

CdTe量子点的室温激子自旋弛豫动力学*

朱孟龙¹⁾ 董玉兰¹⁾ 钟海政²⁾ 何军^{1)†}

1)(中南大学物理与电子学院, 先进材料超微结构与超快过程研究所, 超微结构与超快过程湖南省重点实验室, 长沙 410083)

2)(北京理工大学材料学院, 北京 100081)

(2014年2月16日收到; 2014年4月14日收到修改稿)

利用交叉偏振三阶非线性瞬态光栅技术, 研究了室温下 CdTe 胶体量子点激子自旋弛豫动力学的尺寸效应. 在抽运-探测光子能量与 CdTe 量子点的最低激子吸收 ($1S_e-1S_h$) 跃迁相共振时, 量子点激子自旋弛豫显示了时间常数为 0.1—0.5 ps 的单指数衰减行为. CdTe 量子点激子自旋的快速弛豫源于亮暗激子精细结构态跃迁, 即 $J = \pm 1 \longleftrightarrow \mp 2$ 跃迁. 激子自旋弛豫主要由空穴的自旋翻转过程决定. 研究表明: CdTe 量子点激子自旋弛豫速率与量子点尺寸的 4 次方成反比.

关键词: 激子自旋弛豫, CdTe 量子点, 瞬态光栅技术

PACS: 72.25.Fe, 72.25.Rb, 73.21.La

DOI: 10.7498/aps.63.127202

1 引言

由于在自旋器件与量子计算领域的潜在应用背景, 半导体量子点自旋相关的效应最近引起越来越多的关注^[1-5]. 由于三维量子限域效应极大地抑制了自旋弛豫过程, 因此量子点的自旋相干时间可以由量子点的尺寸来调节^[6,7]. 有报道称量子点在量子限域区具有比对应的块体材料长得多的自旋弛豫寿命^[3]. 被广泛研究的自组装量子点由于应力作用通常具有形状非对称性. 随着量子点对称性的降低, 简并的亮激子态混合、劈裂成正交的光学活跃的两个单激子态 $|X\rangle = (|+1\rangle + |-1\rangle)/(i\sqrt{2})$ 和 $|Y\rangle = (|+1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$. 而化学合成的胶体量子点形状接近球形且保持了较高的对称性, 因此两个亮激子态 $|\pm 1\rangle$ 是哈密顿量的简并本征态. 随着化学制备技术的发展, CdTe 胶体纳米晶现在具有窄的尺寸分布、近似球形和高品质的表面钝化^[8-11]. 尽管 CdSe 纳米晶的尺寸可调性质已被广泛研究, 由于纳米晶在溶液或薄膜中的

随机取向性, 胶体纳米晶量子点自旋动力学的研究要比自组装量子点少得多^[12,13]. 利用飞秒时间分辨法拉第旋转技术测量得到的透明介质中, CdSe 量子点自旋弛豫时间为几百皮秒到纳秒量级^[6]. 最近加拿大 Scholes 课题组的研究结果表明: 交叉偏振非线性瞬态光栅技术^[14,15] 可以克服胶体纳米晶的随机取向问题对纳米晶激子自旋弛豫动力学进行研究^[16-20]. 溶液中 CdSe 胶体纳米晶的激子自旋弛豫寿命测量为皮秒甚至亚皮秒量级, 取决于纳米晶的尺寸与形状^[20].

当量子点的尺寸与激子玻尔半径可比拟时, 电子与空穴的三维局域导致能态的量子化^[21]. 由于电子-空穴交换作用和晶体场劈裂效应, 量子化能态混合形成激子精细结构^[22]. 根据计算, 立方晶型 CdTe 量子点的带边激子精细结构由 8 个态组成 (忽略 split-off 态), 包含 3 个光学活跃态 (亮激子) 和 5 个光学非活跃态 (暗激子), 由于电子-空穴交换作用退简并形成两个能级, 如图 1. 激子自旋弛豫可以理解为激子精细结构能态间跃

* 国家自然科学基金 (批准号: 61222406, 11174371)、湖南省自然科学基金 (批准号: 12JJ1001)、高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20110162120072)、教育部新世纪优秀人才支持计划 (批准号: NCET-11-0512) 和中央高校基本科研业务费资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: junhe@csu.edu.cn

迁^[20]. CdS球形量子点激子自旋弛豫动力学研究表明激子自旋弛豫有两类主要机制: 一个是激子直接自旋翻转(空穴自旋翻转而电子自旋取向不变); 另一个是间接自旋翻转(空穴与电子分别独立地翻转)^[23]. 通常认为直接自旋反转过程由电子-空穴交换作用的长程项驱动^[24], 而间接自旋反转则由量子点中强的自旋-轨道耦合决定^[25]. 本文利用交叉偏振三阶非线性瞬态光栅技术研究了不同尺寸CdTe胶体纳米晶量子点的自旋弛豫动力学过程, 发现激子自旋弛豫速率与尺寸的4次方成反比, 这一结果与CdSe^[20,26]胶体纳米晶的自旋弛豫过程相一致, 进一步表明间接自旋翻转过程由Dresselhaus自旋-轨道耦合效应决定.

