбуждении (в отсутствие нелинейного поглощения), функцией $f(\tau)$ задана форма импульса лазера. Ее удобно представить в виде $f(\tau) = \frac{1}{2}(1 - \cos C\tau)$ при $0 \leq \tau \leq \frac{2\pi}{C}$. Таким образом, $f(\tau) = \frac{1}{2}(1 - \cos \pi \frac{\tau}{\Delta\tau}) = \frac{1}{2}(1 - \cos \pi \frac{t}{\Delta t})$, где $\Delta t = (\Delta\tau)\tau_{\text{ex}}$ — длительность импульса.

Сопоставление измеренной зависимости пропускания от интенсивности возбуждающего излучения I_0 с результатами численного решения уравнения (3) указывает (рис. 2) на необходимость учитывать уменьшение времени релаксации τ_{ex} с ростом интенсивности накачки I_0 . Время релаксации постоянно при умеренных значениях интенсивности, а при большой интенсивности (при возбуждении более одной электронно-дырочной пары в отдельной КТ) $\tau_{\text{ex}} = \gamma I_0^{-2}$ из-за доминирующего процесса оже-рекомбинации [5–7]. При больших уровнях возбуждения уравнение (3) можно преобразовать к виду

$$\frac{d}{d\tau}(\ln T) + \ln T = 2\sigma\gamma I_0^{-1}f(\tau)(1 - T) + \ln T_0. \quad (4)$$

Результаты расчета с использованием (4) согласуются с экспериментом (рис. 2) при максимальной интенсивности лазерного излучения. Необходимо отметить, что, согласно [10, 11], для двухуровневой системы при умеренной интенсивности возбуждающих импульсов эффект заполнения состояний приводит к изменению формы — к его укорочению и асимметрии из-за значительного поглощения его переднего фронта. Поэтому для сравнения результатов эксперимента с расчетами с помощью уравнений (3) и (4) были определены интен-

сивность прошедших импульсов $I_{tr} = f(\tau)T(\tau)$ и после интегрирования по времени — их энергии.

Помимо эффекта заполнения состояний ряд процессов может вызвать изменение поглощения на частоте основного экситонного перехода КТ $1S_{3/2}(h)-1S(e)$ при возбуждении мощными лазерными импульсами: штарковский сдвиг экситонного перехода, нагрев nanoструктур в результате поглощении света, обратимая и необратимая деградация КТ.

При большой интенсивности возбуждающего КТ излучения из-за оже-процесса электрон или дырка, преодолевшие соответствующие барьеры, могут быть захвачены на поверхности КТ [12]. В результате разделения зарядов эффект Штарка, вызванный образовавшимся локальным электрическим полем, приводит к низкочастотному сдвигу экситонного перехода. Из рис. 1 видно, что штарковский сдвиг спектра поглощения в область меньших длин волн при больших уровнях возбуждения должен приводить к уменьшению поглощения, что противоречит обнаруженному увеличению поглощения при максимальных уровнях возбуждения (рис. 2).

Нагрев колloidного раствора КТ CdSe/ZnS и соответствующий низкочастотный сдвиг основного экситонного перехода (рис. 1) могут также привести лишь к дополнительному уменьшению, а не к увеличению поглощения.

При превышении интенсивности возбуждающих лазерных импульсов определенного порога и при большой дозе облучения (большом числе возбуждающих импульсов) возможно увеличение поглощения КТ («photodarkening effect»). Однако даже в случае обратимой деградации, восстановление пропускания КТ требует значительного времени. Результаты, приведенные на рис. 2, были получены при интенсивности возбуждающего излучения, не превышавшей порог возникновения этого эффекта. Отсутствие деградации подтверждено также идентичной зависимостью пропускания КТ как при увеличении, так и при уменьшении интенсивности возбуждающих лазерных импульсов.

Таким образом, эффект насыщения с зависящим от интенсивности света временем жизни возбужденного состояния можно считать доминирующим процессом, вызывающим уменьшение пропускания колloidного раствора КТ CdSe/ZnS при высоких уровнях возбуждения.

