Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

На правах рукописи

Коротченков Алексей Владимирович

Плазмоны и плазмон-экситоны в наноструктурах металл-полупроводник

Специальность 1.3.11 – физика полупроводников

Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

> Научный руководитель: доктор физ.-мат. наук, профессор Кособукин Владимир Артемович

Санкт-Петербург – 2024

Оглавление

	(Стр.
Введени	ие	4
Глава 1	. Теория анизотропного отражения света	
	от слоя металлических наночастиц	9
1.1	Спектроскопия плазмонного анизотропного отражения света	9
1.2	Плазмонная поляризуемость анизотропных наночастиц	12
1.3	Модель слоя металлических наночастиц	14
1.4	Эффективная поляризуемость наночастиц в слое	18
1.5	Вычисление параметров плазмонных резонансов	21
1.6	Определение анизотропии нанокластеров In на поверхности	
	InAs(001)	23
1.7	Выводы к главе 1	30
Глава 2	. Плазмон-экситоны в наноструктурах с квантовыми ямами	31
2.1	Смешанные плазмон-экситонные состояния	31
2.2	Плазмон-экситоны в слое металлических наночастиц	
	вблизи квантовой ямы	32
2.3	Плазмон-экситоны в решётке металлических проволок	
	вблизи квантовой ямы	42
2.4	Выводы к главе 2	47
Глава 3	. Оптическая ориентация горячих экситонов	
	в наноструктурах металл-полупроводник	48
3.1	Введение к главе 3	48
3.2	Возбуждение экситонов в ближнем поле решётки наночастиц	50
3.3	Матрица плотности экситонов	56
3.4	Люминесценция горячих экситонов	60
3.5	Решение кинетического уравнения при учёте	
	энергетической релаксации экситонов	62
3.6	Выводы к главе 3	66
Заключ	ение	67
Список	сокращений и условных обозначений	68

		Стр.
Публик	сации автора по теме диссертации	69
Спи	сок докладов на конференциях	70
Список	слитературы	71
Прилож	кение А. Функции Грина в многослойных структурах	80
A.1	Расчёт ближнего поля наночастиц	83
A.2	Вычисление ближнего поля нанопроволок	
	и одномерных решёточных сумм	85

Введение

В последние десятилетия ведётся активное исследование сложных систем, состоящих из полупроводниковых наноструктур (квантовых ям, точек, нанокристаллов) и металлических включений, поддерживающих локализованные поверхностные плазмоны. Интерес к композитным структурам обусловлен сочетанием оптических свойств электронного газа в металлах и электронных возбуждений (экситонов) в полупроводниках. Плазмоны – коллективные колебания электронного газа, позволяют многократно усиливать и концентрировать электромагнитное поле определённой частоты на масштабах меньше длины волны света [1]. Благодаря этому свойству поверхностных плазмонов возможно резонансное усиление эффектов, связанных с взаимодействием света и вещества. Классическим примером является гигантское комбинационное рассеяние света молекулами, адсорбированными на шероховатой металлической поверхности [2]. Другие применения плазмонов включают увеличение эффективности солнечных элементов [3] или усиление генерации второй гармоники [4] в ближнем поле металлических наноструктур, а также создание из металлических наночастиц оптически активных «метаповерхностей», которые позволяют управлять поляризацией света [5]. Широкое применение получила идея оптического сенсора, регистрирующего присутствие определённых молекул в газовых или жидких средах по изменению частоты поверхностного плазмона в металлической наноструктуре [6].

Свойства поверхностных плазмонов, такие как частота резонанса и конфигурация электромагнитного поля, оказываются чувствительными к диэлектрической проницаемости окружающей среды и геометрии металлических включений. В связи с этим обстоятельством, вместе с развитием технологии изготовления плазмонных структур было разработано множество аналитических и численных методов моделирования их оптических свойств [7]. Весьма распространённым типом плазмонных структур являются массивы металлических наночастиц субволнового размера, образующих плоские или трёхмерные решётки. Для описания плазмонов в таких структурах часто применяется модель дискретных диполей [8], в которой металлические наночастицы заменяются электрическими (и магнитными) диполями с поляризуемостью, обладающей резонансом на частоте плазмона в изолированной частице. Например, дипольная модель применялась для оценки анизотропии формы металлических нанокластеров, выявленной при помощи метода спектроскопии анизотропного отражения света [9]. В данном случае наночастицы In были получены на поверхности полупроводника InAs электрохимическим методом, однако в настоящее время развиваются альтернативные способы формирования металлических нанокластеров на поверхности кристаллов [10] или непосредственно в объёме полупроводника [11].

Полупроводниковые гетероструктуры являются одним из основных предметов исследований в физике твердого тела с тех пор, как на их основе был создан непрерывно излучающий лазерный светодиод [12; 13]. Низкоразмерные полупроводниковые структуры привлекательны тем, что их оптические свойства определяются в процессе синтеза, а в случае двумерных материалов – варьируются при помощи окружающей среды. В совокупности с разнообразием плазмонных наноструктур это позволяет создавать квантовые ямы или квантовые точки, в которых частота оптических переходов оказывается близкой к частоте поверхностных плазмонов. В таком случае можно ожидать возникновения гибридных состояний электромагнитного поля и экситона.

Свойства наноструктур металл-полупроводник и наблюдаемые в них физические явления определяются эффективностью взаимодействия электромагнитной моды и экситона, которая выражается соотношением между константой взаимодействия и скоростями затухания экситона и плазмона. Режим сильной связи экситонов с электромагнитным полем реализуется для квантовых точек в брегговских микрорезонаторах [14], или для экситонов в органических молекулах красителей, нанесённых на поверхность металлических наночастиц [15]. При взаимодействии поверхностных плазмонов и экситонов в полупроводниковых квантовых ямах [16; 17], по всей видимости, реализуется случай слабой связи. При этом константа взаимодействия может превосходить скорость затухания экситона, но оказывается меньше скорости затухания плазмона. В этом случае ожидаются такие явления, как резонанс Фано и электромагнитно индуцированная прозрачность [18; 19]. Кроме того, в режиме слабой связи плазмоны оказывают влияние на скорость излучательной рекомбинации экситонов [20], что может использоваться для увеличения эффективности квантовых источников света.

Таким образом, изучение свойств наноструктур металл-полупроводник является актуальной задачей физики низкоразмерных систем, затрагивающей

фундаментальные вопросы взаимодействия света с веществом и их практические применения.

Целью данной работы является теоретическое исследование плазмонных и плазмон-экситонных возбуждений в наноструктурах, включающих массивы металлических нанокластеров и полупроводниковые квантовые ямы.

Научная новизна работы заключается в следующем:

- Развита самосогласованная теория резонансной спектроскопии анизотропного отражения света от слоя металлических наночастиц, и исследовано влияние анизотропии формы наночастиц и структуры слоя на расщепление частот локализованных плазмонов с двумя ортогональными поляризациями.
- Построена модель плазмон-экситонов для слоя металлических наночастиц вблизи полупроводниковой квантовой ямы. Получены оценки константы взаимодействия плазмонов и экситонов Ванье–Мотта, свидетельствующие о слабой связи этих возбуждений.
- Впервые рассмотрены плазмон-экситоны в наноструктуре, состоящей из одномерной решётки металлических нанопроволок и квантовой ямы в полупроводнике.
- 4. Разработана теория оптической ориентации и выстраивания горячих низкоразмерных экситонов в ближнем поле решётки наночастиц.

Практическая значимость выполненных исследований состоит в разработке теоретического метода описания плазмонов в массивах наночастиц и плазмон-экситонов в наноструктурах металл-полупроводник с квантовыми ямами. Представленные в диссертации результаты показывают, что можно исследовать свойства горячих экситонов (с отличным от нуля импульсом в плоскости квантовой ямы), которые возбуждаются и излучают свет в присутствии решётки металлических наночастиц.

Основные положения, выносимые на защиту:

- 1. Наблюдаемые спектры анизотропного отражения света от слоя металлических нанокластеров являются следствием анизотропии их формы и/или анизотропии их расположения в слое. Величина структурной анизотропии, оцениваемая по наблюдаемым спектрам, имеет порядок нескольких процентов.
- 2. В наноструктурах, содержащих близко расположенные полупроводниковую квантовую яму и слой металлических нанокластеров, взаимодей-

ствие плазмонов и квазидвумерных экситонов приводит к резонансной особенности в виде двух пиков и провала в спектрах отражения и поглощения света. При этом величина константы взаимодействия плазмонов и экситонов превосходит скорость затухания экситона, но оказывается меньше скорости затухания плазмона.

 Решётка металлических наночастиц, расположенная вблизи полупроводниковой квантовой ямы, позволяет исследовать оптическую ориентацию горячих экситонов (вдали от Г-точки), определить времена их энергетической и спиновой релаксации.

Апробация работы. Результаты исследований, вошедших в диссертационную работу, докладывались на международных научных конференциях: «ФизикА. СПб 2016» (Санкт-Петербург, 2016), Зимняя школа по физике полупроводников (Зеленогорск, 2018), «ФизикА. СПб 2018», Совещание по теории твёрдого тела (Санкт-Петербург, 2019), «Nanostructures: Physics and Technology» (Минск, 2020), «Экситоны в конденсированных средах» (Санкт-Петербург, 2022), Нанофизика и Наноэлектроника (Нижний Новгород 2023), Workshop on Wave Phenomena (Санкт-Петербург, 2023). Полученные результаты обсуждались на научных семинарах в ФТИ им. А.Ф. Иоффе и в Университете ИТМО.

Публикации. Основные результаты по теме диссертации опубликованы в 5 статьях в рецензируемых научных журналах, индексируемых базами данных Web of Science и Scopus. Список публикаций автора представлен в конце диссертации.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, трёх глав, заключения, списка литературы и приложения. Общий объём диссертации составляет 86 страниц, включая 22 рисунка и 2 таблицы. Список цитируемой литературы содержит 91 наименование.

В первой главе представлен обзор исследований и практических применений плазмонов в металлических частицах, и сформулирована базовая теоретическая модель, используемая в диссертационной работе. Эта модель применяется для построения теории спектроскопии анизотропного отражения света от массива плазмонных наночастиц, находящихся на диэлектрической подложке. С помощью представленной теории дана интерпретация экспериментальных спектров отражения от слоя нанокластеров индия на поверхности InAs, которые свидетельствуют о различии частот плазмонов с ортогональными поляризациями в плоскости слоя. Получены количественные оценки асимметрии формы наночастиц и структуры слоя, соответствующие наблюдавшимся спектрам анизотропного отражения [A1; A2].

Вторая глава посвящена решению задачи о плазмон-экситонных возбуждениях в сложных структурах, состоящих из массива наночастиц и полупроводниковой квантовой ямы. Изучается структура оптических спектров отражения и поглощения, обусловленная резонансным взаимодействием поверхностных плазмонов и низкоразмерных экситонов. Получены оценки величины константы взаимодействия, которые соответствуют случаю слабой плазмон-экситонной связи. При этом установлено, что спектры отражения и поглощения света обладают двумя максимумами и узким провалом, поведение которых при расстройке резонанса напоминает антипересечение взаимодействующих уровней [А3; А4].

В третьей главе представлена теория оптической ориентации экситонов в квантовой яме при возбуждении через квадратную решётку металлических наночастиц. Если период решётки оказывается в несколько раз меньше длины волны света, с её помощью можно наблюдать люминесценцию горячих экситонов, волновой вектор которых значительно превосходит волновой вектор света. Показано, что и в этом случае измерение степени поляризации люминесценции экситонов в магнитном поле позволит определять их кинетические свойства, такие как времена жизни, энергетической и спиновой релаксации [A5].

Глава 1. Теория анизотропного отражения света от слоя металлических наночастиц

1.1 Спектроскопия плазмонного анизотропного отражения света

В данной главе представлены основные сведения о плазмонах в слоях металлических нанокластеров. Изложенная модель и полученные результаты будут использоваться как основа в последующих разделах диссертационной работы, которые посвящены исследованию сложных систем, содержащих полупроводниковые квантовые ямы. Поверхностные плазмоны в металлических структурах представляют собой колебания плотности электронов проводимости, локализованные вблизи границы металла и окружающей диэлектрической среды [21]. В частности, нас будут интересовать плазмоны в отдельных частицах нанометрового размера, а также коллективные моды, возникающие в результате взаимодействия локализованных плазмонов в массивах наночастиц. В отличие от поверхностных плазмон-поляритонов, которые распространяются вдоль металлической поверхности, локализованные плазмоны возбуждаются непосредственно светом и определяют резонансные оптические свойства структур с металлическими включениями [22]. Одним из ярких примеров является окраска витражей, обусловленная резонансным рассеянием света на металлических наночастицах, присутствующих в объёме витражного стекла [23].

Поверхностные плазмоны находят применение в различных областях науки и технологии, таких как фотовольтаика [24], оптические метаматериалы [25], химические и биологические сенсоры [26]. Для подобных применений чрезвычайно важна возможность настройки частот плазмонных резонансов путём изменения размера, формы или материала наночастиц [7]. Плазмоны позволяют локализовать электромагнитное поле на масштабах меньше длины волны света, усиливать и контролировать излучение флюоресцентных молекул или квантовых точек [27]. Эти свойства металлических нанокластеров лежат в основе нанофотоники и используются для уменьшения размеров оптических устройств, разработки эффективных источников света [28] и создания материалов с контролируемыми оптическими свойствами. Относительно недавно при исследовании оптически анизотропных массивов металлических наночастиц начал применяться дифференциальный метод спектроскопии анизотропного отражения света (RAS). Изначально этот метод использовался для изучения реконструированных поверхностей кристаллов или адсорбированных на них молекул [29]. Измеряется разностный спектр

$$\frac{\Delta R}{R} = 2\frac{R_x - R_y}{R_x + R_y},\tag{1.1}$$

где $R_{x,y}$ - коэффициенты отражения линейно поляризованного света, падающего на поверхность исследуемой структуры по нормали. Оси x и y выбираются вдоль эквивалентных кристаллографических направлений, например, $[1\bar{1}0]$ и [110] в случае поверхности (001) кубического кристалла. При этом отличный от нуля сигнал (1.1) свидетельствует исключительно об оптической анизотропии поверхностного слоя. Типичный масштаб спектра RAS от реконструированной поверхности полупроводника составляет $\Delta R/R \sim 10^{-3}$ [30].

В работе [31] методика RAS была применена для исследования анизотропного слоя нанокластеров In на поверхности InAs(001). На изображениях изучавшейся структуры, приведенных на Рис. 1.1, видны частицы размером



Рис. 1.1 — Изображение слабо анизотропного слоя нанокластеров In на поверхности InAs(001), полученное при помощи (а) сканирующего электронного и (b) атомно-силового микроскопа [31].



Рис. 1.2 — Спектры анизотропного отражения (1.1) от различных участков массива наночастиц индия на поверхности InAs(001) [31].

30-60 нм, расположенные вплотную друг к другу и образующие неупорядоченный слой, который на первый взгляд не обладает заметной анизотропией. Однако измеренные спектры RAS (Рис. 1.2) свидетельствуют о присутствии скрытой анизотропии слоя наночастиц, проявляющейся в оптических свойствах структуры. Эти спектры имеют масштаб $\Delta R/R \sim 10^{-1}$ и обладают резонансной особенностью в области $\hbar\omega = 3 - 3.5$ эВ, что качественно отличает их от спектра реконструированной поверхности InAs(001). В этой связи авторы интерпретировали измеренные спектры RAS с помощью поверхностных плазмонов, частоты которых немного отличаются для двух ортогональных поляризаций падающего света [32].

Другой тип спектров анизотропного отражения наблюдался для слоя нанокластеров золота, выращенных на нитридизованной поверхности GaAs(001) [33]. В этом случае металлические нанокластеры образуют цепочки, ориентированные вдоль направления [110] химических связей на поверхности кристалла (Рис. 1.3). Широкая резонансная особенность в спектрах RAS вблизи энергии $\hbar \omega = 2$ эВ (Рис. 1.4) соответствует плазмонам, поляризованным вдоль выделенного направления.



Рис. 1.3 — АСМ-изображение слоя нанокластеров золота, приготовленных на нитридизованной поверхности GaAs(001) [33]. Заметная структурная анизотропия слоя состоит в наличии цепочек нанокластеров, выделенных белыми контурами.



Рис. 1.4 — Спектры RAS для структуры Au/N/GaAs, изучавшейся в работе [33]. Числа в порядке возрастания соответствуют различному времени отжига, способствующего формированию нанокластеров из плёнки золота.

Анизотропное отражение света от металлических наночастиц наблюдалось и в работе [34], где исследовались плёнки островков In на поверхности GaAs(001). Однако полученные спектры RAS не обладали выраженным резонансным характером и были интерпретированы при помощи модели эффективной среды [35] для анизотропного слоя с металлическими включениями. Как следствие, авторам не удалось получить реалистичную оценку параметров, описывающих анизотропию формы наночастиц или их расположения в слое. В случае резонансных спектров анизотропного отражения отличие частот плазмонов для двух поляризаций было объяснено в работе [31] с помощью модели решётки анизотропных нанокластеров. Частицы субволнового размера при этом моделировались эллипсоидами, для которых была получена оценка отношения полуосей $a_y/a_x \approx 1.06$ в качестве основного параметра, отвечающего за анизотропное отражение света. Однако полученный результат имел предварительный характер, поскольку авторами не был исследован вклад анизотропии решётки в спектр анизотропного отражения от массива нанокластеров. В связи с этим возникла необходимость развития модели анизотропного слоя наночастиц, учитывающей влияние структуры слоя на частоты плазмонных резонансов.