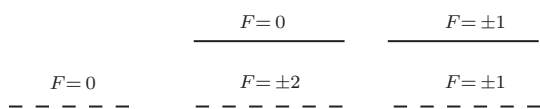


图1 CdTe量子点最低激子态的激子精细结构示意图

2 实验

2.1 样品制备

CdTe胶体量子点样品是使用液相化学技术合成的^[10]. 所有的样品都经过连续沉淀法的清洗, 通过离心分离、去掉上层清液和再分散在甲苯中隔离沉淀, 重复至少三次. 量子点样品为立方晶型, 形状近似球形^[10].

2.2 吸收光谱表征

CdTe胶体量子点样品吸收光谱曲线如图2所示. 量子点的平均尺寸及尺寸分布可以根据第一激子吸收峰的位置及峰宽来估算. 吸收峰的位置及峰宽可以利用高斯函数拟合方法得到^[27]. 利用完全势平面波展开紧束缚近似(FP-LAPW)方法^[28], 可以从第一激子吸收峰中心位置计算得到对应量子点样品的平均半径, 如图3所示. 本项研究所使用的CdTe量子点样品(QD1—QD5)的平均半径分别为2.47, 2.17, 2.15, 1.95和1.74 nm. 更多的光学表征可以查阅相关文献^[10].

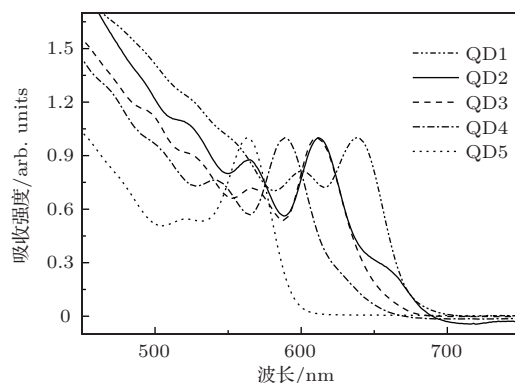


图2 CdTe量子点样品的归一化吸收光谱

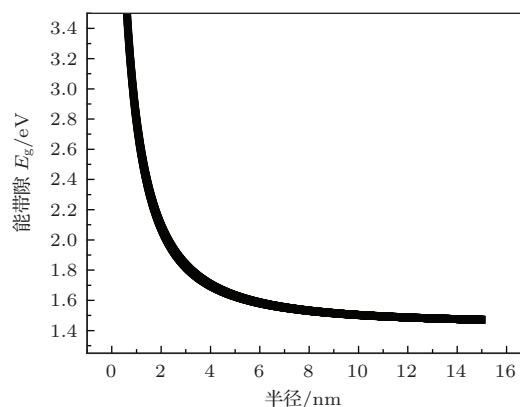


图3 CdTe量子点的FP-LAPW计算

2.3 瞬态光栅光谱表征

CdTe胶体量子点的激子自旋翻转速率可以通过交叉偏振外差三阶非线性瞬态光栅(CPH-3TG)技术进行测量, 实验装置如图4. 激光光源为Spectra-Physics公司飞秒激光再生放大器系统(飞秒振荡器Mai Tai SP、再生放大器Spitfire ACE-35F-2KXP、抽运激光器Empower 30)抽运的光学参量放大器(TOPAS-USF-UV2), 脉冲重复频率为2 kHz, 脉冲宽度为42 fs. 实验中使用不同偏振组合的4个超短相干激光脉冲: 位相共轭抽运脉冲对、探测光和局域震荡光(LO). 激光波长选择与量子点第一激子吸收峰位置相对应. 通常的双光束干涉会产生光强的干涉条纹, 进而产生载流子密度的空间调制, 此时互相干涉的两束线偏振激光的偏振方向是平行的. 当两束交叉线性偏振光脉冲成一定夹角入射到样品上时, 光强的空间分布是均匀的, 但是偏振态在空间上周期性变化. 在一个周期中由左旋圆偏振光过渡到线偏振光再到右旋圆偏振光再到线偏振光. 由于电偶极跃迁选择定则, 偏振态的周期性变化会产生自旋极化的空间调制, 这被称

之为自旋光栅.