Для изучения особенностей распространения лазер-

ного луча в режиме насыщения поглощения основного экситонного перехода в колloidных КТ CdSe/ZnS был измерен профиль интенсивности лазерного луча на входе и на выходе из кюветы при сильной (линза с фокусным расстоянием 25 мм) и слабой (100 мм) фокусировке излучения в кювете. На рис. 3 представлено распределение интенсивности луча лазера в поперечном направлении на выходе из кюветы с колloidными КТ.

При фокусировке излучения 25-мм линзой обнаружено распределение интенсивности прошедшего света в виде колец при интенсивности одиночного возбуждающего импульса 1 ГВт/см² с максимальной, а при 1.2 ГВт/см² с минимальной интенсивностью в центре. На входе в кювету распределение интенсивности в поперечном сечении луча лазера имело гауссову форму.

Обнаруженное распределение интенсивности излучения на выходе из кюветы с колloidным раствором КТ CdSe/ZnS можно объяснить распространением ограниченного по сечению мощного лазерного луча в нелинейной среде с локальными параметрами, зависящими от интенсивности света. По-видимому, можно выделить несколько существующих процессов.

1. Процесс заполнения состояний (эффект насыщения поглощения) при высоких уровнях возбуждения приводит к просветлению колloidного раствора КТ, практически непрозрачного при малой интенсивности света. Даже при уменьшении времени жизни экситонов при высоких уровнях возбуждения из-за безызлучательной оже-рекомбинации пропускание остается значительным (рис. 2). Таким образом, мощный луч излучения на удвоенной частоте Nd:YAG-лазера, соответствующей резонансному возбуждению электронно-дырочного перехода $1S_{3/2}(h)-1S(e)$ в КТ CdSe/ZnS, формирует канал прозрачности, внутри которого из-за сильного насыщения поглощение мало. Интенсивный импульс может проникать в глубь колloidного раствора КТ на гораздо большие расстояния, чем ненасыщающий слабый импульс.

2. По мере проникновения в колloidный раствор КТ луч света, имеющий гауссово распределение интенсивности в поперечном сечении, теряет свои внешние слои малой интенсивности из-за гораздо большего поглощения на оси луча, чем в центре. Происходит «обдиранье» луча [13] — стрип-эффект (strip effect), приводящий к изменению профиля луча, края которого из плавных становятся резкими. Возникает наведенная «жесткая» диафрагма.

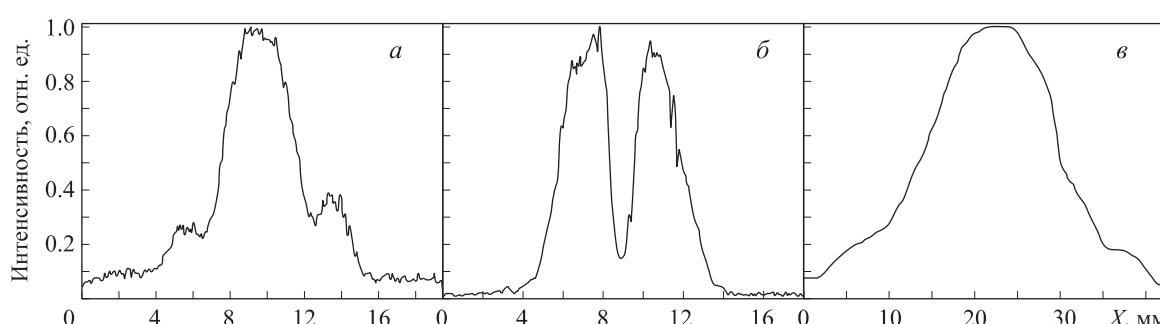


Рис. 3. Распределение интенсивности луча лазера в поперечном сечении на выходе из кюветы с КТ CdSe/ZnS: фокусировка луча 25-мм линзой, интенсивность импульса на входе 1 ГВт/см² (а) и 1.2 ГВт/см² (б); фокусировка 100-мм линзой (в)