1.2 Плазмонная поляризуемость анизотропных наночастиц

Металлические наночастицы представляют собой базовый элемент наноплазмоники. Их оптические свойства сильно зависят от геометрии, размера и химического состава, в том числе окружающей среды [7]. Обычно наночастицы исследуются в коллоидных растворах или в составе композитных материалов, усреднённые свойства которых определяются в рамках моделей эффективной среды [22]. С другой стороны, развитие литографических методов позволило создавать упорядоченные массивы металлических наночастиц, свойства которых определяются коллективными плазмон-поляритонными резонансами, возникающими в результате взаимодействия локализованных плазмонов [8].

Прежде чем изучать плазмоны в слое металлических нанокластеров, мы рассмотрим одиночную наночастицу. Её размер предполагается с одной стороны достаточно большим, чтобы можно было использовать макроскопическую диэлектрическую проницаемость и не учитывать поправки, обусловленные рассеянием электронов на поверхности частицы и размерным квантованием [36]. С другой стороны, мы будем рассматривать частицы размерами много меньше длины волны света, при описании которых можно пренебречь запаздыванием [21]. Простая, но достаточно ёмкая аналитическая модель плазмонов получается для металлической частицы в форме эллипсоида с полуосями a_x, a_y, a_z . Изолированный эллипсоид из металла с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega)$, находящийся в среде с диэлектрической проницаемостью ε_1 , обладает дипольной поляризуемостью [37]

$$\chi_{\alpha\beta}^{(0)}(\omega) = \delta_{\alpha\beta} \; \frac{a_x a_y a_z}{3} \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_1 + (\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1) N^{(\alpha)}}.$$
(1.2)

Коэффициенты деполяризации эллипсоида $N^{(\alpha)}$ зависят от соотношения длин его полуосей и определяются выражением

$$N^{(\alpha)} = \frac{a_x a_y a_z}{2} \int_0^\infty \frac{\mathrm{d}s}{\sqrt{(s + a_\alpha^2)^3 (s + a_\beta^2)(s + a_\gamma^2)}},\tag{1.3}$$

где индексы $\alpha \neq \beta \neq \gamma \neq \alpha$ различны. Далее предполагаем, что эллипсоиды состоят из металла с диэлектрической проницаемостью

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma},\tag{1.4}$$

которая соответствует приближению свободных электронов. Здесь ε_{∞} - фоновая диэлектрическая проницаемость металла, ω_p - плазменная частота, γ^{-1} - время релаксации импульса электронов.

Квазиоднородное внешнее поле возбуждает в изолированном металлическом эллипсоиде плазмоны, дипольные моменты которых направлены вдоль его полуосей [38]. Частота дипольного плазмона с поляризацией вдоль полуоси α

$$\omega_{\alpha}^{(0)} = \omega_p \sqrt{N^{(\alpha)} / \varepsilon_*^{(\alpha)}}, \quad \varepsilon_*^{(\alpha)} = \varepsilon_1 + (\varepsilon_\infty - \varepsilon_1) N^{(\alpha)}, \tag{1.5}$$

получается в результате подстановки диэлектрической проницаемости (1.4) в поляризуемость эллипсоида (1.2) и приведения её компонент к резонансному виду

$$\chi_{\alpha\alpha}^{(0)}(\omega) = \frac{a_x a_y a_z}{3\varepsilon_*^{(\alpha)}} \frac{\omega_p^2 - (\varepsilon_\infty - \varepsilon_1)(\omega^2 + i\omega\gamma)}{(\omega_\alpha^{(0)})^2 - \omega^2 - i\omega\gamma}.$$
(1.6)

Представленная в таком виде поляризуемость соответствует плазмонам с частотами $\omega_{\alpha}^{(0)}$ и конечным нерадиационным временем жизни γ^{-1} . Это представление хорошо работает в случае узких плазмонных резонансов с $\gamma \ll \omega_{\alpha}^{(0)}$.

1.3 Модель слоя металлических наночастиц



Рис. 1.5 — Модель прямоугольной решётки металлических наночастиц в форме эллипсоида. Показаны падающая и отражённая волны, поляризованные линейно вдоль оси решётки *x*.

Для описания плазмонного отражения света мы воспользуемся решёточной моделью слоя наночастиц, предложенной в работе [39]. Подобная модель применялась ранее для интерпретации спектров анизотропного отражения от окисленной поверхности GaAs(001) [30], где атомы избыточного мышьяка образовали двумерную квадратную решётку на границе кристалла и плёнки аморфного окисла. Представим наночастицы в виде эллипсоидов, центры которых расположены в узлах прямоугольной решётки с периодами A_x и A_y на расстоянии h от поверхности кристалла. Оси решётки x и y выбираются вдоль кристаллографических направлений [110] и [110], ось z перпендикулярна поверхности, как показано на Рис. 1.5. Плоскость z = 0 разделяет однородные изотропные среды, поэтому локальная диэлектрическая проницаемость системы может быть записана в виде $\varepsilon_{\alpha\beta}(\omega) = \varepsilon^{(0)}(z,\omega)\delta_{\alpha\beta}$, где $\varepsilon^{(0)} = \varepsilon_1$ при z < 0(диэлектрик) и $\varepsilon^{(0)} = \varepsilon_2(\omega)$ при z > 0 (полупроводник).

Будем решать задачу об отражении линейно поляризованной монохроматической волны $\mathbf{E}^{inc} = \mathbf{e}_{\alpha} E^{inc} \exp(i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 z - i\omega t)$, падающей на структуру вдоль оси z из оптически прозрачной среды с $\text{Im}\varepsilon_1 = 0$. Здесь $k_0 = \omega/c$, индекс $\alpha = x, y$ соответствует двум рассматриваемым поляризациям падающей волны. Все поля далее предполагаются зависящими от времени как $\exp(-i\omega t)$, и уравнения составляются для комплексных амплитуд. Невозмущённой считается задача в отсутствие наночастиц, электрическое поле в этом случае обозначим $\mathbf{E}^{(0)}(\mathbf{r},\omega)$. Поляризация наночастиц $\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)$ рассматривается как возмущение, при этом полное электрическое поле $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ может быть найдено в результате решения следующей системы уравнений

$$\begin{bmatrix} \operatorname{rot}_{\alpha\mu}\operatorname{rot}_{\mu\nu} - \varepsilon^{(0)}(z,\omega)k_0^2\delta_{\alpha\nu} \end{bmatrix} \left\{ \begin{array}{c} E_{\nu}^{(0)}(\boldsymbol{\rho},z) \\ D_{\nu\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}-\boldsymbol{\rho}',z,z') \\ E_{\nu}(\boldsymbol{\rho},z) \end{array} \right\} = 4\pi k_0^2 \left\{ \begin{array}{c} 0 \\ \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\delta_{\alpha\beta} \\ P_{\alpha}(\boldsymbol{\rho},z) \end{array} \right\}$$
(1.7)

Переход к таким уравнениям для электрического поля от системы уравнений Максвелла обоснован, например, в [1]. Строки системы (1.7) соответствуют различным уравнениям с общим дифференциальным оператором в левой части, по повторяющимся индексам предполагается суммирование. Переменная $\rho = (x,y)$ выделена в связи с трансляционной инвариантностью невозмущённой задачи.

Решение однородного уравнения из (1.7) при z < 0 представляет собой сумму падающей и отражённой от границы сред волн

$$E_{\alpha}^{(0)}(z) = E^{inc} \exp(i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 z) + r^{(0)}E^{inc} \exp(-i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 z)$$
(1.8)

Амплитудный коэффициент отражения света при нормальном падении в случае изотропных сред не зависит от поляризации и имеет вид

$$r^{(0)} = \frac{\sqrt{\varepsilon_1} - \sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{\varepsilon_1} + \sqrt{\varepsilon_2}}.$$
(1.9)

Второе уравнение в (1.7) определяет тензорную функцию Грина $\hat{D}^{(0)}(\rho - \rho', z, z')$ в слоистой среде с проницаемостью $\varepsilon^{(0)}(z, \omega)$, которая соответствует полю электрического диполя, расположенного в точке (ρ', z'). Компоненты этой функции для структур с числом слоёв ≤ 4 вычислены в [40].

Предположим, что каждая наночастица обладает дипольной поляризуемостью $\chi^{(0)}_{\alpha\beta} = \chi^{(0)}_{\alpha\alpha}(\omega)\delta_{\alpha\beta}$, так что полное поле наводит в ней дипольный момент $p_{\alpha} = \chi^{(0)}_{\alpha\alpha}E_{\alpha}$.¹ Тогда поляризация в правой части уравнения (1.7) имеет вид

$$P_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = \delta(z - z_0) \sum_{\mathbf{n}} \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}) \chi^{(0)}_{\alpha\alpha} E_{\alpha}(z_0, \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}), \qquad (1.10)$$

¹Определённый таким образом дипольный момент р соответствует распределению связанных зарядов на поверхности наночастицы. Поляризация же Р в уравнении (1.7) отвечает сторонним зарядам,

где положения диполей совпадают с центрами наночастиц и задаются координатами $z_0 = -h$ и $\rho_n = e_x A_x n_x + e_y A_y n_y$, $n = (n_x, n_y)$ - номера узлов решётки. При подстановке поляризации (1.10) в систему (1.7) для полного поля получается «интегральное» уравнение

$$E_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = E_{\alpha}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}, z) + \sum_{\mathbf{n}} D_{\alpha\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z, z_0) \ \chi_{\beta\beta}^{(0)} E_{\beta}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0).$$
(1.11)

Его самосогласованное решение будет обсуждаться в Разделе 1.4. Оно основано на определении эффективной поляризуемости наночастиц, связывающей индуцированный дипольный момент с невозмущённым полем $\mathbf{E}^{(0)}$: $p_{\alpha} = \chi_{\alpha\alpha} E_{\alpha}^{(0)}$. Соотношение между величинами $\hat{\chi}$ и $\hat{\chi}^{(0)}$ будет получено позже. Если компоненты диагонального тензора $\chi_{\alpha\alpha}$ известны, вместо уравнения (1.11) для полного поля получаем результат

$$E_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = E_{\alpha}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}, z) + \sum_{\mathbf{n}} D_{\alpha\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z, z_0) \ \chi_{\beta\beta} E_{\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0).$$
(1.12)

Далее удобно рассмотреть преобразование Фурье поля и функции Грина

$$\left\{\mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa},z),\,\hat{G}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa};z,z')\right\} = \int \mathrm{d}^{2}\boldsymbol{\rho}\exp(-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\boldsymbol{\rho})\left\{\mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho},z),\,\hat{G}^{(0)}(\boldsymbol{\rho},z,z')\right\},\,\,(1.13)$$

и перейти в (1.12) к суммированию по обратной решётке при помощи тождества

$$\sum_{\mathbf{n}} \exp(-i\boldsymbol{\kappa}\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}) = \frac{(2\pi)^2}{A_x A_y} \sum_{\mathbf{m}} \delta(\boldsymbol{\kappa} - \mathbf{b}_{\mathbf{m}}), \qquad (1.14)$$

где $\mathbf{b_m} = 2\pi (\frac{m_x}{A_x} \mathbf{e}_x + \frac{m_y}{A_y} \mathbf{e}_y), \mathbf{m} = (m_x, m_y)$ - векторы обратной решётки. Тогда выражение (1.12) принимает вид

$$E_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = E_{\alpha}^{(0)}(z) + \sum_{\mathbf{m}} \exp(i\mathbf{b}_{\mathbf{m}}\boldsymbol{\rho}) G_{\alpha\beta}^{(0)}(\mathbf{b}_{\mathbf{m}}; z, z_0) \frac{\chi_{\beta\beta}}{A_x A_y} E_{\beta}^{(0)}(z_0).$$
(1.15)

Полное электрическое поле (1.15) содержит вклады с волновыми векторами κ в плоскости слоя, равными векторам обратной решётки $\mathbf{b}_{\mathbf{m}}$. Однако соответствующие $\mathbf{b}_{\mathbf{m}} \neq 0$ компоненты функции Грина оказываются затухающими $G_{\alpha\beta}^{(0)}(\mathbf{b}_{\mathbf{m}}; z, z_0) \sim \exp(-|\mathbf{b}_{\mathbf{m}}| |z - z_0|)$ в случае короткопериодных решёток, для которых $|\mathbf{b}_{\mathbf{m}}| \gg k_0$. Другими словами, дифракция света на рассматриваемой решётке не наблюдается. Оставляя только вклад с $\mathbf{b}_{\mathbf{m}} = 0$, неисчезающий на поэтому диполи $\mathbf{p} = \hat{\chi}^{(0)} \mathbf{E} = \hat{\chi} \mathbf{E}^{(0)}$ далее следует домножить на ε_1 . Эта неточность не повлияла на результаты Главы 1, полученные для $\varepsilon_1 = 1$, и была исправлена в следующих главах диссертации. большом расстоянии от слоя частиц, получим амплитудный коэффициент отражения света $r_{\alpha} = r^{(0)} + \Delta r_{\alpha}$. Он состоит из коэффициента отражения от границы сред $r^{(0)}$ и зависящей от поляризации добавки, которая обусловлена решёткой наночастиц

$$\Delta r_{\alpha} = \frac{2\pi i k_0}{\sqrt{\varepsilon_1}} \frac{\chi_{\alpha\alpha}}{A_x A_y} \left(\exp^{-i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 h} + r^{(0)} \exp^{-i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 h} \right)^2.$$
(1.16)

Коэффициенты поляризованного отражения света $R_{\alpha} = \left| r^{(0)} + \Delta r_{\alpha} \right|^2$.

Итак, анизотропное отражение света (1.1) от рассматриваемой структуры может быть связано с анизотропией эффективной поляризуемости диполей в плоскости слоя $\chi_{xx} \neq \chi_{yy}$. Конкретный вид зависимостей $\chi_{\alpha\alpha}(\omega)$ на данном этапе неизвестен, однако в рамках феноменологического описания плазмонного отражения удобно заменить неизвестные резонансные функции выражением

$$\frac{\omega}{c} \frac{\chi_{\alpha\alpha}(\omega)}{A_x A_y} \approx \frac{\Omega^2}{\omega_{\alpha}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}.$$
(1.17)

Такое представление соответствует наличию в системе плазмонов, которые возбуждаются при нормальном падении света в двух ортогональных поляризациях. При этом экспериментальные спектры RAS можно интерпретировать как следствие отличия частот плазмонов ω_{α} с различными поляризациями $\alpha = x, y$. Параметры Γ и Ω , определяющие ширину и амплитуду резонансов, для обеих поляризаций можно считать одинаковыми. Тогда, варьируя значения всего



Рис. 1.6 — Теоретические спектры поляризованного отражения $R_{x,y}$ и анизотропного отражения $\Delta R/R$ (1.1) при различном соотношении ширины Γ и расстояния $\omega_x - \omega_y$ между плазмонными резонансами: *а* отвечает случаю $\omega_x - \omega_y < \Gamma$, *b* - $\omega_x - \omega_y \gg \Gamma$.

четырёх параметров в выражении (1.17), можно получить различные феноменологические спектры анизотропного отражения, показанные на Рис. 1.6. Как видно, экспериментальные спектры RAS на Рис. 1.2 соответствуют случаю малого отличия частот резонансов $|\omega_x - \omega_y| < \Gamma$. Результаты подгонки теоретических спектров $\Delta R/R$ под наблюдавшиеся в эксперименте [31] представлены и проанализированы в Разделе 1.6.

1.4 Эффективная поляризуемость наночастиц в слое

В этом разделе мы продолжим рассматривать слой металлических наночастиц и получим выражение для их эффективной поляризуемости в решётке. Исходной характеристикой наночастиц является анизотропная поляризуемость $\hat{\chi}^{(0)}$, которая входит в уравнение (1.11) для полного поля. Его самосогласованное решение основано на следующем представлении дипольного момента, наведённого на частице в точке ρ_n

$$\mathbf{p}_{\mathbf{n}} = \hat{\chi}^{(0)} \mathbf{E}'(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0) = \int d^2 \boldsymbol{\rho}' \hat{\chi}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}} - \boldsymbol{\rho}') \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}', z_0).$$
(1.18)

В этом выражении вводится эффективная поляризуемость $\hat{\chi}$ частицы в слое, которая связывает индуцированный дипольный момент с невозмущённым полем $\mathbf{E}^{(0)}$. С другой стороны, тот же дипольный момент создаётся действующим полем $\mathbf{E}'(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0)$, отличающимся от полного поля E исключением расходящегося вклада от рассматриваемого диполя.