假如每个量子点的晶体 C 轴平行, 根据半导体纳米晶量子点的光学选择定则, 自旋光栅变成了在 $F = +1$ 和 $F = -1$ 之间的角动量投影模式. 事实上, 溶液样品中的量子点取向是完全随机的, 其自旋翻转过程可以通过基于旋转平均近似理论的 CPH-3TG 技术来测量^[14-17]. 时间延迟的探测脉冲被自旋光栅衍射到第 4 方向形成三阶非线性辐射信号. 三阶非线性辐射场与同一方向的 LO 脉冲发生干涉, 其信号电场幅度可以被相敏检测(外差检测). CPH-3TG 的瞬态自旋光栅信号衰减是由于激子精细结构弛豫导致的, 发生在激子精细结构态间的一些跃迁包含了总角动量符号的变化, 也就是激子自旋翻转(从 $+$ 变成 $-$, 反之亦然). 在本实验中, 我们测量了偏振组合为 VVVV, VHVH 和 VHHV 的瞬态光栅衰减信号, 其中 V 和 H 分别对应于垂

直和水平的线性偏振光. VVVV 实验测量的是载流子弛豫动力学过程, 而 VHVH 和 VHHV 实验测量自旋光栅的衰减过程. 所有的测量都是在室温下进行的, CdTe 量子点分散在甲苯溶剂中, 激光脉冲波长调节到与量子点样品的最低激子跃迁能量相共振, 样品浓度保持在光学密度为 0.3 左右. 激发光强减弱到平均每个量子点产生少于 1 个激子, 目的是为了避开高阶非线性效应、多激子过程、俄歇效应和热光栅效应的影响. 当时间延迟的探测脉冲到达量子点样品时, 自旋翻转激子辐射的三阶非线性信号与保持自旋取向的激子辐射的信号之间位相相差 π , 干涉相消. 当总的非线性信号强度衰减为零时, 自旋翻转和保持自旋取向不变的激子数量是相等的. 因此, CPH-3TG 实验能够通过测量自旋光栅信号的衰减监控量子点激子自旋的翻转过程^[20].

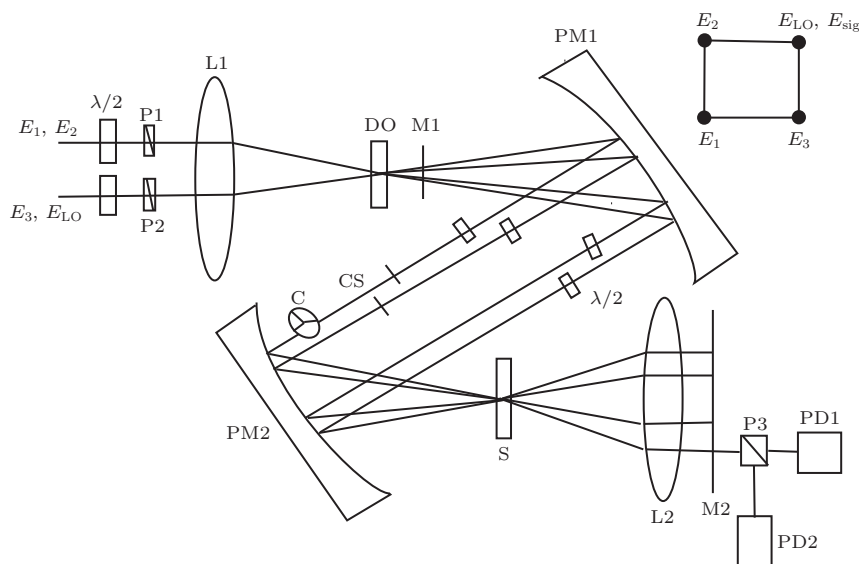


图 4 交叉偏振外差三阶非线性瞬态光栅实验装置 $\lambda/2$, 半波片; P, 偏振片; L, 透镜; DO, 衍射光学单元; M, 遮光板; PM, 抛物反射镜; CS, 盖玻片; C, 斩波器; S, 样品; PD, 光电探测器

3 实验结果与讨论

CPH-3TG 实验采集了不同尺寸 CdTe 量子点样品在 VVVV, VHVH 和 VHHV 偏振组合的信号. 外差法能够分别测量三阶非线性极化率的实部(折射)和虚部(吸收)分量. 我们只对吸收部分进行了检测和分析.