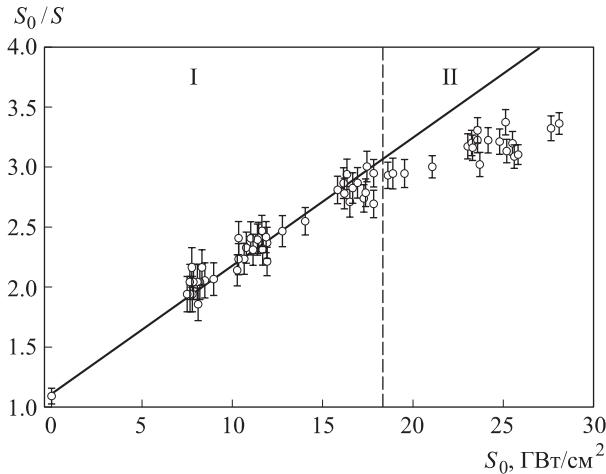


Рис. 4. Зависимость отношения падающей интенсивности к прошедшей от падающей интенсивности импульса при двухфотонном возбуждении 1-мм кюветы с коллоидным раствором КТ CdSe/ZnS (концентрация 10^{18} см^{-3})

3. Из-за эффекта насыщения и стрип-эффекта френелевская самодифракция на наведенной диафрагме происходит в случае сильной фокусировки. Дифракцией Френеля на круглом «отверстии» можно объяснить образование колец с максимумом или минимумом интенсивности в центре (рис. 4 и 5), так как диаметр наведенной диафрагмы зависит от интенсивности входного импульса света. Таким образом, распределение интенсивности на выходе зависит от диаметра наведенной диафрагмы и соответственно от числа открытых зон Френеля. Поперечное сечение профиля интенсивности излучения на выходе из кюветы изменяется при слабой фокусировке светового пучка линзой с диаметром 100 мм. В этом случае возникает только яркий круг, окруженный кольцом с интенсивностью менее 2% от максимальной интенсивности в центре круга. Такой профиль выходной интенсивности характерен для дифракции параллельного пучка на круглом отверстии — дифракции Фраунгофера. Формирование параллельного пучка может быть объяснено компенсацией слабой фокусировки луча его самодефокусировкой. Используемые КТ CdSe/ZnS имеют значительную дисперсию

размеров. Измеренное распределение по размерам асимметрично с преобладанием КТ меньшего размера, для которых красный сдвиг длины волн возбуждающего излучения от резонанса при насыщении поглощения может сопровождаться эффектом самодефокусировки.

Нелинейное поглощение квантовых точек CdSe/ZnS при резонансном двухфотонном возбуждении

Применены два способа измерения нелинейного поглощения КТ CdSe/ZnS при резонансном возбуждении основного перехода $1S_{3/2}(h)-1S(e)$ и разрешенного только для двухфотонного процесса поглощения перехода $1P_{3/2}(h)-1S(e)$.

1. Измерение зависимости интенсивности лазерного импульса, прошедшего через образец S_T , от интенсивности входного импульса S_0 . Изменение интенсивности света при двухфотонном поглощении

$$\frac{dS}{dz} = -\alpha S - \beta_\Sigma S^2, \quad (5)$$

где α и β_Σ — коэффициенты линейного и нелинейного поглощения света соответственно. Коэффициент нелинейного поглощения $\beta_\Sigma \equiv \beta + \beta_c + \beta_{2\omega}$, где β — доминирующий коэффициент двухфотонного поглощения, β_c определяет линейное поглощение двухфотонно возбужденных носителей, а $\beta_{2\omega}$ обусловлен линейным поглощением возбужденных в КТ фотонов второй гармоники лазера [14].

Решение (5) можно представить в виде линейной зависимости S_0/S_T от S_0 :

$$\frac{S_0}{S_T} = \frac{e^{\alpha L}}{(1-R)^2} + \frac{\beta_\Sigma(e^{\alpha L}-1)}{\alpha(1-R)}S_0 \equiv A + B\beta_\Sigma S_0, \quad (6)$$

где L — толщина поглощающего образца (кварцевой кюветы с коллоидным раствором КТ) и R — ее коэффициент отражения. Таким образом, измеряемый наклон прямой (6) позволяет определить β_Σ .

