

Люминесценция двухчастичного комплекса из сферической квантовой точки и плазмонной наноглобулы во внешнем магнитном поле

© М.Г. Кучеренко, В.М. Налбандян

Центр лазерной и информационной биофизики, Оренбургский государственный университет,
460018 Оренбург, Россия

e-mail: clibph@yandex.ru

Поступила в Редакцию 18.05.2020 г.

В окончательной редакции 18.05.2020 г.

Принята к публикации 07.07.2020 г.

На основе специально созданной теоретической модели произведены расчеты частотных зависимостей интенсивности свечения двухкомпонентной системы „экситон-активированная полупроводниковая квантовая точка (КТ, QD) — плазмонная наночастица (НЧ, NP)“ в постоянном магнитном поле. В отличие от предыдущих моделей произведен выход за рамки приближения дипольной поляризуемости сферической НЧ. При расчете индуцированного дипольного момента НЧ учитывался неоднородный характер поля, создаваемого содержащей экситон КТ. Показано, что с изменением индукции внешнего магнитного поля наблюдается трансформация спектров экситонной люминесценции такой системы в результате экситон-плазмонного взаимодействия между частицами кластера и замагниченности электронной плазмы НЧ. Произведен учет конкуренции радиационных и безызлучательных каналов распада возбужденного состояния двухчастичного комплекса. Показано, что в спектрах скорости безызлучательного переноса энергии от КТ к НЧ, а также спонтанного испускания наноконцентрации кроме дипольных полос образуются полосы мультипольных переходов высших порядков, расщепляющиеся на дублетные компоненты в магнитном поле.

Ключевые слова: сферическая квантовая точка, замагниченная плазмонная наночастица, люминесценция двухчастичного комплекса, мультипольные поляризуемости.

DOI: 10.21883/OS.2020.11.50184.153-20

Введение

Типичными объектами современной наноэлектроники и фотоники являются полупроводниковые и металлические наночастицы (НЧ, NP) разной формы, в которых под действием электромагнитного излучения генерируются коллективные электронные возбуждения в виде экситонов и плазмонов [1,2]. Взаимодействие экситонов и плазмонов друг с другом вызывает существенный интерес благодаря его определяющей роли в поверхностно-усиленной рамановской спектроскопии (SERS) [3], экситонной люминесценции гибридных НЧ вблизи металлических поверхностей и их влиянии на реакции гетерогенного катализа [4], в увеличении КПД ячеек солнечных элементов [5], а также во многих других процессах в различных областях наноэлектроники. В связи с этим для более эффективного и прецизионного контроля технологических процессов и работы электронных устройств нового поколения становится важным развитие методов оперативного управления интенсивностью экситон-плазмонного взаимодействия в наноструктурах с помощью внешнего магнитного поля.

Экситоны, генерируемые в квантовых точках (КТ, QD) или молекулярных J -агрегатах, могут образовывать сильные или слабые связи с плазмонами в зависимости от структуры наносистемы и ее энергетических харак-

теристик [6–8], что приводит к различным уникальным оптическим свойствам. Металлические НЧ и планарные структуры с плазмонным слоем могут существенно изменять радиационные характеристики близлежащих КТ в результате экситон-плазмонного взаимодействия. В работах [9–11] экспериментально исследованы особенности люминесценции КТ в ближнем поле металлических НЧ. Наблюдалось увеличение поглощения КТ в 4 раза и возрастание интенсивности флуоресценции почти на порядок. В ряде работ исследовано экситон-плазмонное взаимодействие в композитных проводящих частицах, покрытых слоем J -агрегатов [12], а также в планарной системе „металлическая пленка–слой молекулярных J -агрегатов“ [13–15]. Так, в работе [15] численно реализована математическая модель и показано, что поверхностные плазмоны в металлической пленке значительно увеличивают скорость безызлучательного переноса энергии экситонов Френкеля из одного монослоя J -агрегатов в другой.

Оказалось, что эффективность плазмонного влияния на экситонные процессы зависит не только от геометрической конфигурации системы и состояния электронного газа в металле [16], но также и от внешнего магнитного поля, способного изменять поляризационные характеристики проводящей частицы [17–21]. Так, например, в [21] обнаружено влияние магнитного поля

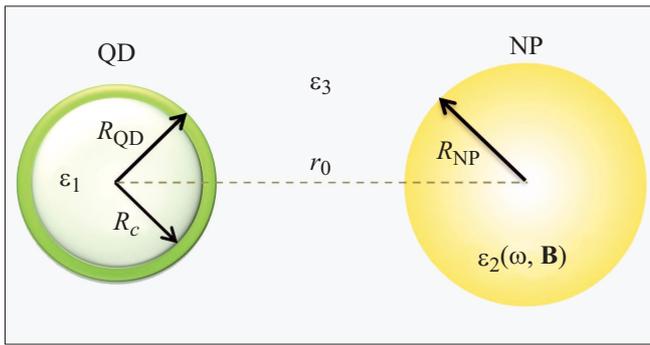


Рис. 1. Геометрическая конфигурация исследуемой системы.

на экситонную люминесценцию и случайную генерацию в ближнем УФ диапазоне пленок ZnO, сформированных из хаотично ориентированных наностержней, покрытых НЧ серебра при комнатной температуре. При наличии магнитного поля в такой системе наблюдалось ярко выраженное усиление люминесценции, тогда как в отсутствие НЧ серебра эффект магнитополевого усиления свечения не наблюдался.

В настоящей работе предложена теоретическая модель электронных процессов в композитной системе КТ–НЧ, в рамках которой исследованы механизм и эффективность магнитной модуляции радиационных и безызлучательных процессов в системе с учетом неоднородности ближнего поля и анизотропных характеристик мультипольных поляризуемостей замагниченной НЧ.

Математическая модель

Рассмотрим две сферические НЧ (рис. 1), одна из которых представляет собой экситон-активированную полупроводниковую сферическую КТ радиуса $R_{\text{QD}} = R_c + \Delta$ содержащейся в ее ядре $r' < R_c$ электрон-дырочной парой или экситоном Ванье–Мотта, а другая — металлическую НЧ радиуса R_{NP} с расстоянием $r_0 > R_{\text{QD}} + R_{\text{NP}}$ между центрами частиц.