Решение уравнения (1.11) можно в принципе получить при произвольном невозмущённом поле $\mathbf{E}^{(0)}$, и затем перейти к интересующему нас случаю нормального падения света (1.8). Учитывая представление дипольных моментов (1.18) в уравнении (1.11), получим обобщение выражения (1.12) для полного поля

$$\mathbf{E}(\boldsymbol{\rho}, z) = \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}, z) + \sum_{\mathbf{n}} \hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z, z_0) \int d^2 \boldsymbol{\rho}' \hat{\chi}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}} - \boldsymbol{\rho}') \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}', z_0). \quad (1.19)$$

Далее подставим это поле в уравнение (1.18) и получим уравнение для эффективной поляризуемости диполей (где \hat{I} - единичный тензор)

$$\hat{\chi}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}-\boldsymbol{\rho}) = \hat{\chi}^{(0)} \left[\hat{I}\delta(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}-\boldsymbol{\rho}) + \sum_{\mathbf{n}'} \hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}-\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}'},z_0,z_0) \ \hat{\chi}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}'}-\boldsymbol{\rho}) \right]. \quad (1.20)$$

Чтобы обратить это уравнение, совершим его Фурье-преобразование по переменной ρ , введя компоненты $\hat{\chi}(\kappa) = \int d^2 \rho \exp(-i\kappa\rho) \hat{\chi}(\rho)$. Тогда для Фурье-образа эффективной поляризуемости находим

$$\hat{\chi}(\boldsymbol{\kappa}) = \left[\hat{I} - \hat{\chi}^{(0)} \sum_{\mathbf{n}} \hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0, z_0) e^{-i\boldsymbol{\kappa}\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}}\right]^{-1} \hat{\chi}^{(0)}.$$
(1.21)

Штрих над знаком суммирования означает исключение расходящегося вклада в функции $\hat{D}^{(0)}(\mathbf{0}, z_0, z_0)$, который соответствует самодействию диполя.

Смысл найденной поляризуемости становится понятен, если перейти к Фурье-образу выражения (1.19) и воспользоваться тождеством (1.14)

$$\mathbf{E}(\boldsymbol{\kappa}, z) = \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa}, z) + \hat{G}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa}; z, z_0) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\boldsymbol{\kappa}\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}} \int d^2 \boldsymbol{\rho}' \, \hat{\chi}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}} - \boldsymbol{\rho}') \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}', z_0) =$$
$$= \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa}, z) + \hat{G}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa}; z, z_0) \frac{\hat{\chi}(\boldsymbol{\kappa})}{A_x A_y} \sum_{\mathbf{m}} \mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa} - \mathbf{b}_{\mathbf{m}}, z_0). \quad (1.22)$$

Здесь учитывается равенство $\hat{\chi}(\kappa - \mathbf{b_m}) = \hat{\chi}(\kappa)$, которое явно следует из решения (1.21) с учётом $\exp(i\mathbf{b_m} \cdot \boldsymbol{\rho_n}) = 1$. Таким образом, если невозмущённое поле соответствует волне с проекцией вектора κ в плоскости решётки $\mathbf{E}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}, z) \sim \exp(i\kappa\boldsymbol{\rho})$, то полное поле состоит из рассеянных волн с волновыми векторами $\kappa + \mathbf{b_m}$ в плоскости границы сред. Эффективная поляризуемость $\hat{\chi}(\kappa,\omega)$ описывает поляризационный отклик наночастиц на периодическое в плоскости решётки внешнее поле с учётом эффекта локального поля. Отметим, что полученное выражение для тензора $\hat{\chi}$ содержит обратную матрицу $[\hat{I} - \hat{\chi}^{(0)} \sum_{\mathbf{n}} {}^{\prime} \hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho_n}, z_0, z_0) e^{-i\kappa\boldsymbol{\rho_n}}]^{-1}$. Следовательно, корни уравнения

$$\det\left[\hat{I} - \hat{\chi}^{(0)} \sum_{\mathbf{n}} \hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0, z_0) e^{-i\boldsymbol{\kappa}\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}}\right] = 0$$
(1.23)

определяет дисперсию плазмонов в рассматриваемой системе, которые проявляются в виде резонансов в отклике на внешнее поле.

Представленная решёточная модель часто применяется для моделирования искусственных материалов с необычными оптическими свойствами [8]. Например, в работе [41] рассматривалась аналогичная модель поверхностного слоя и исследовались необычные поляризационные свойства волн, распространяющихся вдоль структурированной поверхности. В следующей главе в рамках рассмотренной модели будет исследоваться взаимодействие плазмонных мод в слое наночастиц с экситонами в квантовой яме [42].

В задаче об анизотропном отражении свет взаимодействует с модой плазмонов с волновым вектором $\kappa = 0$ в решётке наночастиц. При этом решение (1.22) переходит в (1.15), если положить $\mathbf{E}^{(0)}(\kappa,z) = (2\pi)^2 \delta(\kappa) \mathbf{E}^{(0)}(z)$. Как и предполагалось ранее, тензор $\hat{\chi} \equiv \hat{\chi}(\mathbf{0})$ оказывается диагональным в выбранных осях (Рис. 1.5). Чтобы наглядно продемонстрировать эффект локального поля в короткопериодной решётке наночастиц, мы вычислим входящую в (1.23) сумму в квазистатическом пределе, пренебрегая запаздыванием. При этом в функциях Грина $\hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0, z_0)$, отвечающих за взаимодействие плазмонов в решётке, следует сохранить только ближнее поле [1]. В однородном пространстве, как показано в Приложении А.1, оно совпадает с электростатическим полем диполя

$$D_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\varepsilon_1} \frac{3\mathbf{r}_{\alpha}\mathbf{r}_{\beta} - \delta_{\alpha\beta}\mathbf{r}^2}{|\mathbf{r}|^5}.$$
 (1.24)

Если же диполь р расположен в среде ε_1 точке $(0, z_0)$ вблизи плоской границы сред, к его собственному полю (1.24) следует добавить поле диполя изображения $\mathbf{p}^{(i)} = (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/(\varepsilon_1 + \varepsilon_2) (p_x \mathbf{e}_x + p_y \mathbf{e}_y - p_z \mathbf{e}_z)$, расположенного в точке $(0, -z_0)$

$$E_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = D_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\boldsymbol{\rho}, z - z_0) \ p_{\beta} + D_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\boldsymbol{\rho}, z + z_0) \ p_{\beta}^{(i)}, \quad z < 0.$$
(1.25)

Тогда полное поле $E_{\alpha}(z_0)$, действующее на диполь в произвольном узле решётки n, может быть представлено в виде $E_{\alpha} = E_{\alpha}^{(0)} + E_{\alpha}^{(d)} + E_{\alpha}^{(i)}$. Здесь $\mathbf{E}^{(0)}$ невозмущённое поле, поле $\mathbf{E}^{(d)}$ создаётся в узле n всеми остальными диполями, а поле $\mathbf{E}^{(i)}$ создаётся всеми изображениями диполей, включая изображение рассматриваемого диполя. Выполняя суммирование по решётке, получаем

$$E_{\alpha}^{(d)} = S_{\alpha}^{(d)} \frac{\chi_{\alpha\alpha}^{(0)}}{\varepsilon_1 A_{\alpha}^3} E_{\alpha}, \quad E_{\alpha}^{(i)} = S_{\alpha}^{(i)} \frac{\chi_{\alpha\alpha}^{(0)}}{\varepsilon_1 A_{\alpha}^3} \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} E_{\alpha}, \quad \alpha = x, y,$$
(1.26)

где $S_{\alpha}^{(d,i)}$ соответствуют диагональным компонентам суммы $\sum_{\mathbf{n}} '\hat{D}^{(0)}(\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}}, z_0, z_0)$ из (1.21), вычисленной в квазистатическом пределе. Выпишем дипольные суммы, выделив в последней вклад собственного изображения, расходящийся при $h \to 0$

$$S_{\alpha}^{(d)} = A_{\alpha}^{3} \sum_{\mathbf{n}\neq\mathbf{0}} \frac{3\rho_{\mathbf{n},\alpha}^{2} - \rho_{\mathbf{n}}^{2}}{\rho_{\mathbf{n}}^{5}},$$
(1.27)

$$S_{\alpha}^{(i)}(h) = -\left(\frac{A_{\alpha}}{2h}\right)^3 + A_{\alpha}^3 \sum_{\mathbf{n}\neq\mathbf{0}} \frac{3\rho_{\mathbf{n},\alpha}^2 - \rho_{\mathbf{n}}^2 - 4h^2}{(\rho_{\mathbf{n}}^2 + 4h^2)^{5/2}}.$$
(1.28)

Приравнивая $p_{\alpha} = \chi^{(0)}_{\alpha\alpha} E_{\alpha} = \chi_{\alpha\alpha} E^{(0)}_{\alpha}$, получаем окончательное выражение для квазистатической эффективной поляризуемости наночастиц

$$\chi_{\alpha\alpha} = \chi_{\alpha\alpha}^{(0)} \left[1 - \frac{\chi_{\alpha\alpha}^{(0)}}{\varepsilon_1 A_{\alpha}^3} \left(S_{\alpha}^{(d)} + \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} S_{\alpha}^{(i)}(h) \right) \right]^{-1}.$$
 (1.29)

Эта величина входит в коэффициент отражения света от слоя наночастиц при нормальном падении (1.16).

1.5 Вычисление параметров плазмонных резонансов

Как отмечалось в Разделе 1.3, для моделирования спектров анизотропного отражения оказывается удобным представление эффективной поляризуемости (1.17), соответствующее двум ортогонально поляризованным плазмонным модам. В связи с этим установим связь феноменологических параметров плазмонов ω_{α} , Γ и Ω с параметрами микроскопической модели слоя частиц. Подставляя поляризуемость отдельной частицы $\chi^{(0)}_{\alpha\alpha}$ (1.6) в (1.29), преобразуем эффективную поляризуемость к резонансному виду (1.17). В результате получаем следующие выражения для параметров плазмонных мод с поляризацией $\alpha = x$ или y:

$$\omega_{\alpha}^{2} = \left(\omega_{\alpha}^{(0)}\right)^{2} \left(1 - \frac{V}{4\pi N^{(\alpha)}} \operatorname{Re} X_{\alpha}\right) / \left(1 - \frac{V}{4\pi} \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1}}{\varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \operatorname{Re} X_{\alpha}\right),$$
(1.30)

$$\Gamma_{\alpha} = \gamma + \frac{V}{4\pi\varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \operatorname{Im} X_{\alpha} \left(\frac{\omega_{p}^{2}}{\omega_{\alpha}} - (\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1})\omega_{\alpha} \right) / \left(1 - \frac{V}{4\pi} \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1}}{\varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \operatorname{Re} X_{\alpha} \right), \quad (1.31)$$

$$\Omega_{\alpha}^{2} = \frac{\omega_{\alpha}}{c} \frac{V}{4\pi A_{x} A_{y} \varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \left(\omega_{p}^{2} - (\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1}) \omega_{\alpha}^{2} \right) / \left(1 - \frac{V}{4\pi} \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1}}{\varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \operatorname{Re} X_{\alpha} \right), \quad (1.32)$$

где введены обозначения

$$X_{\alpha} = \frac{1}{\varepsilon_1 A_{\alpha}^3} \left(S_{\alpha}^{(d)} + \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} S_{\alpha}^{(i)}(h) \right)$$
(1.33)

и $V = \frac{4\pi}{3}a_x a_y a_z$ - объём эллипсоида. Отметим, что решёточная сумма $S^{(i)}$ всегда отрицательна, а коэффициент

$$\mu = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} = \frac{\varepsilon_1 - |\varepsilon_2|^2 - 2i\varepsilon_1 \text{Im}\varepsilon_2}{(\varepsilon_1 + \text{Re}\varepsilon_2)^2 + (\text{Im}\varepsilon_2)^2}$$
(1.34)

обладает $\text{Im}\mu < 0$ и $\text{Re}\mu < 0$ при $|\varepsilon_2| > \varepsilon_1$. Поэтому $\text{Im}X_\alpha > 0$, и ширина резонанса $\Gamma_\alpha > \gamma$ согласно (1.31), то есть вследствие поглощения в полупроводнике плазмон в рассматриваемой структуре затухает быстрее, чем в изолированной наночастице.

В построенной микроскопической модели имеются две причины различия частот плазмонов с ортогональными поляризациями: анизотропия формы частиц $a_x \neq a_y$ и анизотропия решётки $A_x \neq A_y$. Экспериментальные спектры [31] свидетельствуют о том, что в изучавшейся системе различие этих частот мало, $\omega_x - \omega_y \ll \omega_{x,y}$. Поэтому логично вначале рассмотреть изотропную модель (сфероиды с $a_x = a_y$ в квадратной решётке), для которой $\omega_x = \omega_y = \omega_{\parallel}$ и анизотропное отражение отсутствует, $\Delta R/R = 0$. Затем следует добавить малое отклонение от изотропного случая $a_{x,y} = a \mp \Delta a/2$ и $A_{x,y} = A \mp \Delta A/2$, которое приведёт к расщеплению частот плазмонов $\Delta \omega = \omega_x - \omega_y$, близких к среднему значению $\omega_{\parallel} = (\omega_x + \omega_y)/2$. При этом можно пренебречь отличием параметров Γ_{α} и Ω_{α} для плазмонов с $\alpha = x, y$. Раскладывая функции ω_{α} (1.30) по Δa , ΔA , в линейном приближении получаем

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_{\parallel}} = C_a \frac{\Delta a}{a} + C_A \frac{\Delta A}{A}.$$
(1.35)

Коэффициент C_a описывает вклад в расщепление частот $\Delta \omega$, связанный с деформацией сфероидов, а коэффициент C_A связывает расщепление частот с деформацией квадратной решётки. Приведём выражения для этих коэффициентов, помечая индексом || величины, относящиеся к изотропной модели.

$$C_{a} = -\frac{1}{4} \frac{\varepsilon_{1}}{\varepsilon_{*}^{(\alpha)}} \left[1 + \frac{V}{4\pi N_{\parallel} \varepsilon_{*}^{\parallel}} \operatorname{Re} X_{\alpha} \frac{(2\varepsilon_{*}^{\parallel} - \varepsilon_{1} - \frac{V}{4\pi} (\varepsilon_{*}^{\parallel} - \varepsilon_{1}) \operatorname{Re} X_{\alpha})}{(1 - \frac{V}{4\pi N_{\parallel}} \operatorname{Re} X_{\alpha})(1 - \frac{V}{4\pi} \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1}}{\varepsilon_{*}^{\parallel}} \operatorname{Re} X_{\alpha})} \right] \times \frac{1}{1 - \eta^{2}} \frac{(5 - 2\eta^{2})\eta^{2} f - 3\operatorname{arctg} f}{\operatorname{arctg} f - \eta^{2} f}, \quad (1.36)$$

где $\eta = a_z/a$ - отношение полуосей сплюснутого сфероида, $f = \sqrt{1-\eta^2}/\eta.$

$$C_A = -\frac{3}{2} \frac{V}{4\pi A^3 N_{\parallel} \varepsilon_*^{\parallel}} \frac{\sigma_{\parallel}^{(d)} + \operatorname{Re}\mu \, \sigma_{\parallel}^{(i)}}{(1 - \frac{V}{4\pi N_{\parallel}} \operatorname{Re}X_{\alpha})(1 - \frac{V}{4\pi} \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_1}{\varepsilon_*^{\parallel}} \operatorname{Re}X_{\alpha})}, \qquad (1.37)$$

где решёточные суммы

$$\sigma_{\parallel}^{(d)} = \sum_{\mathbf{n}\neq\mathbf{0}} n_x^2 \, \frac{3n_x^2 - 7n_y^2}{\left(n_x^2 + n_y^2\right)^{7/2}}, \quad \sigma_{\parallel}^{(i)} = \sum_{\mathbf{n}} n_x^2 \, \frac{3n_x^2 - 7n_y^2 - 2(2h/A)^2}{\left(n_x^2 + n_y^2 + (2h/A)^2\right)^{7/2}}, \tag{1.38}$$

получаются при дифференцировании сумм (1.27) и (1.28)

$$\sigma_{\parallel}^{(d,i)} = \frac{A^4}{3} \left[\left(\frac{\partial}{\partial A_y} - \frac{\partial}{\partial A_x} \right) \frac{S_x^{(d,i)}}{A_x^3} \right]_{A_x = A_y = A}.$$
(1.39)

С помощью полученных выражений можно моделировать положение и расщепление частот плазмонных резонансов, задавая предполагаемую структуру массива металлических частиц. И наоборот, подобрав соответствующие эксперименту параметры резонансов, можно определить оптическую анизотропию массива частиц и оценить соответствующие параметры структуры.

1.6 Определение анизотропии нанокластеров In на поверхности InAs(001)

Применим построенную теорию для интерпретации спектров анизотропного отражения, измеренных для наночастиц индия в работе [31]. Начнём с подгонки экспериментальных спектров RAS с помощью феноменологической модели, где спектры поляризованного отражения (1.16) и спектр $\Delta R/R$ вычисляются с использованием представления (1.17) для эффективной поляризуемости наночастиц $\chi_{\alpha\alpha}$. Данные измерений диэлектрической проницаемости InAs $\varepsilon_2(\omega)$ возьмём из статьи [43]. Результаты приближения теоретическими кривыми трёх спектров RAS, измеренных в различных участках одного и того же массива частиц, представлены на Рис. 1.7*a* и Рис. 1.8*a*,*b*.

