

Streszczenie

Autor: Rafał Krzysztof Kosman

Promotor: dr hab. inż. Bartłomiej Cichy

Synteza oraz analiza procesów kinetycznych w pojedynczych koloidalnych kwazi-molekułach budowanych w oparciu o dwie kropki kwantowe sprzężone w bliskim polu

Półprzewodnikowe kropki kwantowe (KK) ze względu na swój mały rozmiar oraz kwantowy efekt rozmiarowy, który odpowiada za dyskretyzację poziomów energetycznych, mogą w pierwszym przybliżeniu być postrzegane jako sztuczne atomy. W ostatnich latach przedstawiono w literaturze pierwsze protokoły intencjonalnego łączenia pojedynczych KK w oddziałujące nanostruktury. Ze względu na analogię typu atom – cząstka oraz obecność wzajemnego oddziaływania między KK, nanostruktury te przyjęto się określać jako kwazi-molekuły (QDM, ang. Quantum Dots Molecules).

W swojej najprostszej formie, która jest reprezentowana przez dwie oddziałujące KK, stanowią one analogię dla cząsteczki wodoru lub chlorku sodu zależnie od rozmiaru zastosowanych KK.

Pomimo podjęcia pierwszych prób syntezy oraz ich charakteryzacji od strony eksperymentalnej i teoretycznej, układy te pozostają wciąż mało poznane. Jedną z wyraźniejszych różnic obserwowanych w QDM w odniesieniu do izolowanych KK jest bardzo wyraźna zmiana w statystyce procesów relaksacyjnych, która jest bezpośrednią konsekwencją możliwości przeniesienia ładunku między oddziałującymi KK. Lepsze poznanie wpływu sprzężenia pomiędzy KK budującymi QDM na zmiany w statystyce procesów relaksacyjnych, czy też możliwość kierunkowego transferu ładunku w ramach QDM jest zatem istotnym problemem do rozwiązania. Problem ten nabiera szerszego znaczenia biorąc pod uwagę złożoność procesów kinetycznych w pojedynczych KK prowadzących do różnych typów migotania. Badania wykonane w ramach tej pracy mają na celu odpowiedzieć na te pytania.

Wykonane badania miały charakter zarówno eksperymentalny jak i teoretyczny. Część eksperymentalna skupiała się na otrzymaniu koloidalnych układów QDM budowanych w oparciu o dwie KK o różnym rozmiarze. W pracy ograniczono się do zastosowania KK z selenku kadmu w postaci bezpowłokowej, jak i o strukturze rdzeń-powłoka CdSe/ZnS. Opracowano własną procedurę selektywnego łączenia koloidalnych KK w roztworze z wykorzystaniem modyfikowanych powierzchniowo nano-cząstek SiO₂. Opracowana metoda umożliwia syntezować QDM ze stosunkowo wysokim uzyskiem na poziomie 30-50%. Otrzymane QDM analizowano z wykorzystaniem szeregu metod umożliwiających obrazowanie struktury rzeczywistej (TEM, AFM), charakteryzacji spektralnej obejmującej spektroskopię absorpcyjną, emisyjną (fotoluminescencji oraz czasowo-rozdzielczą spektroskopię luminescencyjną), jak również charakteryzację z wykorzystaniem spektroskopii emisyjnej z pojedynczych cząstek. Część teoretyczna obejmuje symulacje numeryczne ewolucji czasowej procesów kinetycznych w QDM, które wykonano w ramach metody kinetycznego Monte Carlo (KMC). Ze względu na

możliwość symulacji wszystkich procesów relaksacyjnych (nie tylko relaksacji promienistej), metody te są bardzo pomocne przy interpretacji danych uzyskiwanych eksperymentalnie.

Uzyskane wyniki wskazują na szereg efektów, które nie są obserwowane dla pojedynczych KK tj. kaskadowa relaksacja ekscytonów odbywająca się w sposób łańcuchowy, która prowadzi do emisji paczek fotonowych o bardzo wysokiej intensywności, czy też emisji fotonów skorelowanych w czasie, choć efekt ten miał charakter losowy. W pracy udało się również potwierdzić możliwość uzyskania kierunkowego transferu ładunku/ekscytonu między oddziałującymi KK. Wynik ten może mieć istotne znaczenie, jeśli rozpatrywać QDM jako nano-systemy do przetwarzania informacji, w których ekscyton może pełnić rolę podstawowej jednostki informacji.

Sprawą niedomkniętą pozostaje jednak skorelowanie siły sprzężenia z odległością pomiędzy oddziałującymi KK. W przypadku badania układów koloidalnych, które kotwiczone są ze sobą z wykorzystaniem molekuł organicznych, kwestia ta jest trudna do jednoznacznego rozstrzygnięcia.