Поле активированной КТ осциллирует со временем t на частоте ω дипольного источника с моментом $\mathbf{p} = \mathbf{p}_0 \exp(-i\omega t)$. Это поле наводит в НЧ дипольный момент \mathbf{p}_2 . Полагаем, что диэлектрическая проницаемость КТ ϵ_1 не обладает выраженной частотной дисперсией, тогда как диэлектрическая проницаемость $\epsilon_2(\omega)$ проводящей НЧ, наоборот, имеет типичную для металлов сильную дисперсию в области частот ω экситонного перехода. Во внешнем магнитном поле индукции \mathbf{B} электронная плазма металла приобретает анизотропные свойства, и диэлектрическая проницаемость ϵ_2 становится тензором $\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B})$ второго ранга [22]. Прозрачная среда характеризуется диэлектрической постоянной ϵ_3 .

В приближении холодной замагниченной электронной плазмы тензор $\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B})$ диэлектрической проницаемости в декартовой системе координат записывается в

виде [23]

$$\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) = \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp}(\omega|\mathbf{B}) & ig(\omega|\mathbf{B}) & 0 \\ -ig(\omega|\mathbf{B}) & \epsilon_{\perp}(\omega|\mathbf{B}) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\parallel}(\omega) \end{pmatrix},$$

где $\epsilon_{\perp}(\omega|\mathbf{B}) = 1 - \frac{\omega_p^2 K}{\omega(K^2 - \Omega_L^2)}$, $\epsilon_{\parallel}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega K}$, $g(\omega|\mathbf{B}) = \frac{\omega_p^2 \Omega_L}{\omega(K^2 - \Omega_L^2)}$, $K = (\omega + i\gamma)$, γ — частота электронных столкновений (коэффициент диссипации), $g(\omega|\mathbf{B})$ — модуль вектора гирации, $\omega_p = \sqrt{4\pi e^2 n_e / m}$ — ленгмюровская (плазменная) частота, $\Omega_L = e|\mathbf{B}|/mc$ — ларморовская (циклотронная) частота электрона в магнитном поле индукции B .

На малых расстояниях r_0 от КТ и/или сравнительно больших радиусах $R_{\text{NP}} \sim r_0$ НЧ поле $E(\omega)$ диполя \mathbf{p} уже нельзя считать однородным, и часто используемое для описания отклика на это поле электрической дипольной поляризуемости $\alpha(\omega)$ НЧ [16] становится некорректным. Ниже мы развиваем более общую модель, которая учитывает неоднородность поля $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$ как внутри НЧ, так и снаружи нее, а также анизотропию замагниченной электронной плазмы НЧ.

Потенциалы $\varphi_j(r, \theta)$ электрического поля внутри НЧ ($j = 2, r < R_{\text{NP}}$) с тензором $\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B})$ диэлектрической проницаемости ее замагниченной плазмы и снаружи ($j = 3, r > R_{\text{NP}}$) — в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ_3 , создаваемого точечным зарядом q , находящимся в точке $(r_0, 0, r_0 > R_{\text{NP}})$, вне шара могут быть записаны в виде

$$\varphi_2(r, \theta; r_0|\mathbf{B}) = q \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) r_0 \epsilon_l^{-1}(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{r} \frac{r^{l-1}}{r_0^{l+2}} P_l(\cos \theta),$$

$$r < R_{\text{NP}}, \quad (1)$$

$$\varphi_3(r, \theta; r_0|\mathbf{B}) = \frac{q}{\epsilon_3 R_A} + \frac{q}{\epsilon_3} \sum_{l=1}^{\infty} l r_0 [\epsilon_3 - \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B})] \times \overleftrightarrow{\epsilon}_l^{-1}(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{r} \frac{R_{\text{NP}}^{2l+1}}{r_0^{l+2} r^{l+2}} P_l(\cos \theta), \quad (2)$$

где тензоры

$$\overleftrightarrow{\epsilon}_l^{-1}(\omega|\mathbf{B}) = [l \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) + (l+1) \epsilon_3 \overleftrightarrow{\mathbf{I}}]^{-1}$$

взаимно обратны комбинированным тензорам проницаемостей

$$\overleftrightarrow{\epsilon}_l(\omega|\mathbf{B}) = [l \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) + (l+1) \epsilon_3 \overleftrightarrow{\mathbf{I}}]$$

Угловые факторы $P_l(\cos \theta)$ представляют собой полиномы Лежандра степени l , а θ — угол между осью \mathbf{r}_0 и радиусом-вектором, определяющим положение точки, в которой рассчитывается потенциал $\varphi_j(r, \theta)$.

Потенциалы $\delta\varphi_j(r, \theta|\mathbf{B})$ ($j = 2, 3$) радиально выстроенного точечного диполя $\mathbf{p}_0 = q\delta\mathbf{r}_0$ КТ получаем дифференцированием (1), (2) по переменной r_0 :

$$\delta\varphi_j(r, \theta) = \nabla\varphi_j(r, \theta)\delta r_0,$$

$$\delta\varphi_2(r, \theta; r_0|\mathbf{B}) = - \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)(l+1) \mathbf{p}_0 \overleftrightarrow{\varepsilon}_l^{-1}(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{r} \frac{r^{l-1}}{r_0^{l+2}} \times P_l(\cos \theta), \quad r < R_{\text{NP}}, \quad (3)$$

$$\delta\varphi_3(r, \theta; r_0|\mathbf{B}) = \frac{p_0}{\varepsilon_3 R_A^3} (r \cos \theta - r_0) + \frac{1}{\varepsilon_3} \sum_{l=1}^{\infty} l(l+1) \mathbf{p}_0 [\overleftrightarrow{\varepsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) - \varepsilon_e \overleftrightarrow{T}] \overleftrightarrow{\varepsilon}_l^{-1}(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{r} \frac{R_2^{2l+1}}{r_0^{l+2} r^{l+2}} P_l(\cos \theta), \quad r > R_{\text{NP}}. \quad (4)$$

Заметим, что ближнее поле с потенциалом $\delta\varphi_3(r, \theta; r_0|\mathbf{B})$ (4) определяет безызлучательный перенос энергии экситона КТ вблизи проводящей НЧ к малой частице-акцептору радиусом R_A (молекуле или атомно-молекулярному кластеру), находящейся в точке с координатами (r, θ) в магнитном поле.