На Рис. 1.7*b* показаны спектры поляризованного отражения R_{α} , использованные при расчёте спектра $\Delta R/R$ на Рис. 1.7*a*. Стрелками показаны положения частот плазмонов ω_{α} , которые не вполне совпали с положением особенности в спектре $\Delta R/R$. При подборе параметров резонанса необходимо следить за выполнением физического условия $R_{\alpha} < 1$. Выбранные значения параметров резонансной поляризуемости $\chi_{\alpha\alpha}$ (1.17) приведены в Табл. 1. При подгонке параметры Γ и Ω считались одинаковыми для плазмонов с поляризациями $\alpha = x, y$, а различие частот $\omega_x - \omega_y$ - малым по сравнению с шириной резонанса Γ .

Теперь дадим интерпретацию найденных параметров плазмонов при помощи модели решётки металлических эллипсоидов. Представленный ниже анализ относится к спектру на Рис. 1.7*a*. Как обсуждалось в Разделе 1.5, сперва мы рассмотрим изотропную структуру и приведём к подгоночным значениям частоту



Рис. 1.7 — a - измеренный спектр анизотропного отражения (точки) и результат его подгонки с использованием представления (1.17) (сплошная кривая). b - соответствующие теоретические спектры поляризованного отражения. Стрелками показаны частоты плазмонных резонансов $\omega_x > \omega_y$.



Рис. 1.8 — *а,b* - спектры анизотропного отражения, измеренные для других участков того же массива наночастиц (точки), и результаты их подгонки с помощью представления (1.17) (сплошные кривые). Подобранные параметры плазмонных резонансов приведены в Табл. 1.

Спектр	$\hbar \omega_x$, эВ	$\hbar \omega_y$, эВ	$\hbar \omega_{\parallel}$, эВ	$\hbar\Delta\omega$, эВ	$\hbar \Gamma$, эВ	$\hbar \Omega$, эВ
Рис. 1.7а	3.52	3.40	3.46	0.12	1.17	0.77
Рис. 1.8a	3.46	3.34	3.40	0.12	1.07	0.78
Рис. 1.8b	3.71	3.58	3.645	0.13	1.17	0.78

Табл. 1 — Параметры плазмонных резонансов, полученные при подгонке спектров $\Delta R/R$.

 $ω_{\parallel}$ и параметры Γ и Ω вырожденных плазмонов. Параметры диэлектрической проницаемости (1.4) для индия были подобраны в соответствии с результатами эксперимента [44] в интересующем нас диапазоне энергий 2 эВ < $\hbar \omega$ < 6 эВ: $\varepsilon_{\infty} = 1.2, \ \hbar \omega_p = 12.8$ эВ и $\hbar \gamma = 1$ эВ.

Основным параметром является частота плазмонной моды с поляризацией в плоскости слоя наночастиц. Эта частота понижается и может быть приведена к значению $\hbar\omega_{\parallel} \approx 3.5$ эВ в результате сплющивания сфероидов и приближения их к границе сред, а также в результате усиления взаимодействия локализованных плазмонов при сближении наночастиц. Чтобы продемонстрировать все перечисленные эффекты, построим на одном графике (Рис. 1.9*a*) зависимости частот плазмонов $\omega_{\parallel}^{(0)}$ в изолированном сфероиде, $\omega_{\parallel}^{(s)}$ в одиночном сфероиде вблизи границы сред и ω_{\parallel} в массиве сфероидов вблизи поверхности от отношения полуосей сфероида $\eta = a_z/a$. Выражение для частоты $\omega_{\parallel}^{(s)}$ получается из (1.30), если пренебречь решёточной суммой $S_{\parallel}^{(d)}$ (1.27) и сохранить в сумме $S_{\parallel}^{(i)}$ (1.28) только первого слагаемое, которое отвечает взаимодействию диполя с собственным изображением.

$$\omega_{\alpha}^{(s)} = \omega_{\alpha}^{(0)} \sqrt{\left(1 - \frac{\eta}{24} \left(\frac{a}{h}\right)^3 \frac{\mathrm{Re}\mu}{\varepsilon_1 N_{\parallel}}\right) / \left(1 - \frac{\eta}{24} \left(\frac{a}{h}\right)^3 \frac{\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1 \varepsilon_*^{\parallel}} \mathrm{Re}\mu\right)}.$$
 (1.40)

Переход от частоты $\omega_{\parallel}^{(0)}$ (кривая 1) к частоте $\omega_{\parallel}^{(s)}$ (кривые 2, 2' и 2") демонстрирует эффект сил изображения, который определяется параметром $p_h = h/a_z$. Кривые 2, 2' и 2" соответствуют фиксированным значениям $p_h = \{3; 2; 1.1\}$, а изолированной частице соответствует $p_h = \infty$. Как видно из Рис. 1.9*a*, при конечном p_h частота плазмона $\omega_{\parallel}^{(s)}$ сильно уменьшается по сравнению с $\omega_{\parallel}^{(0)}$ и даже стремится к 0 при некотором критическом значении η . Однако известно [2], что модель изображений точечных зарядов имеет предел применимости, и определяемые в ней геометрические параметры являются эффективными. В рассматриваемой модели не следует переходить к малым расстояниям до поверхности, на которых взаимодействие диполя с изображением становится сильнее



Рис. 1.9 — Зависимости феноменологических параметров резонанса от отношения полуосей сфероида $\eta=a_z/a.$ а - частоты плазмонов: $\omega_{\parallel}^{(0)}$ в изолированном сфероиде (1); $\omega_{\parallel}^{(s)}$ в одиночном сфероиде вблизи поверхности полупроводника при $p_h=3$ (2), $p_h=2$ (2') и $p_h=1.1$ (2''); ω_{\parallel} в слое сфероидов при $p_h = 3$ (3). b - параметр затухания Γ , с - сила осциллятора Ω плазмонной моды в слое сфероидов при $p_h = 3$. Вычислено при a = 20 нм, A = 50 нм. Жирные отрезки кривых соответствуют выполнению условия $R_{\alpha} < 1$. Выбранное значение $a_z/a = 0.2$ соответствует

значениям параметров резонанса, определённым при подгонке спектра Рис. 1.7а.

остальных взаимодействий. Поэтому при подборе микроскопических параметров решётки мы будем следить за выполнением критерия $S^{(i)}(h) \sim S^{(d)}$. Переход от частоты $\omega_{\parallel}^{(s)}$ к ω_{\parallel} (от кривой 2 к кривой 3 на Рис. 1.9*a*) соответствует учёту взаимодействия между плазмонами в отдельных частицах, которое приводит к дополнительному понижению частоты. Кривая 3 построена при $p_h = 3$ и A/a = 2.5, и её нужно сравнивать с кривой 2, соответствующей $A/a = \infty$. Видно, что в области значительного уменьшения частоты резонанса взаимодействие диполей решётки оказывается несущественным по сравнению с взаимодействием диполя с собственным изображением.

На Рис. 1.9*b*,*c* построены зависимости параметров Γ и Ω от отношения полуосей сфероидов a_z/a , при фиксированных параметрах $p_h = 3$, A/a = 2.5и A = 50 нм. Сила осциллятора Ω является единственным зависящим от масштаба системы параметром, так как выражение (1.29) для поляризуемости $\hat{\chi}$ было получено в квазистатическом приближении. Выделенные участки кривых соответствуют выполнению физических ограничений $R_{\alpha} < 1$ и $S^{(i)}(h) \sim S^{(d)}$. Параметры p_h , A/a и A были подобраны таким образом, что при физически допустимом значении $a_z/a \approx 0.2$ были достигнуты значения всех трёх параметров ω_{\parallel} , Γ и Ω , близкие к найденным при подгонке. В результате были определены геометрические параметры квадратной решётки сфероидов: a = 20, A = 50, $a_z = 4$ и h = 12 нм.

Далее, учитывая малое расщепление частот плазмонов $\omega_x \neq \omega_y$, определим соответствующие значения величин $\Delta a/a$ и $\Delta A/A$, характеризующих структурную анизотропию слоя металлических кластеров. Для этого при найденных параметрах изотропной модели вычислим согласно (1.36), (1.37) коэффициенты анизотропии $C_a = 1.12$ и $C_A = -0.28$. Подставляя найденные при подгонке спектров параметры $\hbar \omega_{\parallel} = 3.46$ эВ и $\hbar \Delta \omega = 0.12$ эВ в (1.35), определяем соответствующие наблюдаемому расщеплению частот деформацию сфероидов $\Delta a/a \approx a_y/a_x - 1 \approx 3.1\%$ при $\Delta A = 0$ и деформацию решётки $\Delta A/A \approx A_y/A_x - 1 \approx -12.6\%$ при $\Delta a = 0$. Таким образом, расщепление частот $\hbar \Delta \omega > 0$ свидетельствует о сжатии сфероидов или/и о растяжении решётки вдоль оси x. Выделить один из этих факторов только на основе исследования спектров анизотропного отражения не представляятся возможным.

Наконец, мы рассчитали теоретический спектр RAS в микроскопической модели (1.29), используя подобранные значения параметров решётки и оценку деформации эллипсоидов $a_y/a_x = 1.03$. Его сравнение с экспериментальным



Рис. 1.10 — a - экспериментальный спектр RAS (черная кривая) и теоретический спектр $\Delta R/R$ (красная кривая), вычисленный в модели прямоугольной решётки эллипсоидов. b - соответствующие теоретические спектры поляризованного отражения R_x , R_y . Использованы значения параметров a = 20, A = 50, $a_z = 4$, h = 12 нм и $a_y/a_x = 1.03$.

спектром на Рис. 1.10*а* подтверждает справедливость интерпретации подгоночных параметров плазмонов в рамках предложенной микроскопической модели.

1.7 Выводы к главе 1

В первой главе представлена теория анизотропного отражения света от массива металлических наночастиц на поверхности полупроводника. Согласно предложенной теории, резонансная особенность в спектрах анизотропного отражения обусловлена расщеплением частот коллективных плазмонных мод с ортогональными поляризациями. В рамках модели решётки эллипсоидов получены аналитические выражения, связывающие параметры плазмонных резонансов с предполагаемой структурой слоя наночастиц. В случае близких по частоте резонансов найдены коэффициенты, в линейном приближении связывающие расщепление частот плазмонов с анизотропией формы частиц и анизотропией решётки.

Представленная теория применена для интерпретации спектров анизотропного отражения света от нанокластеров индия на поверхности InAs [31]. В результате определены модельные значения размеров частиц и расстояний между ними, согласующиеся с данными атомно-силовой и сканирующей электронной микроскопии. Затем найдены значения модельных параметров, отвечающих за оптическую анизотропию слоя частиц: отношение полуосей эллипсоида $a_y/a_x \approx 1.03$, или отношение периодов решётки $A_x/A_y \approx 1.13$. Предполагается, что эти параметры применимы в качестве средних для описания реальных слабо разупорядоченных массивов наночастиц. Отметим, что стандартные методы диагностики наноструктур не позволяют обнаружить столь слабую анизотропию массива наночастиц. Поэтому метод RAS в совокупности с предложенной теорией является одним из наиболее чувствительных инструментов исследования металлических наночастиц.

Глава 2. Плазмон-экситоны в наноструктурах с квантовыми ямами

2.1 Смешанные плазмон-экситонные состояния

В предыдущей главе были рассмотрены плазмоны и обусловленный ими оптический отклик массива металлических наночастиц на диэлектрической подложке. Теперь мы рассмотрим оптические свойства сложной структуры, состоящей из металлических наночастиц и полупроводниковой квантовой ямы с квазидвумерными экситонами. Как плазмоны в металлах, так и экситоны в полупроводниках являются коллективными электронными возбуждениями, энергия которых находится в видимом спектральном диапазоне [45]. В наноструктурах металл-проводник плазмоны и экситоны сосуществуют и взаимодействуют друг с другом. Установлено, что в результате взаимодействия плазмоны могут как гасить, так и усиливать излучение экситонов [46—48]. Исследование гибридизованных плазмон-экситонных возбуждений представляется актуальным в свете растущего интереса к искусственным оптическим материалам. Задачей данного раздела работы является оценка константы связи и анализ расщепления, возникающего в оптическом спектре наноструктур металл-полупроводник в результате взаимодействия плазмонов с экситонами Ванье–Мотта.

Известно, что смешанные плазмон-экситонные возбуждения образуются при резонансном взаимодействии поверхностных плазмонов с молекулярными экситонами Френкеля. Опубликовано много работ [49—52], в которых наблюдалось большое плазмон-экситонное расщепление Раби в оптических спектрах систем, представляющих собой металлические наноструктуры с добавлением молекул органических красителей (J-агрегатов). Исследовалось образование связанных состояний плазмонов и молекулярных экситонов [53], динамика обмена энергией и релаксации смешанных возбуждений [54]. Для полупроводниковых экситонов большого радиуса, обладающих меньшим дипольным моментом, эффекты взаимодействия с плазмонами исследовались сравнительно мало [16; 20; 55; 56]. О наблюдении расщепления Раби сообщалось в работе [17], где исследовались оптические спектры квантовой ямы на основе ZnO, находящейся вблизи слоя нанодисков Al. Теория кулоновских плазмон-экситонов в наноструктурах металл-полупроводник была предложена в работах [42; 57], посвященных спектроскопии упругого рассеяния света на металлической наночастице, находящейся вблизи квантовой ямы, и отражения света от слоя таких наночастиц. Разработка теории плазмон-экситонов и систематическая оценка силы плазмон-экситонного взаимодействия является актуальной для развития оптики металл-полупроводниковых наноструктур.

2.2 Плазмон-экситоны в слое металлических наночастиц вблизи квантовой ямы

В данном разделе построена модель плазмон-экситонов, при помощи которой оценивается константа взаимодействия локальных плазмонов и квазидвумерных экситонов. Также анализируется расщепление оптического спектра, возникающее при резонансе этих возбуждений. Рассматривается структура, показанная схематически на Рис. 2.1. В среде с диэлектрической проницаемостью ε_1 на расстоянии h_1 от поверхности полупроводника z = 0 находится слой металлических наночастиц. Предполагается, что частицы в форме одинаковых эллипсоидов вращения (сфероидов) с длинами полуосей *a* в плоскости *xy* и ηa вдоль оси *z* заполняют квадратную решетку с периодом *A* в плоскости $z = -h_1 < 0$. В полупроводнике с фоновой диэлектрической проницаемостью ε_2 на расстоянии h_2 от поверхности находится квантовая яма ширины *l* со средней плоскостью $z = h_2 > 0$. Все геометрические параметры считаются малыми по сравнению с длиной волны света $2\pi/k_0$, где $k_0 = \omega/c$, ω - частота, *c* - скорость



Рис. 2.1 — Геометрия композитной структуры: QW - квантовая яма, NP - слой наночастиц.

света. При этом возбуждения, образованные дипольными плазмонами в наночастицах и нерадиационными («тёмными») экситонами в квантовой яме, можно исследовать в квазистатическом приближении электродинамики, пренебрегая запаздыванием. Связанные моды плазмонов и экситонов образуются вследствие их кулоновского взаимодействия через границу z = 0.

В отсутствие наночастиц структура с квантовой ямой изотропна и трансляционно инвариантна по $\rho = (x,y)$. Для неё решениями уравнений Максвелла являются волны $\sim \exp(i\kappa \cdot \rho)$ с поляризацией p или s, которые в случае $\kappa = \kappa e_x$ имеют компоненты $\mathbf{E}^p = (E_x, 0, E_z)$ и $\mathbf{E}^s = (0, E_y, 0)$ с проекциями $E_\alpha(z;\kappa) \exp(i\kappa x)$. Применительно к модели на Рис. 2.1 мы будем рассматривать p-поляризованные волны и пренебрежём вкладом s-поляризованного поля, которое в квазистатическом приближении имеет малость $\sim k_0^2/\kappa^2$ [42; 57]. Далее индекс поляризации p в формулах опускаем. Методически, сначала мы опишем волны с p-поляризацией при $\kappa < \sqrt{\varepsilon_n}k_0$ и $k_n = \sqrt{\varepsilon_nk_0^2 - \kappa^2}$, n = 1, 2, используя результаты теории квази-2D экситонов [58], а затем перейдём к квазистатическому приближению для описания нерадиационных экситонов с $\kappa \gg k_0$ и $k_n \approx i\kappa$.