VVVV 的 CPH-3TG 实验用来观测激子弛豫动力学过程, 这与从抽运-探测实验获得的信息

是一致的. VVVV 实验曲线包含了与激子复合和表面陷阱俘获动力学有关的多个过程的信息. 交叉偏振的 VHVH 和 VHHV 实验信号衰减主要是由激子自旋翻转过程决定的, 激子弛豫动力学构成了整个信号的一部分但是时间尺度要比激子自旋翻转动力学过程更长一些. 虽然 VHVH 和 VHHV 信号包含了相似的激子自旋翻转信息, 但是因为这两个偏振组合的旋转平均因子的符号相反, 因此信号的符号也相反, 分别对应正的 VHVH 和负的 VHHV 激子自旋翻转贡献^[14]. CPH-3TG 实验表现为自旋

翻转和自旋保持不变的激子辐射位相相差 π 的三阶非线性信号^[14],

$$I_{\text{HET}}(t_p) \propto \int_0^\infty dt \text{Re}\{E_{\text{LO}}^*(t_p, \Delta\phi) P^3(0, t_p, t) \times [C(n_C^{+1} + n_C^{-1}) + C'(n_F^{+1} + n_F^{-1})]\}, \quad (1)$$

式中 C 和 C' 分别表示自旋保持不变和自旋翻转激子对应的旋转平均因子, t_p 为抽运光与探测光的时间差. 对于VHVH (VHHV)信号, $C = 2/15(-2/15)$ 和 $C' = -2/15(2/15)$ ^[14]. 对于VVVV信号则有 $C = C' = 1/5$, 因此VVVV的CPH-3TG实验信号不包含激子自旋翻转动力学过程. 此外, CPH-3TG实验使用的是线性偏振组合, 这意味着激子也可以被激发到 $F = 0$ 的能态. $F = 0$ 能态的激子不能直接对激子自旋翻转速率做出贡献, 但是可以导致CPH-3TG信号在较长延迟时间的正向偏移^[16,20].

5种不同尺寸CdTe量子点代表性的VVVV, VHVH和VHHV偏振组合的CPH-3TG实验测量信号如图5所示, 同时比较了量子点样品在不同时间尺度的弛豫行为. 其中VHVH和VHHV实验曲线的快速衰减部分对应于激子自旋弛豫动力学过程, 显然不同尺寸的量子点样品具有不同的激子自旋翻转速率. 周期小于2 ps的震荡与纵向光学声子模式有关, 这种模式出现在所有的数据中, 对应频率为 2.6 cm^{-1} ^[17].

VVVV偏振组合的CPH-3TG实验信号可以利用三指数函数进行拟合. CdTe量子点激子复合寿命在100 ps量级, 与表面陷阱俘获相关的动力学过程对应的时间尺度为亚皮秒到几个皮秒, 这与CdSe量子点的结果一致^[20]. 瞬态光栅实验所用的激光脉冲宽度约为30 fs, 能够分辨各种与激子相关的动力学过程. 结合VVVV实验曲线分析VHVH和VHHV实验数据, 既可以得到激子的布居数弛豫过程, 也能够获得激子自旋翻转动力学信息^[16]. VHVH和VHHV实验数据可以利用下面的指数函数进行拟合^[17,20]:

$$I_{\text{VHVH, VHHV}}(t_p) = [A_1 \exp(-2k_s t_p) + A_2] I_{\text{VVVV}}(t_p), \quad (2)$$

其中 k_s 是激子的自旋翻转速率; I_{VVVV} 是VVVV瞬态光栅实验信号; A_1 和 A_2 分别代表激子自旋翻转与缺陷俘获、激子复合过程对CPH-3TG信号的贡献.

CdTe量子点对应偏振组合VVVV, VHVH和VHHV的实验数据拟合结果如表1和表2所示.

研究工作表明, 尺寸较大量子点的精细结构弛豫过程可能更为复杂. 大尺寸CdTe量子点由于能级间距较小, 有可能涉及较高能级激子精细结构态的弛豫过程^[20], VHVH和VHHV偏振组合CPH-3TG信号因包含多个自旋翻转过程而有可能无法用单指数函数拟合. 表3列举了不同尺寸CdTe量子点样品的第一激子吸收峰、样品半径和激子平均自旋弛豫速率.

激子平均自旋弛豫速率 \bar{k}_s 是由VHVH和VHHV拟合结果取平均得到的, 不同尺寸量子点样品具有不同的自旋弛豫速率. 图6表明CdTe量子点激子的自旋弛豫速率遵从 R^{-4} 的尺寸依赖性. 已报道的研究结果表明, 立方结构CdSe量子点的激子精细结构弛豫与 $F = +1(-1)$ 到 $F = -2(+2)$ (空穴自旋翻转)的跃迁过程有关, 且遵循 R^{-4} 的尺寸依赖性^[20]. 这表明CdTe量子点很可能存在类似的空穴自旋翻转过程.