В режиме сильного конфайнмента кулоновское взаимодействие между электроном и дыркой мало (но может быть учтено по теории возмущений), а их волновые функции в нулевом приближении могут быть представлены как основные состояния свободных частиц в прямоугольной сферически симметричной потенциальной яме радиуса R_c с бесконечно высокими стенками:

$$\chi_0(\mathbf{r}_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi R_c}} \frac{\sin(\pi r_p/R_c)}{r_p}, \quad p = e, h.$$

Двухчастичное состояние такого „сжатого экситона“ принимает вид [24]

$$\psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \chi_0(\mathbf{r}_e) \chi_0(\mathbf{r}_h),$$

а вектор поляризации КТ

$$\mathbf{P}(r') = \frac{\mathbf{d}_{vc}}{2\pi R_c} \frac{\sin^2(\pi r'/R_c)}{r'^2},$$

где d_{vc} — векторный матричный элемент межзонного электронного дипольного момента перехода, r' — расстояние от центра КТ до точки локализации $e-h$ -пары ($r' = r_e = r_h$). Дипольный момент p_0 КТ связан с вектором поляризации соотношением $\mathbf{p}_0 = 4\pi \int_0^{R_c} \mathbf{P}(r') r'^2 dr'$.

Радиальные зависимости электрических потенциалов внутри (3) и вне (4) КТ носят нелинейный характер. С увеличением параметра r' до $r' = R_c/2$ значение потенциала резко возрастает, а при дальнейшем увеличении r_c начинает уменьшаться. Вне КТ потенциал поля постепенно уменьшается с удалением от ее поверхности.

В случае, когда дипольные моменты двух частиц (КТ и НЧ) формируются в неоднородном поле, формула для скорости $w_{sp}(\omega|\mathbf{B}, r)$ спонтанного излучения [20] объединенной бинарной системой „КТ–проводящая НЧ“

должна быть модифицирована следующим образом:

$$w_{sp}(\omega|\mathbf{B}, r_0) = \frac{4}{3} \frac{\omega^3}{\hbar c^3} \left| \mathbf{p}_2(r_0|\mathbf{B}) + \frac{3\varepsilon_3}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_3} \times \int_0^{R_c} \mathbf{P}(r') 4\pi r'^2 dr' \right|^2, \quad (5)$$

где

$$\mathbf{p}_2(r_0|\mathbf{B}) = -\frac{1}{2\varepsilon_3} \int_0^{R_{\text{NP}}} \int_0^\pi [\overleftrightarrow{\varepsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) - \varepsilon_3 \overleftrightarrow{T}] \times \overleftrightarrow{\nabla}_r \delta\varphi_2(r, \theta|\mathbf{B}) r^2 dr \sin \theta d\theta. \quad (6)$$

Интеграл $\mathbf{p}_2(r_0|\mathbf{B})$ (6) представляет собой наведенный дипольный момент НЧ [25] в неоднородном поле активированной КТ и магнитном поле \mathbf{B} .

Аналогичной модификации должно быть подвергнуто выражение для скорости $U(\omega|\mathbf{B}, r_0)$ безызлучательной передачи энергии от КТ к НЧ [20]. В случае неоднородного поля эта скорость (без использования величины дипольной поляризуемости) может быть представлена интегралом от мнимой части квадратичной формы вектора напряженности локального поля — $\overleftrightarrow{\nabla}_r \delta\varphi_2(r, \theta|\mathbf{B}) = \mathbf{E}_2(r, \theta|\omega)$ внутри НЧ:

$$U(\omega|\mathbf{B}, r_0) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_0^{R_{\text{NP}}} \int_0^\pi \text{Im} \mathbf{E}_2^*(r, \theta|\omega) \times \overleftrightarrow{\varepsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{E}_2(r, \theta|\omega) \sin \theta d\theta r^2 dr. \quad (7)$$

Ниже для упрощения расчетов вместо выражения (7) использовалась его модифицированная версия в виде интегрального среднего в некотором внутреннем слое радиуса $0 < \bar{r} < R_{\text{NP}}$ НЧ:

$$U(\omega|\mathbf{B}, r_0) = \frac{2\bar{r}^3}{3\hbar} \text{Im} [\mathbf{E}_2^*(\bar{r}|\omega) \overleftrightarrow{\varepsilon}_2(\omega|\mathbf{B}) \mathbf{E}_2(\bar{r}|\omega)]. \quad (8)$$

Регистрируемой в экспериментах величиной является спектральная плотность $N(\omega|\mathbf{B})$ числа фотонов, испущенных объединенной системой „КТ–НЧ“ на частоте ω . Она определяется вероятностью w_{sp} спонтанного перехода (5), умноженной на функцию лоренцевой формы линии с шириной

$$\Gamma(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta) = w_{sp}(\omega|\mathbf{B}, r_0) + U(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta) + K \quad (\vartheta — угол между векторами \mathbf{p} и \mathbf{r}_0),$$

$$N(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta) = \frac{1}{2\pi} \frac{w_{sp}^2(\omega|\mathbf{B}, r_0) \Gamma(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta)}{(\omega - \omega_{if})^2 + \Gamma^2(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta)}, \quad (9)$$

где ω_{if} — резонансная частота лоренцева контура экситонной полосы, K — постоянная скорость одноцентрового безызлучательного распада возбужденной молекулы в отсутствие НЧ.