2. Измерение трека фотолюминесценции (ФЛ) при резонансном двухфотонном возбуждении КТ (зависимости интенсивности фотолюминесценции от координаты z).

При умеренной интенсивности лазерного излучения, когда в одной КТ возбуждается менее одной электронно-дырочной пары (менее одного экситона)

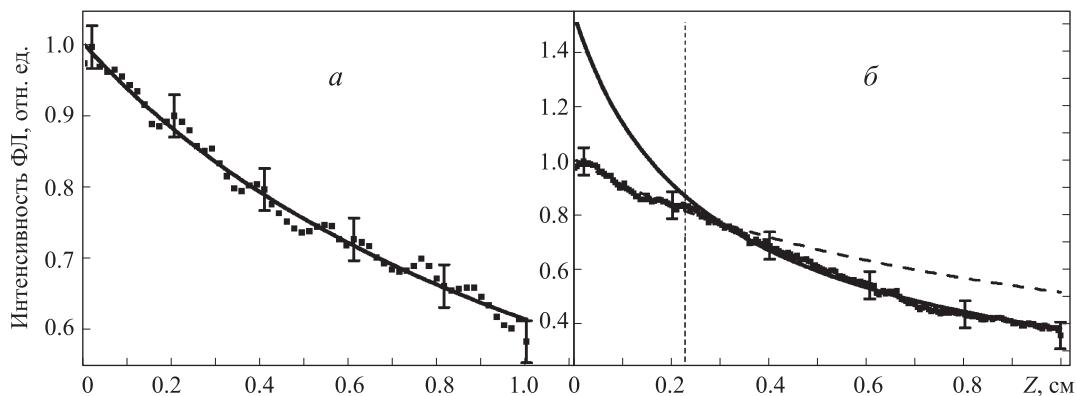


Рис. 5. Измеренные и рассчитанные зависимости интенсивности фотолюминесценции КТ CdSe/ZnS (концентрация 10^{17} см^{-3}) от продольной координаты для цуга импульсов с максимальной интенсивностью импульса 2 ГВт/см² (*а*) и 3 ГВт/см² (*б*)

и процессами заполнения состояний, безызлучательной оже-рекомбинацией и штарковским сдвигом экситонного перехода в наведенном электрическом поле можно пренебречь, интенсивность люминесценции $I(z)$ пропорциональна числу поглощенных фотонов (поглощенной энергии) в слое Δz :

$$I(z) \approx \tau [S(z) - S(z + \Delta z)], \quad (7)$$

где τ - длительность лазерного импульса. Таким образом, при $\Delta z \rightarrow 0$

$$I(z) \approx \tau \frac{\beta \Delta z S_0^2}{1 + 2\beta z S_0 + (\beta z S_0)^2}. \quad (8)$$

Измеренное отношение интенсивности ФЛ на расстоянии z_2 к интенсивности на расстоянии z_1

$$\frac{I(z_2)}{I(z_1)} = \frac{1 + 2\beta z_1 S_0 + (\beta z_1 S_0)^2}{1 + 2\beta z_2 S_0 + (\beta z_2 S_0)^2} \quad (9)$$

позволяет определить βS_0 и β в случае известного значения S_0 .