Компоненты поля в диэлектрике ε_1 (z < 0) в отсутствие наночастиц, при $\kappa < \sqrt{\varepsilon_1} k_0$ равны

$$E_x(z;\kappa) = E_x^{\rm inc}(\kappa) \left(e^{ik_1 z} + re^{-ik_1 z}\right), \quad E_z(z;\kappa) = \frac{i\kappa}{k_1^2} \frac{dE_x}{dz}.$$
 (2.1)

Выражение (2.1) содержит коэффициент отражения света от полупроводниковой структуры

$$r(\kappa) = \frac{r_{12} + r_{\rm QW} e^{2ik_2h_2}}{1 + r_{12}r_{\rm QW} e^{2ik_2h_2}},$$
(2.2)

котоый выражается через коэффициент отражения света

$$r_{12} = (\varepsilon_1 k_2 - \varepsilon_2 k_1) / (\varepsilon_1 k_2 + \varepsilon_2 k_1)$$
(2.3)

от поверхности полупроводника с $\varepsilon_2 = \varepsilon_b$ и коэффициент $r_{\rm QW}$ отражения от квантовой ямы в однородном полупроводнике. Следуя [58], для квантовой ямы с нелокальной поляризацией квази-2D экситонов в приближении эффективной массы получаем

$$r_{\rm QW} = \frac{i\Gamma_{0,x}}{\omega_x - \omega - i\Gamma - i\Gamma_{0,x}}, \quad \Gamma_{0,x} = \omega_{\rm LT}k_bL.$$
(2.4)

Поскольку мы рассматриваем экситоны с дипольным моментом в плоскости квантовой ямы xy, в выражении (2.4) сохранен только один резонансный вклад с поляризацией вдоль оси x. Здесь ω_x – частота квази-2D экситона с учетом размерного квантования электрона и дырки, их кулоновского взаимодействия и радиационного сдвига. Далее, Γ и $\Gamma_{0,x}$ – скорости нерадиационного и радиационного затухания квази-2D экситона, последняя выражена через продольно-поперечное расщепление $\omega_{\rm LT}$ объёмного экситона с боровским радиусом a_B в материале квантовой ямы [58]. Длина $L = \pi a_B^3 I_c^2/2 \sim l$ порядка ширины квантовой ямы определяется интегралом $I_c = \int dz \cos(k_b z) \Phi(z)$ от огибающей волновой функции $\Phi(z) = \Phi(-z)$ основного состояния экситона, взятой при совпадающих координатах электрона и дырки. Соотношение между L и l является мерой увеличения силы осциллятора квази-2D экситона (скорости радиационного затухания $\Gamma_{0,x}$ при $\kappa = 0$) при уменьшении ширины квантовой ямы [58; 59].

Для металлического наносфероида, находящегося в однородной среде с проницаемостью ε_1 (Im $\varepsilon_1 = 0$), компонента диагонального тензора поляризуемости дипольного плазмона с поляризацией вдоль полуоси α имеет вид [A1]

$$\chi^{0}_{\alpha\alpha}(\omega) = \frac{\eta a^{3}}{3} \frac{(U^{0}_{\alpha})^{2}}{(u^{0}_{\alpha})^{2} - \omega^{2} - i\omega\gamma}.$$
(2.5)

Выражение (2.5) получено для металла с диэлектрической функцией (1.4) в приближении свободных электронов, аналогично формуле (1.6). Частоты плазмонов $u_{\alpha}^{0} = \omega_{p} \sqrt{N^{(\alpha)}/\varepsilon_{*}^{(\alpha)}}$ и величины $U_{\alpha}^{0} = \omega_{p} \sqrt{\varepsilon_{1}}/\varepsilon_{*}^{(\alpha)}$, где $\varepsilon_{*}^{(\alpha)} = \varepsilon_{1} + N^{(\alpha)}(\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_{1})$, зависят от отношения η длин полуосей сфероида (его формы) посредством коэффициентов деполяризации $0 < N^{(\alpha)} < 1$ (1.3), что показано на Рис. 2.2. Далее рассматривается монослой одинаковых сфероидов с центрами в узлах $\rho_{n} = An$ квадратной решетки с периодом A в плоскости $z = -h_{1}$, где $n = n_{x}e_{x} + n_{y}e_{y}$, n_{α} – целые числа.

Кулоновское взаимодействие дипольных плазмонов слоя наночастиц с квази-2D экситонами квантовой ямы приводит к перенормировке поляризуемости (2.5) [57]. В рассматриваемой модели решение задачи отражения света (2.1)–(2.4) от квантовой ямы является нулевым приближением, а слой точечных диполей с плазмонными поляризуемостями (2.5) считается возмущением, аналогично системе уравнений (1.11). При учёте этого резонансного возмущения в рамках самосогласованной теории [42] мы приходим к представлению о плазмон-экситонных комплексах, связанных с узлами решетки ρ_n . Эти комплексы образованы дипольными плазмонами, которые индуцируются в наночастицах



Рис. 2.2 — Зависимости энергии плазмонов $\hbar u_{\alpha}^0$ в изолированном наносфероиде от отношения полуосей c/a. Рассчитаны для Ag ($\varepsilon(\omega)$ соответствует данным [60]) и $\varepsilon_1 = 12.5$ (GaAs).

локальным полем (включающим поле всех частиц в слое), и их изображениями, которые обусловлены зарядами на поверхности полупроводника и экситонной поляризацией квантовой ямы (см. Приложение А.1). Когерентная мода плазмонэкситонов в решетке $\rho = \rho_n$ определяет длинноволновый оптический отклик в излучении наноструктуры, схематически показанной на Рис. 2.1.

Согласно Разделу 1.4, в результате преобразования Фурье по координате ρ мы получаем выражение вида (1.21) $\hat{\chi} = [\hat{I} - \hat{\chi}^0 \hat{S}]^{-1} \hat{\chi}^0$ для тензора дипольной поляризуемости плазмон-экситонного комплекса. Сумма $\hat{S} = \sum_{n} \varepsilon_1 \hat{D}_n$ функций Грина из Приложения А.1 учитывает вклад индуцированных диполей и их изображений в действующее на наночастицы поле. В квазистатическом приближении компоненты $\chi_{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta} \chi_{\alpha\alpha}$ с $\alpha = x, y$ имеют вид

$$\chi_{\alpha\alpha} = \left\{ \frac{1}{\chi^0_{\alpha\alpha}} - \frac{1}{A^3} \left[S_0(0) + \mu S_1\left(\frac{2h_1}{A}\right) \right] + \frac{6hL}{A^5} (1 - \mu^2) \frac{\omega_{\rm LT}}{\omega_\alpha - \omega - i\Gamma} S_2\left(\frac{2h}{A}\right) \right\}^{-1}.$$
(2.6)

Здесь $\mu = (\varepsilon_1 - \varepsilon_b)/(\varepsilon_1 + \varepsilon_b)$ – коэффициент отражения (2.3) в квазистатическом приближении ($\kappa \gg k_0$), $h = h_1 + h_2$ - расстояние между слоем наночастиц и

квантовой ямой. Решёточные суммы

$$S_{0}(\zeta) = \sum_{\mathbf{n}\neq 0} \frac{3n_{\alpha}^{2} - \mathbf{n}^{2} - \zeta^{2}}{(\mathbf{n}^{2} + \zeta^{2})^{5/2}}, \quad S_{1}(\zeta) = -\zeta^{-3} + S_{0}(\zeta),$$
$$S_{2}(\zeta) = -\zeta^{-5} + \sum_{\mathbf{n}\neq 0} \frac{5n_{\alpha}^{2} - \mathbf{n}^{2} - \zeta^{2}}{(\mathbf{n}^{2} + \zeta^{2})^{7/2}}$$
(2.7)

по $\mathbf{n} = n_x \mathbf{e}_x + n_y \mathbf{e}_y$ отвечают различным вкладам в поле, действующее на выделенный α -поляризованный диполь в точке $\boldsymbol{\rho} = 0$, $z = -h_1$. Сумма $S_0(0) \approx 4.51$ соответствует полю наночастиц с центрами в узлах $\boldsymbol{\rho}_{\mathbf{n}\neq 0}$, а суммы $S_1(2h_1/A) < 0$ и $S_2(2h/A) < 0$ учитывают поле диполей «изображения», обусловленных наличием границы сред при z = 0 и поляризацией квантовой ямы соответственно.

Чтобы оценить величину L, входящую в формулы (2.4) и (2.6), для квантовой ямы, ширина которой l обеспечивает существование квази-2D экситонов $(l_{\min} < l \leq a_B)$, принимаем $\Psi(z) = \sqrt{2/\pi} \tilde{a}^{-1}\psi^2(z)$ [58]. Здесь $\psi(z)$ - нормированная на единицу функция основного состояния электрона и дырки в квантовой яме, $\tilde{a}(l)$ - зависящий от ширины вариационный радиус квази-2D экситона, такой что $1/2 < \tilde{a}/a_B < 1$. В таком случае получаем $L = \sqrt{\pi/2} a_B^3/\tilde{a}^2$ для основного экситонного состояния. Минимальная ширина $l_{\min} \approx 5$ нм для квантовых ям GaAs/AlGaAs [58; 61] и $l_{\min} \approx 2$ нм для ям ZnO/ZnMgO [62; 63].

Подобно тому, как эффективная поляризуемость наночастиц (1.29) приводилась к резонансному виду (1.17) в Главе 1, получим приближение

$$\frac{1}{\chi^0_{\alpha\alpha}} - \frac{1}{A^3} \left[S_0(0) + \mu S_1\left(\frac{2h_1}{A}\right) \right] \approx \frac{3}{\eta a^3} \frac{u_\alpha^2 - \omega^2 - i\omega G_\alpha}{U_\alpha^2}.$$
(2.8)

Здесь частоты u_{α} соответствуют дипольным плазмонам в слое наносфероидов вблизи поверхности полупроводника, поляризованным вдоль оси α

$$u_{\alpha}^{2} = \omega_{p}^{2} \frac{\tilde{N}^{(\alpha)}}{\tilde{\varepsilon}_{*}^{(\alpha)}}, \quad G_{\alpha} = \gamma, \quad U_{\alpha}^{2} = \omega_{p}^{2} \frac{\varepsilon_{1}}{(\tilde{\varepsilon}_{*}^{(\alpha)})^{2}}, \tag{2.9}$$

$$\tilde{N}^{(\alpha)} = N^{(\alpha)} - \frac{\eta}{3} \frac{a^3}{A^3} \left[S_0(0) + \mu S_1\left(\frac{2h_1}{A}\right) \right], \quad \tilde{\varepsilon}_*^{(\alpha)} = \varepsilon_1 + (\varepsilon_\infty - \varepsilon_1)\tilde{N}^{(\alpha)}.$$

Подстановка выражения (2.8) в (2.6) приводит к выражению для эффективной поляризуемости плазмон-экситонного комплекса

$$\chi_{\alpha\alpha}(\omega) = \frac{\eta a^3}{3} \frac{U_{\alpha}^2(\omega_{\alpha}^2 - \omega^2 - 2i\omega\Gamma)}{(\omega_{\alpha}^2 - \omega^2 - 2i\omega\Gamma)(u_{\alpha}^2 - \omega^2 - i\omega G_{\alpha}) - W^4},$$
 (2.10)
где $\alpha = x, y$. В резонансный знаменатель выражения (2.10) входят комплексные частоты $\omega_{\alpha} - i\Gamma$ нерадиационных экситонов квантовой ямы в отсутствие наночастиц, и частоты $u_{\alpha} - iG_{\alpha}/2$ плазмонов в слое наночастиц в отсутствие квантовой ямы. С учетом соотношения $\omega_{\alpha} \approx \omega_0$, где ω_0 - частота 3D-экситона в материале квантовой ямы, получаем выражение

$$W^4 = \frac{\eta a^3 L}{8h^4} \left(1 - \mu^2\right) \omega_0 \omega_{\rm LT} U_\alpha^2 S_W\left(\frac{2h}{A}\right).$$
(2.11)

Эта величина характеризует кулоновское взаимодействие плазмонных и экситонных возбуждений при размерах системы a, L, h и $A \ll c/\omega_0$. Функция $S_W(\zeta) \equiv -\zeta^5 S_2(\zeta) > 0$ принимает значение $S_W(0) = 1$, которое при $2h/A \ll 1$ соответствует взаимодействию плазмона частицы только с собственным «изображением» в квантовой яме, и монотонно убывает с увеличением ζ , причём $S_W(\zeta) \ll 1$ уже при $\zeta > 2$.

Применим полученные теоретические результаты к квази-2D экситонам $e_1 - hh_1$ в квантовых ямах GaAs/AlGaAs [59; 64], а также к экситонам A, B в ямах на основе ZnO/ZnMgO [62; 63], и в последнем случае сопоставим результаты теории с экспериментом [17]. Параметры плазмонов u_{α} , G_{α} и U_{α} найдём с помощью выражений (2.9), используя параметры диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\omega)$ металла, полученные при аппроксимации экспериментальных данных вблизи частоты ω_0 экситона в соответствующей квантовой яме. На основе данных работы [60] для серебра находим $\hbar\omega_p = 9.3$ эВ, $\hbar\gamma = 30$ мэВ и $\varepsilon_{\infty} = 4.1$ вблизи частоты $\hbar\omega_0 = 1.5$ эВ, а исходя из данных [65] для алюминия получаем $\hbar\omega_n = 13.6$ эВ, $\hbar\gamma = 0.52$ зВ и $\varepsilon_\infty = 1$ вблизи $\hbar\omega_0 = 3.4$ зВ. Для экситонов в квантовых ямах GaAs и ZnO используются значения ε_b , ω_{LT} и a_B , приведенные в Табл. 2. Параметр нерадиационного затухания экситонов при их рассеянии на акустических и оптических (с частотой ω_{LO}) фононах оцениваем по формуле $\Gamma(T) = AT + B[\exp(\hbar\omega_{LO}/kT) - 1]^{-1}$. При T < 150 К для $e_1 - hh_1$ экситонов в квантовых ямах GaAs с коэффициентами A и B из работы [66] находим $\hbar\Gamma < 0.4$ мэВ, а для экситонов в ямах ZnO с коэффициентами из работы [62] получаем $\hbar\Gamma$ < 6 мэВ.

Результаты расчета спектров $\text{Im}\chi_{\alpha\alpha}(\hbar\omega)$ поляризуемости плазмон-экситонных комплексов представлены на Рис. 2.3*a* для наноструктуры GaAs/Ag и на Рис. 2.4*a* для структуры ZnO/Al. Физически величина $\text{Im}\chi_{\alpha\alpha}$ отвечает поглощению света плазмон-экситонными комплексами в рассматриваемых структурах. При расчете спектров $\text{Im}\chi_{\alpha\alpha}(\omega)$ с параметрами из Табл. 2 частота экситона



Рис. 2.3 — a – спектры поляризуемости (2.10) плазмон-экситонных комплексов в наноструктуре GaAs/Ag при различной отстройке энергии плазмонов $\hbar u_{\alpha}$ в частицах Ag от энергии экситона $e_1 - hh_1 \hbar \omega_0 = 1.51$ эВ в квантовой яме GaAs/AlGaAs. Кривые соответствуют следующим значениям η : l - 0.148 ($u_{\alpha} = \omega_0$), 2 - 0.145 ($u_{\alpha} < \omega_0$), 3 - 0.153 ($u_{\alpha} > \omega_0$).

b – энергии максимумов в спектре Im $\chi_{\alpha\alpha}$ (точки) и энергии $\hbar\omega_{\pm}$ (сплошные линии) в зависимости от отстройки u_{α} от ω_0 . Рассчитано с параметрами экситонов и плазмонов из Табл. 2, $\varepsilon_1 = 2.25$ и следующими геометрическими параметрами, нм: a = 10, A = 40, $h_1 = 5$, h = 10, L = 19. Соответствующий параметр радиационного затухания $\hbar\Gamma_{0,x} = 40$ мкэВ экситонов с $\kappa = 0$ отвечает ширине ямы $l \approx 10$ нм, согласно данным работы [64].



Рис. 2.4 — *a* – спектры поляризуемости (2.10) плазмон-экситонных комплексов в наноструктуре ZnO/Al при различной отстройке энергии плазмонов $\hbar u_{\alpha}$ в частицах Al от энергии экситона $\hbar \omega_0 = 3.4$ эВ в квантовой яме ZnO/MgZnO. Спектры соответствуют следующим значениям η : $l - 0.158 (u_{\alpha} = \omega_0), 2 - 0.143 (u_{\alpha} < \omega_0), 3 - 0.173 (u_{\alpha} > \omega_0).$

b – энергии максимумов в спектре Im $\chi_{\alpha\alpha}$ (точки) и энергии $\hbar\omega_{\pm}$ (сплошные линии) в зависимости от отстройки u_{α} от ω_0 . Рассчитано с параметрами экситонов и плазмонов из Табл. 2, $\varepsilon_1 = 1$ и геометрическими параметрами, нм: a = 10, A = 40, $h_1 = 5$, h = 10, L = 6.7. При этом параметр радиационного затухания экситонов с $\kappa = 0$ $\hbar\Gamma_{0,x} = 0.6$ мэВ соответствует ширине ямы $l \approx 2.7$ нм, согласно [63].

Структура	$\hbar\omega_0$, эВ	$\hbar\omega_{ m LT}$, мэ ${ m B}$	a_B , HM	ε_b	$\hbar \Gamma$, мэВ	$\hbar G_{lpha}$, мэВ	$\hbar\Delta$, мэВ
GaAs/Ag	1.51	0.08	14	12.5	0.3	30	2.7
ZnO/Al	3.4	2	1.8	6.7	3	520	12

Табл. 2 — Параметры экситонов и плазмонов, использованные при вычислении $\chi_{\alpha\alpha}(\omega)$ по формуле (2.10) и $\Delta = W^2/(2\omega_0)$ по формуле (2.11).

 $\omega_{\alpha} = \omega_0$ фиксировалась, а частота плазмона u_{α} отстраивалась от ω_0 в результате изменения параметра $\eta = a_z/a$, определяющего сплюснутость металлических наносфероидов. Как показано на Рис. 2.3*a* и 2.4*a*, при плазмон-экситонном резонансе $u_{\alpha} = \omega_{\alpha}$ в наноструктурах GaAs/Ag и ZnO/Al спектры Im $\chi_{\alpha\alpha}(\omega)$ состоят из двух пиков, разделенных узким провалом при энергии возбуждения экситона $\hbar\omega_0$. При отстройке частоты u_{α} от ω_0 в спектре разделяются плазмонная и экситонная линии, положения максимумов которых при некоторых значениях u_{α} показаны точками на Рис. 2.3*b* для структур GaAs/Ag и на Рис. 2.4*b*. Видно, что зависимость от $\hbar u_{\alpha}$ энергий, соответствующих максимумам рассчитанных спектров Im $\chi_{\alpha\alpha}$, обладает признаками антипересечения уровней, характерного для расщепления Раби.