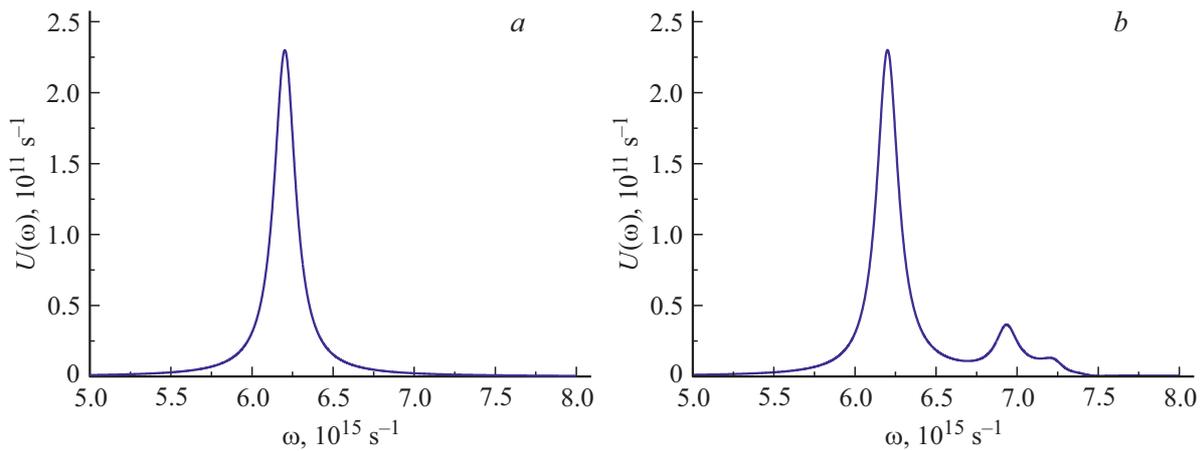


Рис. 2. Спектры скорости безызлучательного переноса энергии от КТ к НЧ при учете нескольких первых мультиполей в отсутствие внешнего магнитного поля: (a) $n = 1$, (b) $n = 3$; $\gamma = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$; $B = 0 \text{ T}$.

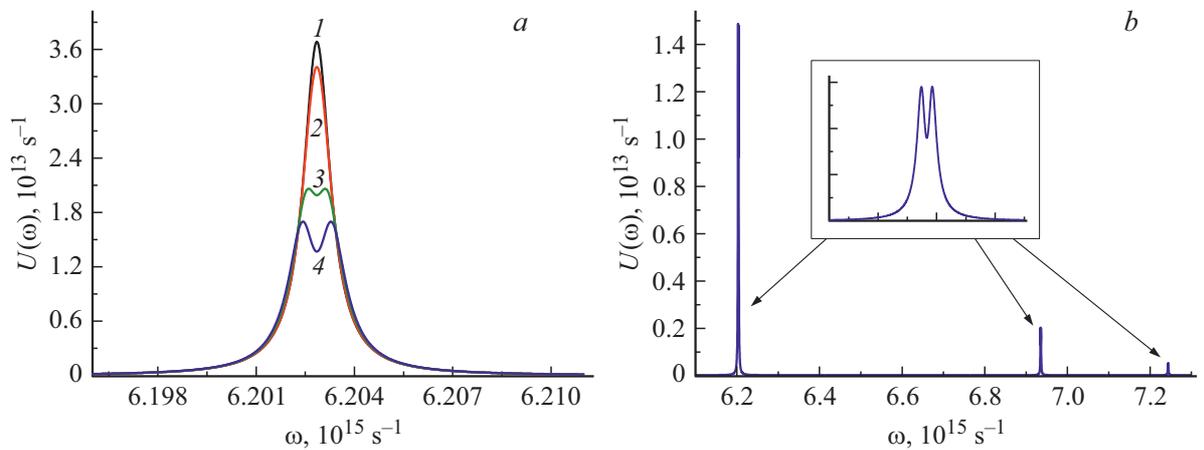


Рис. 3. Спектры скорости безызлучательного переноса энергии от КТ к НЧ в магнитном поле (a) различной индукции B ($1 - 0$, $2 - 2$, $3 - 6$, $4 - 8 \text{ T}$) при учете только мультиполя первого порядка и (b) индукции $B = 10 \text{ T}$ для трех первых мультипольных резонансов. $\gamma = 10^{12} \text{ s}^{-1}$.

Результаты исследования

На основе (3) и (4) были произведены расчеты характеристик поля

$$-\vec{\nabla}_r \delta \varphi_j(r, \theta | \mathbf{B}) = \mathbf{E}_j(r, \theta | \omega)$$

внутри ($j = 2$) и вне ($j = 3$) НЧ. Спектры скоростей излучательного (5) и безызлучательного (7), (8) распадов экситонного состояния комплекса КТ–НЧ, а также спектральная плотность излучаемых им фотонов (9) представлены ниже на рис. 2–8. Для расчетов были использованы несколько различных аппроксимаций обратного тензора

$$\overleftrightarrow{\epsilon}_l^{-1}(\omega | \mathbf{B}) = [l \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B}) + (l + 1) \epsilon_3 \overleftrightarrow{\mathbf{I}}]^{-1}$$

его скалярным аналогом

$$\overleftrightarrow{\epsilon}_l^{-1}(\omega | \mathbf{B}) \rightarrow 1/[l \epsilon_2(\omega | \mathbf{B}) + (l + 1) \epsilon_3],$$

в котором в качестве базового скалярного элемента $\epsilon_2(\omega | \mathbf{B})$ использовались различные инварианты разного порядка для тензора $\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B})$: от первого $(1/3) \text{Tr} \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B})$ — на основе следа, до третьего $(\text{Det} \|\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B})\|)^{1/3}$ — на основе детерминанта. Расчеты производились для всех указанных аппроксимаций, а в итоге были изучены последствия произведенной замены.