Нелинейное пропускание при двухфотонном резонансном возбуждении экситонов в коллоидном растворе квантовых точек CdSe/ZnS с концентрацией 10^{18} см $^{-3}$ измерялось путем сравнения мощности отдельных ультракоротких импульсов цуга (аксиальный период 7 нс) Nd:YAG-лазера на входе и выходе 1 мм кюветы. На рис. 4 представлена измеренная и рассчитанная по формуле (6) зависимость S_0/S_T от S_0 . При умеренной интенсивности накачки $S_0 < 18$ ГВт/см 2 (часть I на рис. 4) эта зависимость линейная и может быть аппроксимирована прямой (6). Проведенные оценки показывают, что при этой интенсивности в КТ возбуждается не более одной электронно-дырочной пары в отдельной КТ. Измеренное значение $A \equiv e^{\alpha L}/(1 - R)^2 \cong 1.10 \pm 0.05$. Отклонение экспериментальной зависимости от линейной при $S_0 > 18$ ГВт/см 2 (часть II на рис. 4), т. е. нелинейное увеличение пропускания, может быть связано с насыщением дискретных экситонных переходов за счет заполнения состояний в КТ CdSe/ZnS при резонансном двухфотонном возбуждении мощными лазерными пикосекундными импульсами. Кроме того, уменьшение поглощения может быть вызвано низкочастотным сдвигом экситонного перехода, обусловленным наведенным эффектом Штарка (внешнее поле может возникнуть при захвате дырок поверхностными изоэнергетическими состояниями

в коллоидных квантовых точках [12]). Тепловым (красным) смещением экситонного перехода при высоких уровнях возбуждения, по-видимому, можно пренебречь. По оценкам, он не превышает 5 мэВ. Кроме того, при уменьшении интенсивности возбуждающих импульсов цуга с аксиальным периодом 7 нс пропускание восстанавливалось.

Наклон прямой для части I рис. 4 позволяет вычислить β_Σ . Линейное поглощение на возбужденных носителях становится существенным лишь при более высокой интенсивности лазерного излучения на входе [15]. Обнаружить процесс генерации второй гармоники лазерного излучения, даже при использовании геометрии на отражение, нам не удалось, и, по-видимому, вкладом β_c и $\beta_{2\omega}$ в β_Σ можно пренебречь. Таким образом, коэффициент двухфотонного поглощения коллоидных квантовых точек CdSe/ZnS (с концентрацией 10^{18} см $^{-3}$) $\beta \cong \beta_\Sigma = (1.0 \pm 0.2)$ см/ГВт. Полученное значение β , сравнимое с величиной β для объемного полупроводника, позволило осуществить режим ограничителя интенсивности света на КТ [16].

На рис. 5 приведены измеренные и рассчитанные зависимости интенсивности ФЛ коллоидного раствора КТ CdSe/ZnS с концентрацией 10^{17} см $^{-3}$ (толщина кюветы 10 мм) от координаты для центральной части треков ФЛ при двухфотонном возбуждении для цуга возбуждающих импульсов с максимальной интенсивностью импульса 2 ГВт/см 2 (а) и 3 ГВт/см 2 (б). При использовании уравнений (6) и (7) учитывался вклад в ФЛ всех лазерных импульсов цуга (измерялась энергия каждого отдельного импульса цуга). Рассчитанное продольное уменьшение интенсивности ФЛ (рис. 5, а) согласуется с измеренным при $\beta = (0.23 \pm 0.02)$ см/ГВт.

Измеренная зависимость интенсивности ФЛ от координаты, приведенная на рис. 5, б, получена для цуга с высокой интенсивностью максимального импульса 3 ГВт/см 2 . Ее не удалось объяснить, используя уравнения (7) и (8). В начальной части I трека ФЛ происходит уменьшение интенсивности (тушение) ФЛ, по-видимому, из-за процессов безызлучательной оже-рекомбинации, заполнения состояний и Штарк-эффекта в КТ. Спад интенсивности ФЛ для участка II при уменьшенной интенсивности возбуждающего излучения позволил нам, используя уравнения (6) и (7), определить коэффициент двухфотонного поглощения: $\beta = (0.23 \pm 0.02)$ см/ГВт. Полученное значение β