CdTe量子点没有反演对称性, 其激子自旋翻转速率的 R^{-4} 依赖性很可能与强的自旋-轨道耦合有关. 由于Dresselhaus效应, 自旋-轨道相互作用耦合了 $F = +1(-1)$ 和 $F = -2(+2)$ 激子精细结构能态. 根据费米黄金定则, $F = +1(-1)$ 到 $F = -2(+2)$ 跃迁有关的自旋弛豫速率可以描述为

$$k_s = \left(\frac{2\pi}{\hbar}\right) |M|^2 \rho_f, \quad (3)$$

ρ_f 表示最终能态的密度, M 是从 $F = +1(-1)$ 到 $F = -2(+2)$ 态的电偶极跃迁矩阵元. Dresselhaus效应的结果是 $M \propto 1/a^2$, a 是激子半径. 因此 k_s 的数值正比于 $1/a^4$. 根据已知的激子精细结构弛豫动力学模型, 由于总角动量没有发生改变, 较高的 $F = +1(-1)$ 与较低的 $F = +1(-1)$ 能态间的跃迁非常迅速^[20]. 室温下CdTe量子点的激子精细结构能级间距在几十毫电子伏能量范围, 与声子的耦合可以导致跃迁的迅速发生. 此外, 由于总角动量没有改变, $F = +1(-1)$ 能态间的跃迁对于CPH-3TG信号没有直接贡献. 因此我们可以假定激子自旋弛豫动力学是与从 $F = +1(-1)$ 能态跃迁到 $F = -2(+2)$ 能态有关, 跃迁过程中总角动量符号发生了改变, 这与先前报道的分析CdSe量子点激子自旋弛豫动力学过程相一致^[20].