Оказалось, что при использовании в качестве базового скалярного элемента $\epsilon_2(\omega | \mathbf{B})$ следа $(1/3) \text{Tr} \overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B})$ тензора $\overleftrightarrow{\epsilon}_2(\omega | \mathbf{B})$ время расчетов спектров в математическом пакете по формулам (5) и (8), (9) существенно уменьшалось, но при этом давало практически одинаковые результаты с расчетами по точным тензорным формулам. Однако при изучении влияния магнитного поля на радиационные спектры, очевидно, что такая упрощающая расчет работа не будет, и необходимо производить расчеты величин только в первоначальном тензорном виде.

При расчете были использованы следующие постоянные величины, приведенные ниже: $\omega_p = 13.87 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $B = 0 \text{ T}$, $R_{\text{NP}} = 7 \text{ nm}$, $R_c = 3 \text{ nm}$, $\Delta = 1 \text{ nm}$, $R_{\text{QD}} = 4 \text{ nm}$, $\bar{r} = 3 \text{ nm}$, $r_B = 5 \text{ nm}$, $r_0 = R_{\text{NP}} + 5 \text{ nm}$, $d_{vc} = 12 \text{ D}$, $\varepsilon_1 = 6$, $\varepsilon_3 = 2$, $\theta = \pi/2$, $K = 8 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$. Те величины, значения которых изменялись в ходе расчетов, и таким образом отличались от вышеприведенных, указаны в подписях к рисункам. Значения величин, типичных для КТ, взяты из работы [24], а в качестве металла для НЧ использовалось золото.

Для наблюдения изменений в радиационных спектрах бинарной системы КТ–НЧ, индуцированных действием постоянного магнитного поля, необходимо создать условия для высокого разрешения спектральных линий, что может быть обеспечено, если частота столкновений электронов в металле будет меньше на 2–3 порядка, чем при нормальных условиях. В частности, этого можно достичь путем глубокого охлаждения металла до температур менее 100 К [26].

Скорость безызлучательного переноса энергии от КТ к НЧ

Спектры скорости $U(\omega|\mathbf{B}, r_0)$ (вероятности перехода в единицу времени) безызлучательной передачи энергии от КТ к НЧ в отсутствие магнитного поля и при его наличии были рассчитаны на основе формулы (8). Учет мультиполей различного порядка в формуле (3) для потенциала поля внутри НЧ осуществлялся суммированием по l конечного числа n членов ряда, т.е. заменой $\sum_{l=1}^{\infty} \rightarrow \sum_{l=1}^n$. В отличие от случая однородного поля, когда возбуждается только дипольное колебание, в неоднородном поле КТ отклик системы (НЧ) носит мультипольный характер, что и видно на рис. 2.

На рис. 2, *a* представлен спектр скорости безызлучательного переноса энергии в дипольном приближении, т.е. при $n = 1$. Наблюдается одна спектральная полоса на резонансной частоте $\omega_1 = 6.2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, определяемая дипольным колебанием зарядов в металлической НЧ. С увеличением числа n до двух кроме основного (дипольного) резонанса в высокочастотной области появляется дополнительная спектральная полоса с максимумом на частоте $\omega_2 = 6.93 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ с меньшей амплитудой, отвечающая квадрупольным колебаниям. При $n = 3$ возникает новая полоса на частоте $\omega_3 = 7.24 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ (рис. 2, *b*), которая отвечает октупольным колебаниям, и т.д. Таким образом, спектр скорости безызлучательной передачи энергии от КТ к НЧ в неоднородном электрическом поле донорной частицы представляет собой совокупность мультипольных резонансов на разных частотах, зависящих от порядка мультиполя. Однако основной вклад в суммарную скорость переноса дают два первых резонанса — дипольный и квадрупольный.

На рис. 3 показано, как внешнее магнитное поле изменяет величину скорости переноса и ее резонансную частоту. Из рис. 3, *a* видно, что спектральная кривая

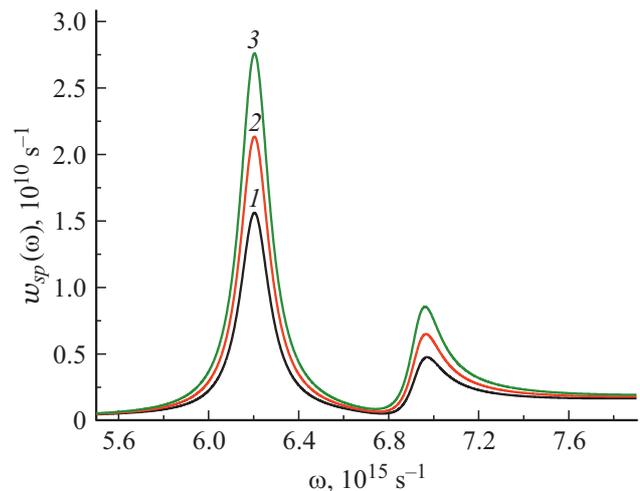


Рис. 4. Зависимость спектра скорости спонтанного излучения системы „КТ–НЧ“ от радиуса НЧ в отсутствие магнитного поля. $n = 2$, $\gamma = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, $r_0 = R_{\text{NP}} + 5 \text{ nm}$. Значения R_{NP} : 1 — 7, 2 — 8, 3 — 9 nm.

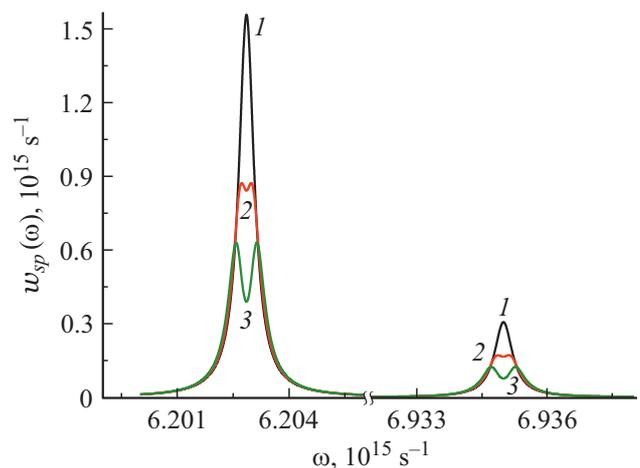


Рис. 5. Зависимость спектра скорости спонтанного излучения системы „КТ–НЧ“ от индукции магнитного поля. $n = 2$, $\gamma = 5 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Значения B : 1 — 0, 2 — 3, 3 — 5 T.