Отметим, что точки Рис. 2.3*b* и 2.4*b* относятся к случаю, когда расстояние между спектральными пиками при $u_{\alpha} = \omega_0$ оказывается существенно меньше ширины одного из резонансов (согласно Табл. 2 - плазмонного с $G_{\alpha} = \gamma \gg 2\Delta$, где $\Delta = W^2/(2\omega_0)$). Для плазмон-экситонов эта ситуация представляется довольно общей, поскольку экситонные резонансы обычно являются узкими ($\Gamma/\omega_0 \sim 10^{-3}$) и слабыми ($\Gamma_{0,x} \ll \Gamma$), а плазмонные резонансы - относительно широкими ($\gamma/\Gamma \sim 100$) и сильными ($U_{\alpha}/\gamma \sim 10 - 100$). Наличие двухпиковой структуры в спектрах при $2\Delta \ll \gamma$ обусловлено малой шириной экситонного резонанса ($\Gamma \ll \Delta$), а нарушение этого условия при $\gamma, 2\Gamma \gtrsim 2\Delta$ приведёт к исчезновению экситонного «провала» в спектре поглощения.

Сравним поведение максимумов в спектрах поляризуемости, вычисленных с помощью уравнения (2.10), при отстройке частоты плазмона u_{α} от частоты экситона ω_0 , с антипересечением, получаемым в элементарной модели связанных незатухающих осцилляторов. Для этого найдём корни резонансного знаменателя поляризуемости (2.10) при $\gamma = \Gamma = 0$ – частоты

$$\omega_{\pm} = \frac{\omega_0 + u_\alpha}{2} \pm \left[\left(\frac{\omega_0 - u_\alpha}{2} \right)^2 + \Delta^2 \right]^{1/2}, \qquad (2.12)$$

соответствующие расщеплению 2Δ при $u_{\alpha} = \omega_0$. Их зависимость от частоты плазмона u_{α} показана на Рис. 2.3b и 2.4b непрерывными линиями, которые отражают сущность явления антипересечения в спектре возбуждений системы. Существенно, что на эти зависимости хорошо ложатся точки, соответствующие положениям пиков в спектрах поляризуемости, рассчитанных при разных u_{α} с реальными параметрами затухания плазмонов и экситонов. Отметим также, что рассчитанное для наноструктуры ZnO/Al расстояние $\hbar(\omega_+ - \omega_-) = 24$ мэВ между максимумами при плазмон-экситонном резонансе имеет тот же порядок, что и расщепление Раби 15 мэВ, наблюдавшееся в работе [17], см. Рис. 2.5. Это означает, что полученная теоретическая оценка константы связи согласуется с имеющимися экспериментальными данными.

Итак, в данном разделе представлены результаты электродинамической теории плазмон-экситонов. Для модели близко расположенных квантовой ямы и металлических наночастиц рассчитаны спектры поляризуемости плазмон-экситонных комплексов, которая определяет наблюдаемые оптические спектры. Показано, что поведение положений пиков в спектре вблизи плазмон-экситонного резонанса имеет признаки расщепления Раби с найденной константой взаимодействия возбуждений.



Рис. 2.5 — Спектры поглощения света (а) и соответствующие положения максимумов (b) при различных значениях диаметра нанодисков Al, выращенных на квантовой яме ZnO/ZnMgO. Из работы [17].

2.3 Плазмон-экситоны в решётке металлических проволок вблизи квантовой ямы

Теперь исследуем эффекты взаимодействия экситонов в квантовой яме с плазмонами в решётке металлических нанопроволок. С точки зрения теории, в данном разделе работы представлено обобщение построенной ранее модели для металл-полупроводниковых структур отличной геометрии. С практической точки зрения, структуры с одномерными дифракционными решётками являются более распространёнными [16; 67] и простыми в изготовлении по сравнению с двумерными массивами металлических наночастиц. Как и раньше, мы будем учитывать кулоновское взаимодействие между экситонами и плазмонами в наноцилиндрах, описывая последние с помощью резонансной эффективной поляризуемости. Мы оценим константу плазмон-экситонного взаимодействия и рассчитаем спектры отражения и поглощения, которые демонстрируют усиление экситонных особенностей при резонансе с плазмонами.

Рассмотрим решётку из металлических нанопроволок, встроенную в полупроводник с фоновой диэлектрической проницаемостью ε_b поблизости от квантовой ямы (Рис. 2.6). Размеры поперечного сечения проволок, период решётки и расстояние до центра квантовой ямы как и прежде предполагаются достаточно малыми по сравнению с длиной волны света. В отсутствие нанопроволок двумерные экситоны приводят к резонансному отражению света от квантовой ямы, и соответствующий коэффициент для ТМ-поляризованных волн с поперечным волновым вектором $\kappa = \kappa e_x$ и частотой ω имеет вид

$$r_{\rm QW}^p(\kappa) = \frac{i\Gamma_{0,x}(\kappa)}{\omega_x - \omega - i\Gamma - i\Gamma_{0,x}(\kappa)}.$$
(2.13)

Здесь ω_x – частота экситона, поляризация которого направлена вдоль вектора κ , Γ и $\Gamma_{0,x}$ – скорости его нерадиационного и радиационного затухания соответственно. Последняя $\Gamma_{0,x} = \omega_{LT}k_bL$ выражается через продольно-поперечное расщепление объёмных экситонов ω_{LT} , волновое число $k_b = \sqrt{\varepsilon_b k_0^2 - \kappa^2}$ и эффективную «толщину» $L = \frac{1}{2}\pi a_B^3 \left(\int dz \ \Phi(z) \cos k_b z\right)^2$, где $\Phi(z)$ – огибающая волновой функции основного состояния экситона в КЯ, a_B - радиус экситона в объёмном полупроводнике. Для нерадиационных экситонов с $\kappa > \sqrt{\varepsilon_b}k_0$, поле которых представляет собой затухающие волны, параметр $\Gamma_{0,x}$ в (2.13) становится мнимым и соответствует сдвигу частоты экситона.

Рис. 2.6 — Структура из квантовой ямы и решётки металлических наноцилиндров. Сечения цилиндров являются эллипсами с полуосями a_x и a_z , центры которых расположены на прямых z = h, $x_n = nd$ с целыми n. Центральная плоскость квантовой ямы совпадает с z = 0.

Будем рассматривать нанопроволоки в дипольном приближении, характеризуя их квазистатическим тензором поляризуемости $\hat{\chi}^0$. Полагая, что сечение каждой проволоки является эллипсом с полуосями a_x и a_z , можно решить уравнение Лапласа в эллиптических координатах и получить отличные от нуля компоненты поляризуемости [68]

$$\chi^{0}_{\alpha\alpha} = \frac{a_{x}a_{z}}{4} \frac{\varepsilon - \varepsilon_{b}}{\varepsilon_{b} + n_{\alpha}(\varepsilon - \varepsilon_{b})} \approx \frac{a_{x}a_{z}}{4} \frac{U^{2}_{0\alpha}}{u^{2}_{0\alpha} - \omega^{2} - i\omega\gamma}, \quad \alpha = x, z.$$
(2.14)

Здесь $\varepsilon(\omega)$ – зависящая от частоты диэлектрическая проницаемость материала проволоки, а $n_x = a_z/(a_x + a_z)$ и $n_z = 1 - n_x$ – коэффициенты деполяризации цилиндра. Отметим, что поляризуемость проволоки (2.14) фактически отличается от поляризуемости частицы (1.2) размерным множителем - объём эллипсоида $V = \frac{4\pi}{3}a_xa_ya_z$ заменяется на площадь сечения $S = \pi a_xa_z$. При этом значения коэффициентов деполяризации n_α получаются из коэффициентов деполяризации $N^{(\alpha)}$ в пределе $a_y \to \infty$, то есть, при вытягивании одной из полуосей эллипсоида. Частоты резонансов в (2.14) соответствуют дипольным плазмонам, и могут быть определены из равенства $\operatorname{Re} \{\varepsilon_b + n_\alpha(\varepsilon - \varepsilon_b)\} = 0$. Подставив диэлектрическую проницаемость металла в модели Друде (1.4), получим частоты

$$u_{0\alpha} = \omega_p \left[\frac{n_\alpha}{\varepsilon_b + n_\alpha (\varepsilon_\infty - \varepsilon_b)} \right]^{1/2}, \qquad (2.15)$$

в то время как $\gamma/2$ - скорость безызлучательного затухания плазмонов.

Для решётки нанопроволок вблизи квантовой ямы введём эффективную поляризуемость, которая учитывает взаимодействие проволок как между собой, так и с изображениями, обусловленными экситонами в квантовой яме

$$\hat{\chi}(\kappa) = \left[(\hat{\chi}^0)^{-1} - \hat{\Sigma}^{\text{hom}}(\kappa) - \hat{\Sigma}^{\text{exc}}(\kappa, h) \right]^{-1}.$$
(2.16)

Эта величина определяет дипольные моменты $\mathbf{p}_n = e^{i\kappa x_n}\hat{\chi}(\kappa)\mathbf{E}^0(\kappa;h)$, наведённые в наноцилиндрах полем $\mathbf{E}^0(\kappa;z)e^{i\kappa x}$, которое состоит из падающего на структуру излучения и отражённых от квантовой ямы волн (2.1). Взаимодействие проволок друг с другом в однородной среде учитывается с помощью тензорной решёточной суммы $\hat{\Sigma}^{\text{hom}} = \sum_n \varepsilon_1 e^{in\kappa d} \hat{F}^{\text{hom}}(nd,0)$, с функциями Грина $F_{\alpha\beta}$ из (А.6) в Приложении. Компоненты суммы можно вычислить для короткопериодной решётки ($\sqrt{\varepsilon_b}k_0d \ll 1$) в квазистатическом приближении, как показано в Приложении А.2: $\bar{\Sigma}^{\text{hom}}_{\alpha\beta}(\kappa) = \delta_{\alpha\beta}(b^2/6 - \kappa b + \kappa^2)$, где $b = 2\pi/d$ – вектор обратной решетки. Однако в случае резонансных рассеивателей необходимо учитывать запаздывание и вычислять решёточную сумму методом Эвальда [69; 70], в том числе для того, чтобы найти скорость радиационного затухания плазмонов $g_{0\alpha}(\kappa) \sim \text{Im}\Sigma^{\text{hom}}_{\alpha\alpha}$. Она даёт вклад в полную ширину плазмонного резонанса $g_{\alpha} = \gamma/2 + g_{0\alpha}$, в то время как действительная часть суммы $\text{Re}\Sigma^{\text{hom}}_{\alpha\alpha}$ приводит к сдвигу частот решёточных плазмонов $u_{\alpha}(\kappa)$. Для короткопериодной решётки радиационное затухание плазмонов имеет вид

$$g_{0x}(\kappa) = \frac{U_x^2}{8u_x} k_b(\kappa) ba_x a_z, \quad g_{0z}(\kappa) = \frac{U_z^2}{8u_z} \frac{\kappa^2}{k_b(\kappa)} ba_x a_z, \quad (2.17)$$

где параметры резонансов u_{α} и U_{α} определяются формулами

$$u_{\alpha} = \omega_p \left[\frac{\tilde{n}_{\alpha}}{\varepsilon_b + \tilde{n}_{\alpha}(\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_b)} \right]^{1/2}, \quad U_{\alpha} = \omega_p \frac{\varepsilon_b^{1/2}}{\varepsilon_b + \tilde{n}_{\alpha}(\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_b)}, \tag{2.18}$$

аналогичными (2.9), с коэффициентамиы $\tilde{n}_{\alpha} = n_{\alpha} - (a_x a_z/4) \text{Re} \Sigma_{\alpha \alpha}^{\text{hom}}$.

Взаимодействие решётки наноцилиндров с квантовой ямой учитывается самосогласованным образом с помощью тензора $\hat{\Sigma}^{\text{exc}}$, который представляет собой сумму рассеянных волн с векторами $\kappa_m = \kappa + mb$. Его компоненты при $\alpha, \beta = x, z$ имеют вид

$$\Sigma_{\alpha\beta}^{\text{exc}}(\kappa,h) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} ib \ r_{\text{QW}}^p(\kappa_m) e^{2ik_b(\kappa_m)h} \begin{pmatrix} k_b(\kappa_m) & \kappa_m \\ -\kappa_m & \frac{-\kappa_m^2}{k_b(\kappa_m)} \end{pmatrix}.$$
 (2.19)

Таким образом, излучающие плазмонные моды с волновыми векторами $\kappa < q_b$ взаимодействуют с экситонами с различными векторами κ_m . В случае короткопериодной решетки слагаемые с $m \neq 0$ в уравнении (2.19) соответствуют затухающим волнам, поле которых экспоненциально убывает с расстоянием h, в то время как отражённой волне соответствует единственное слагаемое с m = 0. В отличие от суммы $\hat{\Sigma}^{\text{hom}}$, эта сумма быстро сходится, однако для дальнейших оценок нам пригодится её квазистатическое значение (см. Приложение A.2)

$$\bar{\Sigma}_{\alpha\beta}^{\text{exc}}(\kappa=0) = \delta_{\alpha\beta} \, \frac{b^3 L}{2} \frac{\operatorname{ch}(bh)}{\operatorname{sh}^3(bh)} \, \frac{\omega_{\text{LT}}}{\omega_0 - \omega - i\Gamma}.$$
(2.20)

Определив эффективную поляризуемость (2.16), мы можем рассчитать наблюдаемые величины, на которые влияет плазмон-экситонное взаимодействие, такие как отражение или поглощение. Например, если на структуру со стороны решетки по нормали падает свет, поляризованный перпендикулярно нанопроволокам, коэффициенты отражения и прохождения (по интенсивности) равны

$$R = \left| r_{\rm QW} + iqk_b \chi_{xx} \left(e^{-ik_b h} + r_{\rm QW} e^{ik_b h} \right)^2 \right|^2,$$
(2.21)

$$T = \left| t_{\rm QW} + iqk_b \chi_{xx} \ t_{\rm QW} \left(e^{-ik_b h} + r_{\rm QW} e^{ik_b h} \right) \right|^2, \tag{2.22}$$

и коэффициент поглощения A = 1 - R - T. В данном случае амплитудный коэффициент прохождения света сквозь квантовую яму $t_{\rm QW} = 1 + r_{\rm QW}$, волновое число k_b , коэффициент отражения $r_{\rm QW}$ и поляризуемость χ_{xx} берутся при $\kappa = 0$.

Из всевозможных систем металл-полупроводник мы рассмотрим нанопроволоки из серебра и квантовые ямы GaAs/AlGaAs, в которых реализуется наименьшее безызлучательное затухание плазмона и экситона. Спектры отражения $R(\omega)$ и поглощения $A(\omega)$, рассчитанные с помощью уравнений (2.21), (2.22), представлены на Рис. 2.7. Когда соотношение полуосей $\eta = a_z/a_x$ подобрано так, чтобы частота плазмона u_x совпала с частотой экситона ω_x , в спектре отражения имеется узкий провал внутри широкого плазмонного пика (кривая 2 на Рис. 2.7а). Далее, при изменении формы нанопроволок и отстройке энергии плазмона от энергии экситона слабый экситонный пик начинает отщепляться от плазмонного (кривые 1, 3), и в конечном счёте (при $|u_x - \omega_x| \ll g_x$) он определяется только отражением от ямы $|r_{\rm QW}|^2$ (спектр 4). Подобная картина является характерной для связанных осцилляторов. С другой стороны, в спектрах поглощения (Рис. 2.7b) в резонансном случае 2 ($u_x = \omega_x$) экситонный минимум оказывается менее выраженным, а величина экситонного пика одинакова для

Рис. 2.7 — а - Спектры отражения $R(\omega)$, и b - поглощения $A(\omega)$ решётки нанопроволок Ag вблизи квантовой ямы GaAs/AlGaAs. Рассчитано по формулам (2.21), (2.22) с энергией экситона $\hbar\omega_x = 1.50$ эB, затуханием $\hbar\Gamma = 1$ мэB, различными энергиями плазмона $\hbar u_x$ при $\eta = 0.345$ (1), 0.365 (2, $u_x = \omega_x$) и 0.375 (3), и параметрами структуры $a_x = 3$ нм, d = 60 нм и h = 6 нм. Спектры 4 соответствуют отражению и поглощению света квантовой ямой в отсутствие нанопроволок.

спектров 1, 3 и 4, последний из которых соответствует поглощению квантовой ямы без нанопроволок.