CdTe量子点激子自旋弛豫速率的变化可以通过量子点尺寸差异产生的精细结构态之间的耦合变化来理解, 有两种可能的作用机制: Dresselhaus

效应和能量守恒. 对于第一点, Dresselhaus效应取决于晶体结构的对称性^[29], 这可以解释观察到的不同尺寸CdTe量子点激子自旋弛豫速率间的差

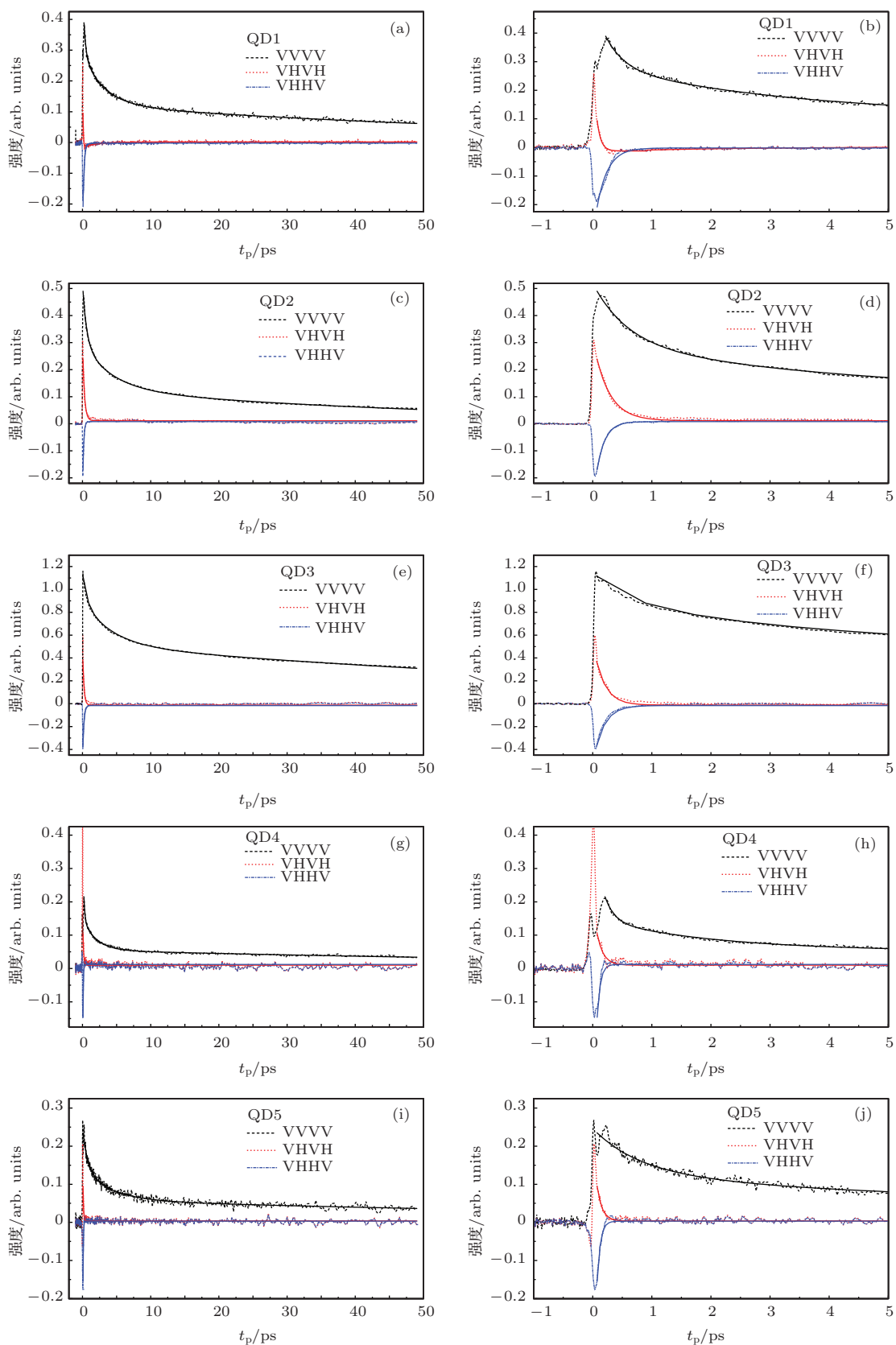


图5 QD1—QD5量子点样品在偏振组合 VVVV, VHVH 和 VHHV 的三阶外差非线性瞬态光栅信号曲线, 为图示清楚, 给出了同一样品在不同时间尺度下的信号曲线

异. 另一方面, CdTe 量子点是各向异性的, 晶格常数 $a = b \neq c$. Dresselhaus 效应的对称性依赖可能影响态混合较弱的 $F = +1(-1)$ 与 $F = -2(+2)$ 能态间的耦合因子, 造成不同尺寸量子点的不同混合, 态混合强会导致激子自旋弛豫更快速. 对于第

二点, 由于 CdTe 量子点激子精细结构能级的简并性较大, 较低的 $F = \pm 1$ 与 $F = \pm 2$ 能态在能量上非常接近. 由于形状不对称性和其他的扰动, 能态间的间距不可能完全为零, 这将造成自旋弛豫动力学过程有可能通过与声子谱的耦合来发生.

表 1 VVVV 实验数据的拟合结果

	A_1	t_1/ps	A_2	t_2/ps	A_3	t_3/ps
QD1	0.223	0.306	0.168	3.06	0.124	70.2
QD2	0.220	0.584	0.171	4.28	0.129	55.3
QD3	0.527	0.606	0.245	2.61	0.237	96.9
QD4	0.267	0.161	0.0960	1.95	0.0551	101
QD5	0.107	0.751	0.0811	4.15	0.0588	103

表 2 VHVH 和 VHHV 实验数据的拟合结果

	VHVH			VHHV		
	A_1	k_s/ps^{-1}	A_2	A_1	k_s/ps^{-1}	A_2
QD1	-0.0169	0.225	0.00198	-0.312	2.74	-0.00192
QD2	0.303	1.93	0.0112	-0.302	3.59	0.00781
QD3	0.543	2.77	-0.0119	-0.510	2.84	-0.0160
QD4	0.192	4.73	0.0100	-0.730	9.19	0.00190
QD5	0.215	5.74	0.00375	-0.634	9.21	0.00313

表 3 各量子点样品的相关数据

样品	QD1	QD2	QD3	QD4	QD5
第一激子吸收峰波长/nm	639	612	610	589	563
第一激子吸收峰能量/eV	1.941	2.026	2.033	2.105	2.202
样品半径/nm	2.47	2.17	2.15	1.95	1.74
激子平均自旋弛豫速率/ ps^{-1}	1.48	2.75	2.81	6.96	7.47

由于自旋弛豫速率依赖于量子点的类型(自组装、胶体、带电的或是中性的)、载流子的类型(电子、空穴、激子等)、温度、外部扰动(磁场、电场)等, 因此观察到的自旋弛豫速率间有很大的差别, 这使得不同研究成果直接进行比较很困难^[30-32]. 通常在较低的温度和零磁场中, 自组装量子点的电子自旋弛豫时间基本确定在几百皮秒到纳秒之间. 与电子不同, 量子点价带空穴波函数具有 p 型布洛赫函数形式, 这导致其在原子核位置的出现概率趋于零, 从而极大地抑制了空穴自旋与核自旋之间的接触型超精细相互作用, 导致空穴有可能具有比电子更长的自旋退相干时间^[33]. 与此同时, 在量子点中由于