скорости переноса деформируется в магнитном поле, вначале уменьшаясь по амплитуде (кривая 2), а затем расщепляясь на две компоненты (кривая 3), расстояние между которыми увеличивается с ростом магнитного поля (кривая 4). Все резонансные полосы вне зависимости от того, мультиполю какого порядка они соответствуют, демонстрируют одинаковый магнитополевой отклик (рис. 3, *a*): все они расщепляются на две симметричные линии, как это показано на врезке рис. 3, *b*.

При увеличении расстояния между КТ и НЧ от 11 до 13 nm скорость безызлучательного переноса энергии уменьшается на всех резонансных частотах. Очевидно, это связано с тем, что взаимодействие между частицами ослабевает с их удалением друг от друга.

Напряженность поля внутри НЧ различна в разных ее точках. Из более общей формулы (7) видно, что вклад разных слоев НЧ радиуса r в результирующую скорость переноса будет различной. Чем больше радиус слоя, тем более важную роль в переносе энергии будут играть мультиполи высших порядков. Например, при радиусе НЧ 7 нм в слое радиусом 6 нм квадрупольные и октупольные колебания значительно больше по амплитуде, чем те же мультиполи во внутренних слоях меньшего радиуса, и они становятся сравнимыми с дипольными колебаниями.

Скорость спонтанного излучения объединенной системы „КТ–НЧ“

Эффект влияния металлической НЧ на спонтанные излучательные переходы в КТ при наличии внешнего магнитного поля был исследован на основе выражений (5), (6). В спектрах спонтанного излучения бинарной системой с учетом мультиполей первого и второго порядков присутствуют две соответствующие полосы (рис. 4, 5). При учете мультиполя третьего порядка на графике присутствуют все три полосы разной интенсивности.

Как видно из рис. 4, с увеличением радиуса металлической НЧ скорость излучения системы „КТ–НЧ“ увеличивается на обеих резонансных частотах. Как было отмечено ранее, для обнаружения влияния магнитного поля на систему, необходимо уменьшить частоту столкновений электронов γ в металле на 2–3 порядка. Увеличение индукции поля от 0 до 5 Т приводит к расщеплению каждой из двух резонансных спектральных полос на две компоненты. Кроме того, с ростом магнитного поля наблюдается уменьшение скорости спонтанного излучения системы (рис. 5), в первую очередь в области резонансных частот.

Спектральная плотность $N(\omega)$ числа фотонов, испущенных объединенной системой „КТ–НЧ“

Спектральная плотность $N(\omega)$ числа фотонов, испущенных объединенной системой „КТ–НЧ“ на частоте ω , определяется вероятностью w_{sp} спонтанного перехода (5), умноженной на функцию лоренцевой формы линии, с шириной

$$\Gamma(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta) = w_{sp}(\omega|\mathbf{B}, r_0) + U(\omega|\mathbf{B}, r_0, \vartheta) + K,$$

ϑ — угол между векторами \mathbf{p} и \mathbf{r}_0 . Функцию $N(\omega)$ можно отождествлять с регистрируемым экспериментально спектром люминесценции объединенной двухчастичной системы. Расчеты таких спектров люминесценции были проведены на основе формулы (9).

На спектрах люминесценции в низкочастотной области наблюдается дополнительная спектральная полоса на резонансной частоте перехода $\omega_{if} = 5.5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ из возбужденного (экситонного) состояния i КТ в ее основное состояние f . Остальные (высокочастотные)

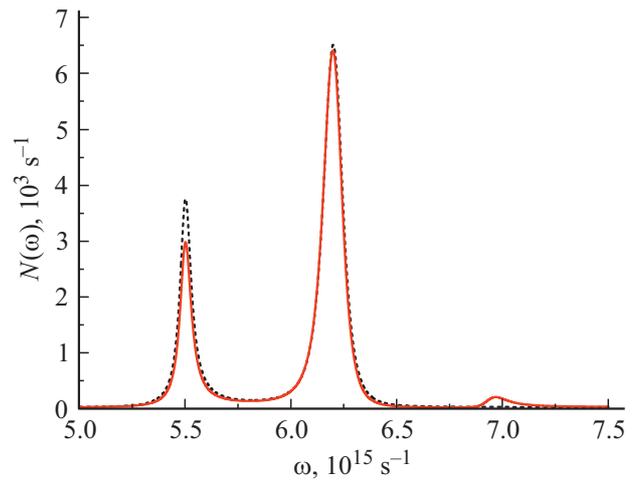


Рис. 6. Спектр люминесценции комплекса „КТ–НЧ“ при разном порядке n мультиполя. $\omega_{if} = 5.5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $\gamma = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, $K = 8 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$, $B = 0 \text{ Т}$. Пунктирная линия — $n = 1$, сплошная — $n = 2$.

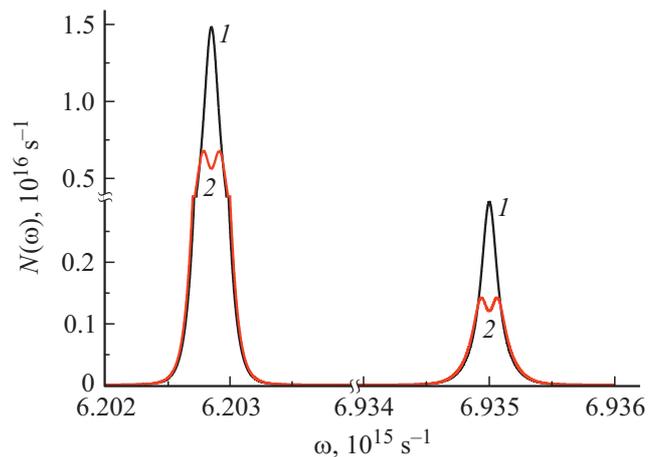


Рис. 7. Спектры люминесценции комплекса „КТ–НЧ“ в отсутствие внешнего магнитного поля (кривая 1) и при его наличии (кривая 2, $B = 1.2 \text{ Т}$) в условиях узких плазмонных резонансов при $\gamma = 1.6 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Частота $\omega_{if} = 7 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ совпадает с высокочастотным плазмонным резонансом металлической НЧ. Учтены плазмоны двух низших мультипольностей: $n = 1$ и $n = 2$.