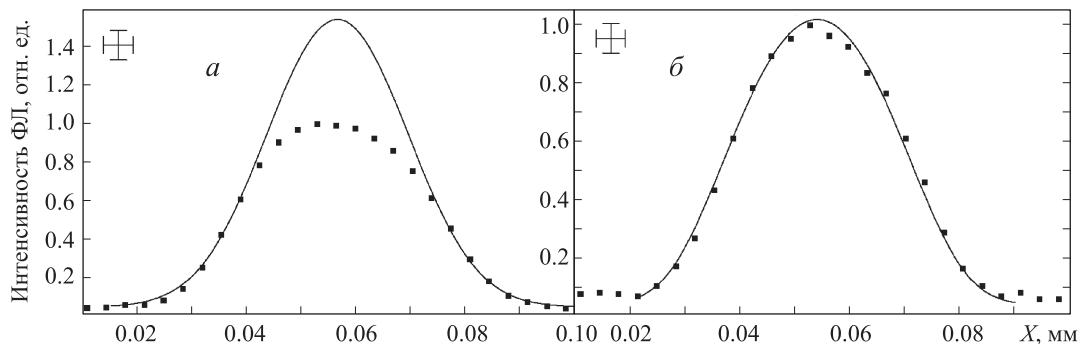


Рис. 6. Измеренный (точки) и рассчитанный профиль поперечного сечения трека ФЛ КТ CdSe/ZnS для продольной координаты $z = 0.1$ см (а) и 0.9 см (б) для цуга возбуждающих импульсов с максимальной интенсивностью импульса 3 ГВт/см 2

совпадает с измеренным при использовании трека, приведенного на рис. 5, а.

Тушение ФЛ экситонов в КТ при высоких уровнях возбуждения вызывает изменение распределения интенсивности ФЛ в поперечном направлении треков ФЛ КТ. При умеренной интенсивности возбуждающих импульсов измеренные и рассчитанные профили интенсивности ФЛ для различных продольных координат совпадают (рис. 6). При высоких уровнях накачки тушение ФЛ в начальной части трека, по-видимому, можно объяснить процессами оже-рекомбинации, заполнения состояний и длинноволновым сдвигом экситонного перехода в КТ из-за эффекта Штарка.

Заключение

Выявлены физические явления, ответственные за обнаруженные особенности нелинейного поглощения при резонансном одно- и двухфотонном возбуждении основного экситонного перехода в коллоидном растворе квантовых точек CdSe/ZnS мощными пикосекундными импульсами лазера.

В случае резонансного однофотонного возбуждения:

1) замедление темпа увеличения пропускания и даже уменьшение пропускания коллоидного раствора квантовых точек при высоких уровнях возбуждения объяснено доминирующим процессом заполнения состояний (насыщением) двухуровневой системы с зависящим от интенсивности света (уменьшающимся из-за безызлучательной оже-рекомбинации) временем жизни возбужденного состояния;

2) френелевская или фраунгоферовская самодифракция луча лазера, прошедшего через кювету с коллоидным раствором квантовых точек, обусловлена формированием канала прозрачности и наведенной диафрагмы в результате эффектов заполнения состояний и «обидрания» (strip effect) луча.

В случае резонансного двухфотонного возбуждения:

1) обнаруженное замедление роста нелинейного поглощения при высоких уровнях возбуждения можно объяснить влиянием процесса заполнения состояний в квантовых точках и штарковским сдвигом экситонного перехода наведенным электрическим полем;

2) возникающее уменьшение интенсивности люминесценции квантовых точек при высоких уровнях возбуждения, причиной которого могут быть процессы заполнения состояний, безызлучательная оже-рекомбинация и Штарк-эффект экситонов, необходимо учитывать при измерении нелинейного поглощения по трекам фотoluminesценции (по зависимости интенсивности люминесценции от расстояния).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант 11-02-00424).