Чтобы интерпретировать построенные спектры, мы выделим плазмонный (2.14) и экситонный резонанс (2.13) в поляризуемости $\chi_{xx}(\omega)$ (2.16), и представим выражения (2.21), (2.22) в следующем виде

$$R = \left| r_{\rm PE} e^{-2ik_b h} + \frac{r_{\rm QW} t_{\rm PE}^2}{1 - r_{\rm PE} r_{\rm QW} e^{2ik_b h}} \right|^2,$$
(2.23)

$$T = \left| \frac{t_{\rm QW} t_{\rm PE}}{1 - r_{\rm PE} r_{\rm QW} e^{2ik_b h}} \right|^2.$$
(2.24)

Такая форма соответствует отражению и пропусканию двухслойной структуры, в которой коэффициенты

$$r_{\rm PE}(\omega) \approx \frac{ig_{0x}(\omega_x - \omega - i\Gamma)}{(u_x - \omega - ig_x)(\omega_x - \omega - i\Gamma) - \Delta^2/4}$$
(2.25)

и $t_{\rm PE} = 1 + r_{\rm PE}$ можно отнести к решётке нанопроволок с плазмонами, взаимодействующими с «тёмными» экситонами квантовой ямы. Константа связи Δ

46

в квазистатическом приближении определяется выражением

$$\Delta^2 = \frac{b^3 L a_x a_z}{4} \frac{\operatorname{ch}(bh)}{\operatorname{sh}^3(bh)} \frac{\omega_{\mathrm{LT}}}{\omega_0} U_x^2.$$
(2.26)

Если вклад экситонов с $\kappa = 0$ в коэффициент отражения $|r_{\rm QW}| \sim \Gamma_{0x}/\Gamma \ll 1$, вид спектров отражения обусловлен «плазмон-экситонной» составляющей $r_{\rm PE}(\omega)$, а именно, соотношением между константой связи Δ и скоростями затухания возбуждений g_x и Γ . В случае обсуждаемой структуры оцениваемое значение $\hbar\Delta \approx 6.5$ мэВ оказывается больше скорости затухания экситонов $\hbar\Gamma = 1$ мэВ, но меньше скорости затухания плазмона $\hbar g_x \approx 23$ мэВ. Тогда провал и расщепление линии в спектрах отражения 1-3 на Рис. 2.7а можно интерпретировать как эффект резонансной обратной связи, действующей на возбуждаемые внешним полем плазмоны со стороны тёмных экситонов. Аналогичная особенность в спектрах поглощения Рис. 2.7b частично маскируется экситонным поглощением света в квантовой яме.

2.4 Выводы к главе 2

Во второй главе развита теория плазмон-экситонных состояний в сложных наноструктурах, состоящих из полупроводниковой квантовой ямы и металлических наночастиц или нанопроволок. Рассмотрено взаимодействие плазмонов с нерадиационными экситонами квантовой ямы, обусловленное ближним полем короткопериодной решётки наночастиц. Показано, что это взаимодействие приводит к особенности в виде узкого провала и двух максимумов в спектрах отражения и поглощения света, если константа связи плазмон-экситонов превосходит ширину экситонной линии.

Подобные результаты получены как для двумерного массива металлических наночастиц, так и для массива нанопроволок в виде одномерной решётки. В последнем случае учитывалось радиационное затухание плазмонов, для чего потребовалось выйти за рамки квазистатического приближения, используемого в Главе 1. Для двумерной решётки радиационное затухание плазмонов оказывается не столь существенным.

Глава 3. Оптическая ориентация горячих экситонов в наноструктурах металл–полупроводник

3.1 Введение к главе 3

Принципы оптической ориентации и выстраивания спина, изначально разработанные для атомных газов, получили широкое применение в спектроскопии экситонов в полупроводниках [71; 72]. Помимо экситонов в объёмных кристаллах [73], эти методы позволяют исследовать тонкую структуру экситонов в полупроводниковых наноструктурах, оценивать время рекомбинации экситонов и время релаксации их спина [74; 75]. Обычно экситоны генерируются поляризованным светом на частоте, близкой к частоте перехода ω_0 , и измеряется поляризация люминесценции при прямых оптических переходах. Таким образом можно изучать либо свободные экситоны с малыми волновыми векторами $K \approx 0$, которые передаются экситонам от падающих фотонов, либо экситоны, локализованные на дефектах или неоднородностях структуры. Ориентация горячих экситонов, которые обладают существенными K и кинетической энергией, в объёмных полупроводниках возможна только за счёт непрямых переходов, сопровождающихся испусканием оптических фононов [76]. С другой стороны, на поверхность полупроводниковой структуры можно нанести металлическую решётку, в которой существуют поверхностные плазмон-поляритоны, сохранив при этом экситонные резонансы [16]. В полученной композитной наноструктуре экситоны приобретают волновой вектор и поляризацию (спин) поверхностных поляритонов, распространяющихся в плоскости решётки [67]. Теоретически, это даёт возможность изучать экситоны с отличными от нуля волновыми векторами, возбуждая их через решётку и исследуя поляризованную люминесценцию экситонов в магнитном поле.

В настоящей главе изложена теория оптической ориентации экситонов в наноструктуре, состоящей из квантовой ямы и решётки металлических наночастиц. Подобные структуры с квантовой ямой ZnO и нанодисками из серебра были изготовлены с целью исследования эффектов взаимодействия между поверхностными плазмонами и полупроводниковыми экситонами [17]. Мы построили модель плазмон-экситонного взаимодействия и оценили его влияние на оптические спектры наноструктур металл-полупроводник в Главе 2. Поскольку теперь решётка наночастиц используется для возбуждения горячих экситонов, мы будем предполагать взаимодействие слабым, что по всей видимости реализуется для экситонов Ванье–Мотта и локализованных поверхностных плазмонов. Сильное плазмон-экситонное взаимодействие и связанные с ним явления наблюдаются для молекулярных экситонов в красителях [15], а также для экситонов малого радиуса в дихалькогенидах переходных металлов [77; 78]. В этих системах свойства возбуждений могут существенно модифицироваться за счёт плазмон-экситонной гибридизации.

Глава организована следующим образом. В Разделе 3.2 представлено рассеянное электрическое поле решётки металлических наночастиц, которые как и прежде моделируются точечными электрическими диполями. Будет учтено, что поляризация ближнего поля, создаваемого диполями внутри квантовой ямы, отличается от поляризации падающего на структуру света. Затем вычисляется матрица генерации экситонов, которая входит в кинетическое уравнение для спиновой матрицы плотности. Решение кинетического уравнения получено в Разделе 3.3, где найдено стационарное значение экситонной матрицы плотности в постоянном магнитном поле, приложенного перпендикулярно к плоскости квантовой ямы. Поскольку решётка позволяет одновременно генерировать экситоны, распространяющиеся в разных направлениях, в уравнении на матрицу плотности учитывается релаксация импульса и спина рождаемых экситонов. В Разделе 3.4 вычислена поляризация вторичного излучения горячих экситонов через решётку наночастиц. В Разделе 3.5 в кинетическое уравнение добавляется энергетическая релаксация, и обсуждается её влияние на поляризованную люминесценцию экситонов. Основной результат состоит в том, что мы рассчитали зависимости поляризации излучения от приложенного магнитного поля, и продемонстрировали возможность исследования кинетических характеристик горячих экситонов в композитных наноструктурах металл-полупроводник.

3.2 Возбуждение экситонов в ближнем поле решётки наночастиц

Рис. 3.1 — Модель наноструктуры, состоящей из полупроводниковой квантовой ямы и короткопериодной решётки металлических частиц.

Рассмотрим изображенную на Рис. 3.1 структуру, состоящую из близко расположенных квантовой ямы и решетки металлических наночастиц. Будем считать, что энергия фотонов падающего излучения близка к энергии экситона в квантовой яме, и расстояние h между ямой и решёткой не превосходит длину волны света в полупроводнике. Тогда экситоны будут возбуждаться ближним полем металлической решётки, возникающим при рассеянии падающего излучения, которое вдали от структуры представляет плоскую волну вида (1.8).

Чтобы отразить суть эффектов оптической ориентации и выстраивания, воспользуемся простейшей схемой экситонных состояний, которая показана на Рис. 3.2. Как известно, в полупроводниковых квантовых ямах существуют экситоны Ванье–Мотта, радиус которых превосходит период кристаллической решётки благодаря большой диэлектрической проницаемости и малой эффективной массе носителей заряда, а энергия связи мала по сравнению с расстоянием между подзонами размерного квантования. В этом случае волновая функция экситона представляется в виде произведения плавной огибающей $F(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$, зависящей от координат электрона \mathbf{r}_e и дырки \mathbf{r}_h , и блоховских амплитуд X, Y, Z и S, соответствующих вершине валентной зоны и дну зоны проводимости [58]. Огибающая в свою очередь является произведением функции $\varphi(\rho_e - \rho_h, z_e, z_h)$, которая описывает относительное движение электрона и дырки, и экспоненты $\exp(i\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{\rho})$, соответствующей движению экситона как целого в плоскости квантовой ямы. В объёмных полупроводниках со структурой цинковой обманки, таких как GaAs, электронные состояния в вершине валентной зоны четырёхкратно вырождены и напоминают состояния с полным угловым моментом $\mathcal{J} = 3/2$. Однако в квантовых ямах это вырождение снимается в связи с понижением симметрии, и состояния с проекцией углового момента на ось роста $j = \pm 3/2$ или $j = \pm 1/2$ образуют отдельные подзоны. В достаточно узких ямах верхней оказывается подзона тяжёлых дырок, образованная состояниями с проекцией $j = \pm 3/2$. Энергия связи экситона с тяжёлой дыркой мала по сравнению с энергетическим зазором между подзонами тяжёлых и лёгких дырок ($j = \pm 1/2$), который возникает из-за размерного квантования. В этом случае подмешиванием лёгких дырок можно пренебречь, и рассматривать нижнюю зону экситонов, образованных тяжелыми дырками ($j = \pm 3/2$) и электронами зоны проводимости с проекцией спина $s = \pm 1/2$. Тогда имеется четыре состояния экситона, отличающихся проекцией полного углового момента на ось роста структуры: $M = \pm 1, \pm 2$. Экситоны с проекцией момента ± 1 оптически активны, в то время как состояния с проекцией ± 2 не взаимодействуют со светом и потому могут не учитываться. Оптически активные (светлые) и неактивные (тёмные) экситоны могут смешиваться за счёт обменного взаимодействия, которое играет важную роль при оптической ориентации локализованных экситонов [79], однако здесь этот эффект учитываться не будет.

В соответствии с правилами отбора на Рис. 3.2, свет с правой круговой поляризацией σ_+ возбуждает экситоны с проекцией спина M = +1, в то время как σ_- -поляризованный свет рождает экситоны с M = -1. При этом вторичное излучение экситонов частично сохраняет круговую поляризацию возбуждающего света. Линейно поляризованный свет (мы определяем поляризацию в плоскости квантовой ямы xy) возбуждает экситоны в суперпозиции состояний ± 1 , для которой полный момент направлен вдоль оси x или y, что называется эффектом оптического выстраивания. Излучение при рекомбинации таких экситонов оказывается тоже линейно поляризованным. Внешнее магнитное поле, направленное вдоль оси z, приводит к расщеплению состояний $M = \pm 1$ и потере когерентности их суперпозиции, что уменьшает степень линейной поляризации

Рис. 3.2 — Оптически активные состояния экситона, образованного электронами зоны проводимости и тяжёлыми дырками из валентной зоны. Электронные состояния задаются блоховскими функциями S или $X \pm iY$ и проекцией спина \uparrow или \downarrow . Экситоны со спином M = -1 или +1взаимодействуют со светом левой или правой циркулярной поляризации соответственно.

излучения экситонов. Измерение зависимостей поляризации люминесценции от величины и направления магнитного поля позволяет оценивать времена рекомбинации и значение *g*-фактора экситонов.

Такая простая картина имеет место в структурах без решётки, где падающий свет возбуждает только экситоны с волновыми векторами $K \approx 0$ в плоскости квантовой ямы. Теперь мы рассмотрим квадратную решётку из металлических наночастиц, для которых частота локализованных плазмонов лежит в том же диапазоне, что и частота экситонного перехода. Решётка должна быть квадратной, чтобы не создавать дополнительную поляризацию возбуждающего света и не изменять поляризацию излучения экситонов с K = 0. При этом будем предполагать, что решётка не оказывает существенного влияния на свойства экситонов, определяемые относительным движением электрона и дырки, такие как энергия связи и дипольный момент перехода. В принципе, наличие металлической поверхности приводит к возникновению зарядов изображения, что должно модифицировать кулоновское взаимодействие между электроном и дыркой в экситоне. Однако расчёты для квантовой ямы и сферической наночастицы [56] показывают, что её влияние на экситоны становится существенным только при расстояниях h порядка нескольких нанометров. Поэтому мы не будем учитывать экранирование экситонов, предполагая, что толщина барьерного слоя между наночастицами и квантовой ямой превосходит радиус экситона a_B .

Чтобы рассчитать поле решётки наночастиц, снова воспользуемся приближением дискретных диполей [80] и представим полное электрическое поле в следующем виде

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{\rho}, z) = \boldsymbol{E}^{0} \exp(iqz) + \sum_{\boldsymbol{m}} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{m}} \exp\left(i\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}} \cdot \boldsymbol{\rho} + iq_{z,\boldsymbol{m}}|z|\right),$$
$$\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{m}} = \frac{iq^{2}b^{2}}{2\pi q_{z,\boldsymbol{m}}} \hat{G}\left(\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}} + \operatorname{sgn} z \ q_{z,\boldsymbol{m}} \boldsymbol{e}_{z}\right) \chi(\omega) \ \boldsymbol{E}^{0}.$$
(3.1)

Это выражение содержит сумму рассеянных волн с проекциями волнового вектора q_{\parallel} на плоскость решётки $\rho = (x,y)$ равными векторами обратной решётки $b_m = b (m_x e_x + m_y e_y)$, где $b = 2\pi/A$ и A – период решётки наночастиц. В рассматриваемом далее случае короткопериодной решётки векторы $b_{m\neq0}$ по величине превосходят волновое число $q = n\omega/c$ света, распространяющегося в полупроводнике с показателем преломления n. Тогда волновые числа $q_{z,m} = (q^2 - b_m^2)^{1/2} = i\beta_m$ оказываются чисто мнимыми, и поле соответствующих волн экспоненциально убывает в перпендикулярном к решётке направлении z. Амплитуды рассеянных волн (3.1) в дипольном приближении определяются эффективной поляризуемостью наночастиц в решётке $\chi(\omega)$ и тензором $\hat{G}(q) = e_s \otimes e_s + e_p \otimes e_p$, который описывает излучение электрического диполя. В этой записи использовано тензорное произведение векторов поляризации $e_s = [e_z \times q_{\parallel}]/q_{\parallel}$ и $e_p = [e_s \times q]/q$, определения которых распространяются на область поверхностных волн $q_{\parallel} > q(\omega)$.

Поскольку при оптических переходах сохраняется проекция волнового вектора на плоскость квантовой ямы, поле решётки (3.1) может возбуждать экситоны с волновыми векторами $K = b_m$. При этом энергия возбуждения экситона $\mathcal{E}_{\text{exc}}(K) \approx \mathcal{E}_{\text{exc}}(0) + \hbar^2 K^2 / 2M_{\text{exc}}$ с трансляционной массой M_{exc} должна быть близка к энергии падающих фотонов. Оптические переходы описываются матричным элементом оператора взаимодействия $V_{K,M} = \langle \exp_{K,M} | - \int \hat{d}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E} d^3 \mathbf{r} | 0 \rangle$, который вычисляется в приближении плавной огибающей для волновой функции экситона, в соответствии с Разделом 2.7.5 книги [58]. Плотность дипольного момента перехода $\langle \exp_{K,M} | \hat{d}(\mathbf{r}) | 0 \rangle = -ie/(m_0 \omega_0) \mathbf{p}_M F_K^*(\mathbf{r}, \mathbf{r})$ выражается через огибающую волновой функции при совпадающих координатах электрона и дырки, межзонный матричный элемент оператора импульса \mathbf{p}_M , заряд e и массу m_0 свободного электрона. Для простоты будет полагать, что спиновые состояния экситона не зависят от его волнового вектора K, и поэтому обозначим их той же проекцией спина M, что и состояния с K = 0. Учитывая, что огибающая функция имеет вид $F_{\mathbf{K}}(\mathbf{r},\mathbf{r}) = S^{-1/2} \exp(i\mathbf{K}\cdot\boldsymbol{\rho}) \Phi(z-h)$, где S – площадь квантовой ямы, а $\Phi(z-h) = \varphi(0,z,z)$, в результате интегрирования плотности дипольного момента с электрическим полем (3.1) получаем

$$V_{\boldsymbol{K},M} = (2\pi)^2 S^{-\frac{1}{2}} \sum_{\boldsymbol{m}} \delta(\boldsymbol{K} - \boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}}) \int \Phi^*(z - h) e^{iq_{z,\boldsymbol{m}}z} dz$$
$$\times \frac{ie}{m_0\omega_0} \boldsymbol{p}_M \left[\delta_{\boldsymbol{m},0} + \frac{iq^2b^2}{2\pi q_{z,\boldsymbol{m}}} \chi \hat{G}_{\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}}} \right] \boldsymbol{E}^0.$$
(3.2)

Дельта-функция $\delta(\mathbf{K} - \mathbf{b}_m)$ означает сохранение составляющей волнового вектора в плоскости ямы, которая принимает значения векторов обратной решётки \mathbf{b}_m . Интеграл перекрытия с чётной функцией $\Phi(z - h)$, входящий в уравнение (3.2), в случае узкой квантовой ямы оценивался в работе [А3], и может считаться практически не зависящим от волнового числа $q_{z,m}$. Правила отбора по спину определяются матричным элементом \mathbf{p}_M , который вычисляется на блоховских функциях электронных зон, формирующих экситон. Как было сказано выше, мы ограничимся случаем $\mathbf{p}_M = p_{cv} \mathbf{e}_M^*$ при $M = \pm 1$, где $\mathbf{e}_{\pm} = (\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y)/\sqrt{2}$ – единичные векторы круговой поляризации, и $\mathbf{p}_{M=\pm 2} = 0$.