полосы спектров рис. 6–8 соответствуют плазмонным резонансам металлической НЧ.

На рис. 6 показан график спектральной плотности числа фотонов, испущенных объединенной системой „КТ–НЧ“ на частоте ω в отсутствие внешнего магнитного поля. Как видно из рисунка, учет мультиполей более высокого порядка способствует перераспределению интенсивности между линиями полного спектра и соответствующему уменьшению люминесценции на резонансной частоте экситонного перехода.

Для демонстрации влияния магнитного поля на спектры люминесценции системы „КТ–НЧ“ частота столк-

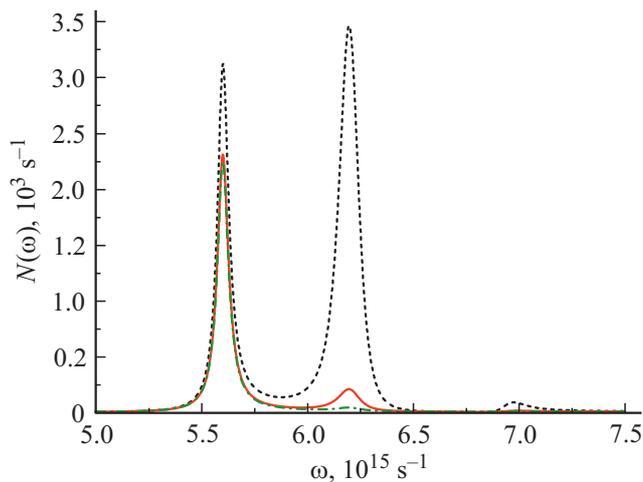


Рис. 8. Зависимость спектра люминесценции объединенного комплекса от расстояния между центрами КТ и НЧ. $n = 3$, $\omega_{if} = 5.5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $K = 8 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$. Значения для r_0 : пунктирная линия (черная) — $r_0 = 13 \text{ nm}$, сплошная (красная) — $r_0 = 17 \text{ nm}$, штрихпунктирная (зеленая) — $r_0 = 21 \text{ nm}$.

новения электронов уменьшалась на 2–3 порядка относительно ее „стандартного“ значения $\gamma = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, при этом амплитуда резонансных полос резко возрастала, что заметно при сравнении масштабов осей графиков, представленных на рис. 6, 7. В последнем случае (рис. 7) при включении магнитного поля заметно расщепление спектральных полос на две компоненты, расходящихся по частотной шкале с увеличением индукции B .

При увеличении расстояния между центрами частиц существенно изменяется форма спектров люминесценции: происходит резкое уменьшение амплитуд спектральных полос — плазмонных резонансов, отвечающих вкладу металлической НЧ в суммарный сигнал свечения, и при больших расстояниях ($r_0 \approx 3R_{\text{NP}}$) основной вклад в люминесценцию дает излучение КТ на частоте ω_{if} (рис. 8).

Расчеты показали, что в зависимости от величины диэлектрической проницаемости КТ ϵ_1 происходит ощутимое изменение спектров люминесценции системы. Так, с увеличением ϵ_1 заметно уменьшается люминесценция на частоте экситонного перехода, при этом на частотах плазмонных резонансов это влияние не так значительно. В то же время увеличение межзонного дипольного момента перехода d_{vc} в КТ приводит к увеличению люминесценции на всех резонансных частотах.

Кроме изученных параметрических зависимостей была исследована зависимость люминесценции от степени экситонного конфинмента посредством замены соответствующего выражения для поляризации КТ в формуле (9). Было установлено, что режим сильного конфинмента $e-h$ приводит к более интенсивной люминесценции двухчастичного комплекса КТ–НЧ по сравнению со слабым конфинментом практически невоз-

мущенного экситона. Как и следовало ожидать, эти отличия особенно хорошо заметны в области частот чисто экситонного перехода в КТ.

Заключение

На основе специально созданной теоретической модели произведены расчеты частотных зависимостей интенсивности свечения двухкомпонентной системы „экситон-активированная полупроводниковая КТ — плазмонная НЧ“ в постоянном магнитном поле. Исследованы скорости спонтанного излучения системой „КТ–НЧ“ и безызлучательного переноса энергии от КТ к металлической НЧ с учетом неоднородностей ближнего поля КТ. В условиях слабой диссипации наблюдались мультипольные плазмонные резонансы металлической НЧ, испытывающие дублетные расщепления при намагничивании электронной плазмы металла. Было установлено, что с изменением индукции внешнего магнитного поля наблюдается характерная трансформация спектров люминесценции композитной системы в результате экситон-плазмонного взаимодействия составляющих ее компонентов и конкуренции радиационных и безызлучательных каналов распада электронно-возбужденного состояния. Обнаружено, что вне зависимости от мультипольности плазмонных резонансов все они испытывают расщепление во внешнем магнитном поле на две симметричные компоненты, в отличие от экситонной полосы, не являющейся магниточувствительной. Величины расщеплений магниточувствительных полос оказались пропорциональными индукции внешнего поля.