空间限域产生的强量子化减小了重空穴与轻空穴的态混合效应, 空穴的自旋-轨道耦合以及空穴自旋与声子间的相互作用都减弱了, 自旋-轨道调节的单声子散射过程基本上被抑制^[34]. Warburton 及其合作者^[12,13] 的实验研究证实: InGaAs 自组装量子点中空穴自旋是高度相干的, 单个空穴的退相干时间在液氢温度下可以长达约 500 ns(磁场条件为 3 T). 但是, 用 CPH-3TG 技术测量的激子自旋弛豫速率主要源于亮态 $F = +1(-1)$ 与暗态 $F = -2(+2)$ 间的跃迁, 强的激子效应会导致自旋弛豫加快, 空穴的自旋翻转过程居主导地位. 考虑到实验是在室温下和有强限域效应的 CdTe 量子点

中进行, 观察到的激子自旋弛豫速率在几百飞秒到几个皮秒范围内是合理的. 利用CPH-3TG技术可以忽略尺寸的非均匀分布, 通过不同偏振组合选择性地测量胶体量子点激子的自旋弛豫动力学过程^[14], 这与广泛使用的时间分辨法拉第旋转技术(TRFR)不同^[1-3,6]. TRFR测量信号显示了多指数衰减过程, 其测量得到的导带电子自旋弛豫时间长达约10 ns^[6]. 由于圆偏振光的跃迁选择定则在大量随机取向的量子点中表现不明确, 所以每个衰减成分的来源也没有明确的归属, 这与CPH-3TG技术采用旋转平均近似方法形成了对比^[14].

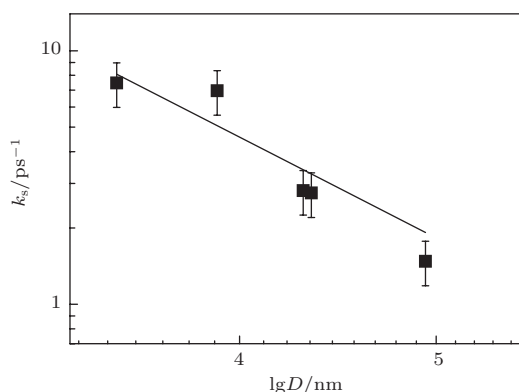


图6 激子自旋弛豫速率与量子点直径 D 的关系, 正方形对应于 CdTe 量子点测得的自旋弛豫速率, 实线是 R^{-4} 函数拟合

4 结 论

利用交叉偏振三阶非线性瞬态光栅技术室温下测量了不同尺寸 CdTe 量子点的激子自旋弛豫速率. 实验发现激子自旋弛豫速率遵循量子点尺寸 4 次方反比依赖关系. 研究表明激子自旋弛豫与激子精细结构态 $F = +1(-1)$ 和 $F = -2(+2)$ 之间的跃迁有关, 主要取决于 Dresselhaus 效应引起的自旋-轨道耦合相互作用.

感谢加拿大多伦多大学 Gregory Scholes 教授提供的实验技术支持与帮助.

参考文献

- [1] Gupta J A, Knobel R, Samarth N, Awschalom D D 2001 *Science* **292** 2458
- [2] Ouyang M, Dabid D, Awschalom D D 2003 *Science* **301** 1074
- [3] Ramsay A J 2010 *Semi. Sci. Technol.* **25** 103001
- [4] Tong H, Wu M W 2011 *Phys. Rev. B* **83** 235323
- [5] Ma S S, Dou X M, Chang X Y, Sun B Q, Xiong Y H, Niu Z C, Ni H Q 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 117201
- [6] Gupta J A, Awschalom D D, Peng X, Alivisatos A P 1999 *Phys. Rev. B* **59** R10421