Список литературы

1. Nonlinear Photonics / Ed. by H. M. Gibbs, G. Khitrova, N. Peyghambarian. Berlin, 1990.
2. Клышико Д.Н. Физические основы квантовой электроники. М., 1986.
3. Park S.H., Casey M.P., Falk J. // J. Appl. Phys. 1993. **73**, N 12. P. 8041.
4. Park S.H., Morgan R., Lindberg M. et al. // J. Opt. Soc. Am. 1990. **B 7**, N 10. P. 2097.
5. Chepic D., Efros A.L., Ekimov A. et al. // J. Luminescence. 1990. **47**, N 3. P. 113.
6. Kharachenko V.A., Rosen M. // J. Luminescence. 1996. **70**, N 1–6. P. 158.
7. Dneprovskii V., Efros A., Ekimov A. et al. // Solid State Commun. 1990. **74**, N 7. P. 555.
8. Днепровский В.С., Жуков Е.А., Козлова М.В. и др. // ФТТ. 2010. **5**, № 9. С. 1941.
9. Ekimov A.I., Hashe F., Schanne-Klein M.C. et al. // J. Opt. Soc. Am. 1993. **B 10**, N 1. P. 100.
10. Selden A.C. // BRIT. J. APPL. PHYS. 1967. **18**, N 6. P. 743.
11. Амбарцумян Р.В., Басов Н.Г., Зуев В.С. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1966. **4**, № 2. С. 19.
12. Norris D., Sacra A., Murray C., Bavendi M. // Phys. Rev. Lett. 1994. **72**, N 16. P. 2612.
13. Derbov V.L., Melnikov L.A., Novikov A.D., Potapov S.K. // J. Opt. Soc. Am. 1990. **B 7**, N 6. P. 1079.
14. Арсеньев В.В., Днепровский В.С., Клышико Д.Н., Пенгин А.Н. // ЖЭТФ. 1969. **56**, № 3. С. 760.
15. Днепровский В.С., Жуков Е.А., Кабанин Д.А. и др. // ФТТ. 2007. **49**, № 2. С. 366.
16. Dneprovskii V., Kabanin D., Lyascovskii V. et al. // Phys. Stat. Sol. (c). 2008. **5**, N 7. P. 2507.

The features of nonlinear absorption at resonant one- and two-photon excitation of the basic exciton transition in CdSe/ZnS colloidal quantum dots

V. S. Dneprovskii^{1,a}, E. A. Zhukov^{1,b}, M. V. Kozlova¹, A. M. Smirnov¹, T. Wumaier²

¹Department of Semiconductor Physics, Faculty of Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

²Xinjiang Technical Institute of Physics and Chemistry, CAS, China.

E-mail: ^at-vdnepr@rambler.ru, ^beazhukov@bk.ru.

The nonlinear absorption features of colloidal CdSe/ZnS quantum dots have been revealed in the case of resonant one- and two-photon excitation of the basic electron-hole (exciton) transition by powerful picosecond laser pulses. In the case of one-photon excitation the discovered decreasing of absorption (bleaching) at moderate input intensities is substituted by retardation of bleaching rate and even by increasing of absorption. The latter has been explained by saturation (state-filling) effect of two-level system with excited state lifetime depending upon the intensity of laser excitation. The arising Fresnel or Fraunhofer diffraction of the laser beam penetrated through the colloidal solution of quantum dots of high density is associated with formation of transparency channel and self-diffraction at induced aperture. In the case of two-photon excitation the features of nonlinear absorption and luminescence traces

(the dependence of luminescence intensity upon distance) have been explained by the influence of the processes that are responsible for the nonlinear absorption rate slowing down and for luminescence extinction at high laser excitation besides dominating two-photon absorption.

Key words: nonlinear absorption, quantum dot, exciton.

PACS: 42.65.-k, 73.21.La.

Received 2 December 2011.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 2(2012).

Сведения об авторах

1. Днепровский Владимир Самсонович - докт. физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой; тел.: (495) 939-37-31; e-mail: t-vdnepr@rambler.ru.
2. Жуков Евгений Алексеевич — докт. физ.-мат. наук., ст. науч. сотрудник, доцент; тел.: (495) 939-50-72; e-mail: eazhukov@bk.ru.
3. Козлова Мария Владимировна — аспирантка; тел.: (495) 939-50-72; e-mail: marija-kozlova@yandex.ru.
4. Смирнов Александр Михайлович — аспирант; тел.: (495) 939-50-72; e-mail: hieroglifics@mail.ru.
5. Tuerdi Wumaier — канд. физ.-мат. наук, профессор; тел.: +86 (991) 383 55 79; e-mail: turdiumar@hotmail.com.