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках научного проекта № FSGU-2020-0003.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Bauch M., Toma K., Toma M., Zhang Q., Dostalek J. // Plasmonics. 2014. V. 9. N 4. P. 781. doi 10.1007/s11468-013-9660-5
- [2] Cao E., Lin W., Sun M., Liang W., Song Y. // Nanophotonics. 2018. V. 7. N 1. P. 145. doi 10.1515/nanoph-2017-0059
- [3] Kang L., Chu J., Zhao H., Xu P., Sun M. // J. Mater. Chem. C. 2015. V. 3. N 35. P. 9024. doi 10.1039/C5TC01759A
- [4] Yang X., Yua H., Guo X., et al. // Mater Today Energy. 2017. V. 5. P. 72. doi 10.1016/j.mtener.2017.05.005
- [5] Jeong N.C., Prasittichai C., Hupp J.T. // Langmuir. 2011. V. 27. N 23. P. 14609. doi 10.1021/la203557f

- [6] *Bitton O., Gupta S.N., Haran G.* // *Nanophotonics*. 2019. V. 8. N 4. P. 559. doi 10.1515/nanoph-2018-0218
- [7] *Balci S., Kocabas C., Kücüköz B., et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 2014. V. 105. N 5. P. 051105. doi 10.1063/1.4892360
- [8] *Чмерева Т.М., Кучеренко М.Г., Кислов Д.А., Налбандян В.М.* // *Опт. и спектр.* 2018. Т. 125. № 5. С. 670; *Chmereva T.M., Kucherenko M.G., Kislov D.A., Nalbandyan V.M.* // *Opt. Spectrosc.* 2018. V. 125. N 5. P. 735. doi 10.1134/S0030400X18110085
- [9] *Баканов А.Г., Торопов Н.А., Вартамян Т.А.* // *Опт. и спектр.* 2016. Т. 120. № 3. С. 502; *Vakanov A.G., Toropov N.A., Vartanyan T.A.* // *Opt. Spectrosc.* 2016. V. 120. N 3. P. 477. doi 10.7868/S0030403416030041
- [10] *Шамилов Р.Р., Нурждин В.И., Валеев В.Ф. и др.* // *ЖТФ*. 2016. Т. 86. № 11. С. 95; *Shamilov R.R., Galyametdinov Y.G., Stepanov A.L., et al* // *Tech. Phys. Russ. J. Appl. Phys.* 2016. V. 61. N 11. P. 1698. doi 10.21883/jtf.2016.11.43821.1330
- [11] *Матюшкин Л.Б., Перцова А., Мошников В.А.* // Письма в *ЖТФ*. 2018. Т. 44. № 8. С. 35; *Matyushkin L.B., Pertsova A., Moshnikov V.A.* // *Techn. Phys. Lett.* 2018. V. 44. P. 331. doi 10.21883/PJTF.2018.08.45964.17142
- [12] *Лебедев В.С., Медведев А.С.* // *Квант. электрон.* 2013. Т. 43. № 11. С. 1065; *Lebedev V.S., Medvedev A.S.* // *Quant. Electron.* 2013. V. 43. N 11. P. 1065. doi 10.1070/QE2013V043N11ABEH015180
- [13] *Кучеренко М.Г., Чмерева Т.М.* // *Опт. и спектр.* 2018. Т. 125. № 2. С. 165; *Kucherenko M.G. Chmereva T.M.* // *Opt. Spectrosc.* 2018. V. 125. N 2. P. 173. doi 10.1134/S0030400X18080179
- [14] *Чмерева Т.М., Кучеренко М.Г., Курмангалеев К.С.* // *Опт. и спектр.* 2016. Т. 120. № 6. С. 941; *Chmereva T.M., Kucherenko M.G. Kurtangaleev K.S.* // *Opt. Spectrosc.* 2016. V. 120. N 6. P. 881. doi 10.1134/S0030400X16060060
- [15] *Чмерева Т.М., Кучеренко М.Г.* // *Изв. вузов. Физика*. 2018. Т. 61. № 2. С. 91; *Chmereva T.M. Kucherenko M.G.* // *Russ. Phys. J.* 2018. V. 61. T. 2. P. 304. doi 10.1007/s11182-018-1402-x
- [16] *Кучеренко М.Г., Налбандян В.М.* // *Изв. вузов. Физика*. 2016. Т. 59. № 9. С. 87; *Kucherenko M.G., Nalbandyan V.M.* // *Russ. Phys. J.* 2017. V. 59. N 9. P. 1425. doi 10.1007/s11182-017-0926-9
- [17] *Ma Z., Zhang J., Wang X. et al.* // *Opt. Lett.* 2013. V. 38. N 19. P. 3754. doi 10.1364/OL.38.003754
- [18] *Shikata T., Fujii K., Mizushiri K. et al.* // *Plasma Phys. and Controlled Fusion*. 2009. V. 51. N 2. P. 122001. doi 10.1088/0741-3335/51/12/122001
- [19] *Кучеренко М.Г., Налбандян В.М.* // *Опт. журн.* 2018. Т. 85. № 9. С. 3; *Kucherenko M.G. Nalbandyan V.M.* // *J. Optical Technology*. 2018. V. 85. N 9. P. 524. doi 10.1364/JOT.85.000524
- [20] *Kucherenko M., Nalbandyan V.* // *Phys. Procedia*. 2015. V. 73. P. 136. doi 10.1016/j.phpro.2015.09.134
- [21] *Briskina C.M., Tarasov A.P., Markushev V.M., Shiryaev M.A.* // *J. Nanophot.* 2018. V. 12. N 4. P. 043506. doi 10.1117/1.JNP.12.043506
- [22] *Кучеренко М.Г., Налбандян В.М.* // *Вестник ОГУ*. 2015. Т. 188. № 13. С. 156.
- [23] *Гинзбург В.Л., Рухадзе А.А.* *Волны в магнитоактивной плазме*. М.: Наука, 1975. 256 с.
- [24] *Агранович В.М., Баско Д.М.* // *Письма в ЖЭТФ*. 1999. Т. 69. В. 3. С. 232
- [25] *Климов В.В., Дюклуа М., Летохов В.С.* // *Квант. электроника*. 2001. Т. 31. № 7. С. 569; *Klimov V.V., Ducloy M., Letokhov V.S.* // *Quant. Electronics*. 2001. V. 31. N 7. P. 569. doi 10.1070/QE2001v031n07ABEH002007
- [26] *Kucherenko M.G., Nalbandyan V.M.* // *Eurasian Phys. Tech. J.* 2018. V. 15. N 2(30). P. 49.