- [7] Tartakovskii A I, Cahill J, Makhonin M N, Whittaker D M, Wells J P R, Fox A M, Mowbray D J, Skolnick M S, Groom K M, Steer M J, Hopkinson M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 057401
- [8] Nair P S, Fritz K P, Scholes G D 2004 *Chem. Comm.* **18** 2084
- [9] Yu W W, Qu L H, Guo W Z, Peng X G 2003 *Chem. Mater.* **15** 2854
- [10] Zhong H Z, Nagy M, Jones M, Scholes G D 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 10465
- [11] An L M, Yang Y Q, Song W S, Su W H, Zeng Q H, Chao K F, Kong X G 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7914 (in Chinese) [安利民, 杨延强, 宋维斯, 苏文辉, 曾庆辉, 朝克夫, 孔祥贵 2009 物理学报 **58** 7914]
- [12] Gerardot B D, Brunner D, Dalgarno P A, Ohberg P, Seidl S, Kroner M, Karrai K, Stoltz N G, Petroff P M, Warburton R J 2008 *Nature* **451** 441
- [13] Brunner D, Gerardot B D, Dalgarno P A, Wust G, Laraai K, Stoltz N G, Petroff P M, Warburton R J 2009 *Science* **325** 70
- [14] Scholes G D, Kim J, Wong C Y 2006 *Phys. Rev. B* **73** 195325
- [15] Huxter V M, Kim J, Lo S S, Lee A, Nair P S, Scholes G D 2010 *Chem. Phys. Lett.* **491** 187
- [16] Kim J, Wong C Y, Nair P S, Fritz K P, Kumar S, Scholes G D 2006 *J. Phys. Chem. B* **110** 25371
- [17] Scholes G D, Kim J, Wong C Y, Huxter V M, Nair P S, Fritz K P, Kumar S 2006 *Nano Lett.* **6** 1765
- [18] He J, Zhong H Z, Scholes G D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 046601
- [19] He J, Lo S S, Kim J, Scholes G D 2008 *Nano Lett.* **8** 4007
- [20] Wong C Y, Kim J, Nair P S, Nagy M C, Scholes G D 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 795
- [21] Brus L E 1984 *J. Chem. Phys.* **80** 4403
- [22] Efros A L, Rosen M, Kuno M, Nirmal M, Norris D J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 4843
- [23] Nahalkova P, Sprinzl D, Maly P, Nemecek P, Gladilin V N, Devreese J T 2007 *Phys. Rev. B* **75** 113306
- [24] Pikus G E, Bir G L 1971 *Sov. Phys. JETP* **33** 108
- [25] Vinattieri A, Shah J, Damen T C, Kim D S, Pfeiffer L N, Maialle M Z, Sham L J 1994 *Phys. Rev. B* **50** 10868
- [26] Ma H, Jin Z, Zhang Z, Li G, Ma G 2012 *J. Phys. Chem. A* **116** 2018
- [27] He J, Ji W, Ma G H, Tang S H, Elim H L, Sun W X, Zhang Z H, Chin W S 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 6381
- [28] Viswanatha R, Sapra S, Saha-Dasgupta T, Sarma D D 2005 *Phys. Rev. B* **72** 045333
- [29] Atature M, Dreiser J, Badolato A, Hogege A, Karrai K, Imamoglu A 2006 *Science* **312** 551
- [30] Gupta J A, Awschalom D D, Efros A L, Rodina A V 2002 *Phys. Rev. B* **66** 125307
- [31] Gundogdu K, Hall K C, Koerperick E J, Pryor C E, Flatte M E, Boggess T F 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 113111
- [32] Hall K C, Koerperick E J, Boggess T F, Shchekin O B 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 053109
- [33] Fischer J, Loss D 2009 *Science* **324** 1277
- [34] Kolodrubetz M H, Petta J R 2009 *Science* **325** 42

Exciton spin relaxation dynamics in CdTe quantum dots at room temperature*

Zhu Meng-Long¹⁾ Dong Yu-Lan¹⁾ Zhong Hai-Zheng²⁾ He Jun^{1)†}

1) (Hunan Key Laboratory for Super-Microstructure and Ultrafast Process, Institute of Super-Microstructure and Ultrafast Process in Advanced Materials, School of Physics and Electronics, Central South University, Changsha 410083, China)

2) (School of Materials Science and Engineering, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

(Received 16 February 2014; revised manuscript received 14 April 2014)

Abstract

Size-dependent exciton spin relaxation dynamics in CdTe colloidal quantum dots is studied at room temperature with the cross-polarized heterodyne third-order nonlinear transient grating technique. The CdTe exciton spin relaxation reveals a mono-exponential decay behavior with a time constant of 0.1–0.5 ps when the pump-probe photon energy is tuned to be in resonance with the lowest exciton absorption transition ($1S_e-1S_h$). The exciton spin relaxation in quantum dot is mainly governed by the hole spin flip process and ascribed to the transitions between bright-dark exciton fine structure states, i.e. $J = \pm 1 \leftrightarrow \mp 2$. This finding suggests that the exciton spin relaxation rate in CdTe quantum dot is inversely proportional to the fourth power of quantum dot size.

Keywords: exciton spin relaxation, CdTe quantum dots, transient grating technique

PACS: 72.25.Fe, 72.25.Rb, 73.21.La

DOI: 10.7498/aps.63.127202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61222406, 11174371), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant No. 12JJ1001), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20110162120072), the Program for New Century Excellent Talents in University of Ministry of Education of China (Grant No. NCET-11-0512), and the Fundamental Research Fund for the Central Universities, China.

† Corresponding author. E-mail: junhe@csu.edu.cn