Теперь найдём матрицу генерации, то есть, скорость изменения матрицы плотности экситонов за счёт поглощения света, рассеянного решёткой наночастиц. Будем интересоваться только диагональными компонентами по волновому вектору экситона *K*

$$g_{MM'}(\boldsymbol{K}) = 2\pi\hbar^{-1}V_{\boldsymbol{K},M}V_{\boldsymbol{K},M'}^* \,\delta(\hbar\omega - \mathcal{E}_{\text{exc}}(\boldsymbol{K})).$$
(3.3)

Фотоны с энергией $\hbar\omega = \mathcal{E}_{\text{exc}}(0)$ рождают экситоны с $\mathbf{K} = 0$, и соответствующие матричные элементы $V_{0,\pm} \sim \mathbf{e}_{\pm}^* \cdot \mathbf{E}^0 = E_{\pm}^0$ пропорциональны компонентам падающей волны с круговой поляризацией. В присутствии квадратной решётки симметричных наночастиц амплитуда падающей волны \mathbf{E}^0 умножается на коэффициент пропускания $t(\mathbf{K} = 0) = 1 + iq^2b^2\chi/(2\pi q_{z,m})$, который не зависит от поляризации света. Поэтому решётка не влияет на оптическую ориентацию (и поляризованную люминесценцию) экситонов с $\mathbf{K} = 0$, и для описания этого явления можно воспользоваться феноменологической теорией, изложенной в работе [81]. Для вычисления генерации экситонов частично поляризованным светом необходимо заменить произведения амплитуд $E_{\alpha}^0 E_{\beta}^{0*}$ в уравнении (3.3) на компоненты $d_{\alpha\beta}^0$ поляризационной матрицы падающего излучения, которую удобно представить в базисе векторов круговой поляризации \mathbf{e}_{\pm} в следующем

виде: $d_{MM'}^0 = I_0/2 (\delta_{MM'} + \sigma_{MM'} \cdot \mathcal{P}^0)$. Сюда входит скалярное произведение вектора из матриц Паули $\sigma = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ и вектора, составленного из параметров Стокса $\mathcal{P}^0 = (\mathcal{P}_l^0, \mathcal{P}_l^0, \mathcal{P}_c^0)$. Последние представляют собой степень линейной поляризации в осях x, y, степень линейной поляризации в повёрнутых на 45° осях x', y', и степень круговой поляризации падающего света. В таком случае матрица генерации экситонов при $\mathbf{K} = 0$ совпадает с точностью до множителя с матрицей поляризации в циркулярном базисе [81]

$$g_{MM'}(\boldsymbol{K}) = \frac{g_0 I_0}{2} \begin{pmatrix} 1 + \mathcal{P}_c^0 & \mathcal{P}_l^0 - i\mathcal{P}_{l'}^0 \\ \mathcal{P}_l^0 + i\mathcal{P}_{l'}^0 & 1 - \mathcal{P}_c^0 \end{pmatrix} \delta(\boldsymbol{K}) \,\delta\left(\hbar\omega - \mathcal{E}_{\text{exc}}(0)\right).$$
(3.4)

Отсюда можно заключить, что средний спин экситонов в момент возбуждения $M^0 = \text{Tr}(g\sigma)/\text{Tr}(g)$ совпадает с вектором \mathcal{P}^0 , определяющим поляризацию возбуждающего света.

Подставив уравнение (3.2) в (3.3), найдём компоненты матрицы генерации экситонов при $K \neq 0$

$$g_{MM'}(\boldsymbol{K}\neq 0) = \sum_{\boldsymbol{m}} g_{\boldsymbol{m}} \left(\boldsymbol{e}_{M}^{*} \hat{G}_{\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}}} \boldsymbol{E}^{0} \right) \left(\boldsymbol{e}_{M'} \hat{G}_{\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}}}^{*} \boldsymbol{E}^{0*} \right) \delta \left(\boldsymbol{K} - \boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}} \right) \delta \left(\hbar \omega - \mathcal{E}_{\text{exc}}(\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}}) \right),$$
$$g_{\boldsymbol{m}} = (2\pi)^{3} \hbar^{-1} \left(\frac{e p_{\text{cv}}}{m_{0} \omega_{0}} \right)^{2} \left| \int \Phi^{*}(z - h) e^{i q_{z, \boldsymbol{m}} z} dz \right|^{2} \left| \delta_{\boldsymbol{m}, 0} + \frac{i q^{2} b^{2}}{2\pi q_{z, \boldsymbol{m}}} \chi \right|^{2}.$$
(3.5)

Слагаемые с $m \neq 0$ отличны от нуля исключительно за счёт решётки, а спиновая поляризация соответствующих экситонов определяется поляризацией рассеянных волн $E_m \sim \hat{G}(b_m)E^0$. Пусть энергия падающих фотонов такова $\hbar\omega = \mathcal{E}_{\rm exc}(0) + \hbar^2 b^2 / 2M_{\rm exc}$, что рассеянное поле возбуждает экситоны с волновыми векторами $K = \pm be_x$ или $\pm be_y$ (как бы в первом порядке дифракции, смотри Рис. 3.3). Для этих значений K отличными от нуля компонентами тензора $\hat{G}(K)$ оказываются $G_{xx}(\pm be_x) = G_{yy}(\pm be_y) = \eta$ и $G_{yy}(\pm be_x) = G_{xx}(\pm be_y) = 1$, где параметр $\eta = 1 - b^2/q^2$ определяет изменение поляризации рассеянного поля по сравнению с поляризацией падающей на решётку волны. А именно, параллельная волновому вектору K компонента электрического поля E^0 масштабируется в η раз по сравнению с перпендикулярной составляющей. Учитывая это обстоятельство и заменяя в уравнении (3.5) произведения компонент поля на

компоненты матрицы поляризации, находим

$$g_{MM'}(\mathbf{K}) = \sum_{\mathbf{b}_{m}} \tilde{g}_{MM'}(\mathbf{b}_{m}) \,\delta\left(\mathbf{K} - \mathbf{b}_{m}\right) \,I_{0}\delta\left(\hbar\omega - \mathcal{E}_{\mathrm{exc}}(b)\right), \qquad (3.6)$$
$$\tilde{g}_{MM'}(\pm b\mathbf{e}_{x}) = \frac{g_{1}}{4} \begin{pmatrix} 1 + \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} - 1\right) + 2\eta\mathcal{P}_{c}^{0} & \eta^{2} - 1 + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} + 1\right) - 2i\eta\mathcal{P}_{l'}^{0} \\ \eta^{2} - 1 + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} + 1\right) + 2i\eta\mathcal{P}_{l'}^{0} & 1 + \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} - 1\right) - 2\eta\mathcal{P}_{c}^{0} \end{pmatrix}$$
$$\tilde{g}_{MM'}(\pm b\mathbf{e}_{y}) = \frac{g_{1}}{4} \begin{pmatrix} 1 + \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(1 - \eta^{2}\right) + 2\eta\mathcal{P}_{c}^{0} & 1 - \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} + 1\right) - 2i\eta\mathcal{P}_{l'}^{0} \\ 1 - \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(\eta^{2} + 1\right) + 2i\eta\mathcal{P}_{l'}^{0} & 1 + \eta^{2} + \mathcal{P}_{l}^{0}\left(1 - \eta^{2}\right) - 2\eta\mathcal{P}_{c}^{0} \end{pmatrix}$$

Из выражения (3.6) следует, что экситоны с четырьмя разрешёнными значениями волнового вектора генерируются с разными скоростями $\text{Tr}g(\mathbf{K})$ и различным средним спином. Следует отметить, что произведение $I_0\delta(\hbar\omega - \mathcal{E}_{\text{exc}}(K))$ в уравнениях (3.4) - (3.6) возникло при рассмотрении монохроматической волны, и в общем случае его следует заменить на спектральную интенсивность излучения $I_0(\mathcal{E}_{\text{exc}}(K))$ с необходимой энергией фотонов.

3.3 Матрица плотности экситонов

Чтобы определить характеристики рекомбинационного излучения экситонов, найдём стационарное значение матрицы плотности $\rho_{MM'}(\mathbf{K})$ с помощью следующего уравнения [82] (также смотри Главу 3 в книге [83])

$$-\frac{i}{\hbar} \left[\mathcal{H}_B, \rho\right] - \frac{\rho}{\tau} - \frac{\rho - \langle \rho \rangle_{\varphi}}{\tau_p} + \left(\frac{\partial \langle \rho \rangle_{\varphi}}{\partial t}\right)_{\text{s.r.}} + g\left(\mathbf{K}\right) = 0.$$
(3.7)

Здесь предполагается, что матрица плотности имеет спиновые индексы $M, M' = \pm 1$, но диагональна по импульсу $\hbar K$ экситона в плоскости квантовой ямы. Это приближение справедливо при рассмотрении процессов упругого рассеяния экситонов на примесях, и усреднении матрицы плотности по случайным расположениям рассеивающих центров [84]. Первое слагаемое в уравнении (3.7) описывает динамику спина экситонов во внешнем магнитном поле. Мы рассмотрим случай продольного (к оси роста) магнитного поля B_z , в котором гамильтониан $\mathcal{H}_B = \frac{1}{2}\hbar\Omega\sigma_z$ описывает расщепление $\hbar\Omega = g_{\parallel}\mu_{\rm B}B_z$ состояний со спином $M = \pm 1$. Здесь $\mu_{\rm B}$ - магнетон Бора, и g_{\parallel} - эффективный продольный *g*-фактор экситона. Второе слагаемое в (3.7) описывает рекомбинацию экситонов за время жизни τ . Третье слагаемое представляет релаксацию импульса экситонов за счёт упругих столкновений, в результате которых матрица плотности стремится к усреднённому по направлению импульса $\hbar K$ значению $\langle \rho \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \rho(K) d\varphi$. Время релаксации импульса τ_p мы будем считать самым коротким, что позволяет существенно упростить теорию по сравнению с общим случаем [85]. Слагаемое $(\partial \langle \rho \rangle / \partial t)_{s.r.}$, которое описывает процессы спиновой релаксации, будет учитываться в простейшем виде

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\langle \rho_{++} \rangle - \langle \rho_{--} \rangle \right)_{\text{s.r.}} = -\frac{\langle \rho_{++} \rangle - \langle \rho_{--} \rangle}{\tau_{s1}},$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\langle \rho_{+-} \right\rangle_{\text{s.r.}} = -\frac{\langle \rho_{+-} \rangle}{\tau_{s2}}, \quad \frac{\partial}{\partial t} \left\langle \rho_{-+} \right\rangle_{\text{s.r.}} = -\frac{\langle \rho_{-+} \rangle}{\tau_{s2}}.$$
(3.8)

Таким образом предполагается, что усреднённая *z*-компонента спина экситонов $\langle M_z \rangle = (\langle \rho_{++} \rangle - \langle \rho_{--} \rangle)/\text{Tr} \langle \rho \rangle$ исчезает со скоростью τ_{s1}^{-1} , а компоненты спина в плоскости квантовой ямы $\langle M_x \rangle = (\langle \rho_{+-} \rangle + \langle \rho_{-+} \rangle)/\text{Tr} \langle \rho \rangle$ и $\langle M_y \rangle = i(\langle \rho_{+-} \rangle - \langle \rho_{-+} \rangle)/\text{Tr} \langle \rho \rangle$ убывают со скоростью τ_{s2}^{-1} . Такая феноменологическая модель не предполагает конкретного механизма спиновой релаксации, поскольку относится к усреднённому спину экситонов по направлениям импульса. В этом разделе мы не учитываем релаксацию энергии экситонов, обусловленную неупругим рассеянием, и ищем спиновую матрицу плотности при постоянном значении энергии и, следовательно, модуля волнового вектора $|\mathbf{K}|$. Вторичное излучение таких экситонов имеет ту же частоту, что и падающий свет.

Чтобы решить уравнение (3.7), усредним его по направлениям волнового вектора K, найдём среднее значение матрицу плотности и подставим его в исходное уравнение (3.7). При этом удобно представить спиновую матрицу плотности в виде $\rho_{MM'} = N/2 (\delta_{MM'} + \sigma_{MM'} \cdot M)$, где $N = \text{Tr}\rho$ есть число экситонов с заданным волновым вектором, а $M = \text{Tr}(\rho\sigma)/N$ - средний угловой момент, приходящийся на один экситон. Подобное представление уже использовалось в Разделе 3.2 для матрицы поляризации света и матрицы генерации экситонов при K = 0. Продольная и поперечные компоненты углового момента M_z и $M_{x,y}$ эволюционируют независимо, даже с учётом спиновой релаксации (3.8). Однако слагаемое $-i\hbar^{-1}[\mathcal{H}_B,\rho] = \Omega N(\sigma_y M_x - \sigma_x M_y)$ смешивает поперечные компоненты, что соответствует прецессии спина в магнитном поле B_z . После усреднения уравнения (3.7) получаем

$$\langle N \rangle = \tau \operatorname{Tr} \langle g \rangle, \quad \langle N M_z \rangle = \tau_1 \langle g_{++} - g_{--} \rangle, \langle N (M_x - iM_y) \rangle = \frac{\tau_2}{1 + i\Omega\tau_2} 2 \langle g_{+-} \rangle, \langle N (M_x + iM_y) \rangle = \frac{\tau_2}{1 - i\Omega\tau_2} 2 \langle g_{-+} \rangle.$$

$$(3.9)$$

Здесь $\tau_i^{-1} = \tau^{-1} + \tau_{si}^{-1}$ обозначает суммарную скорость релаксации углового момента экситонов. Подставляя найденные компоненты усреднённой матрицы плотности обратно в уравнение (3.7), находим

$$N = \tau_* \left(\operatorname{Tr} g + \frac{\tau}{\tau_p} \operatorname{Tr} \langle g \rangle \right),$$
$$NM_z = \tau_* \left(g_{++} - g_{--} + \frac{\tau_1}{\tau_p} \langle g_{++} - g_{--} \rangle \right),$$
$$(3.10)$$
$$N\left(M_x - iM_y \right) = \frac{2\tau_*}{1 + i\Omega\tau_*} \left(g_{+-} + \frac{\tau_2}{\tau_p} \frac{\langle g_{+-} \rangle}{1 + i\Omega\tau_2} \right) = N\left(M_x + iM_y \right)^*,$$

где введено обозначение $\tau_*^{-1} = \tau^{-1} + \tau_p^{-1}$. Поскольку матрица генерации экситонов (3.6) имеет вид $g(\mathbf{K}) = \sum_{|\mathbf{b}_m|=b} I_0 \tilde{g}(\mathbf{b}_m) \delta(\mathbf{K} - \mathbf{b}_m)$, её среднее значение по направлению волнового вектора $\langle g(\mathbf{K}) \rangle = I_0/(\pi b) (\tilde{g}(b\mathbf{e}_x) + \tilde{g}(b\mathbf{e}_y)) \delta(K-b)$. Таким образом, результирующая матрица плотности (3.10) содержит вклады с выделенными значениями волнового вектора, пропорциональные матрицам $\tilde{g}(\mathbf{b}_m)$,

Рис. 3.3 — Распределение экситонов, возбуждаемых светом на частоте $\omega = \omega_{\text{exc}}(b)$, в **К**-пространстве. Пунктирными окружностями выделены области «светлых» экситонов $|\mathbf{K} - \mathbf{b}_{m}| = |\mathbf{q}_{\parallel}| < q(\omega)$, которые могут излучать фотоны с проекцией волнового вектора \mathbf{q}_{\parallel} .

и изотропный вклад, пропорциональный средней матрице $(\tilde{g}(b\boldsymbol{e}_x) + \tilde{g}(b\boldsymbol{e}_y))/2$. В случае быстрой релаксации импульса изотропная составляющая будет преобладающей в меру $\tau_i \sim \tau \gg \tau_p$. Тогда можно упростить ответ, полагая $\tau_* \approx \tau_p$ и пренебрегая $\Omega \tau_p \ll 1$. Подставляя выражение (3.6) для матрицы генерации в выражения (3.10), получим изотропную составляющую плотности экситонов с $|\boldsymbol{K}| = b$ и их средний спин

$$N = (\eta^{2} + 1) \frac{\tau g_{1} I_{0}}{\pi b} \delta(K - b), \quad M_{z} = \frac{\tau_{1}}{\tau} \frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \mathcal{P}_{c}^{0},$$
$$M_{x} - i M_{y} = \frac{1}{1 + i\Omega\tau_{2}} \frac{\tau_{2}}{\tau} \left(\mathcal{P}_{l}^{0} - i \frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \mathcal{P}_{l'}^{0} \right).$$
(3.11)

Полученный результат следует сравнивать со спиновой ориентацией экситонов с K = 0, для которых справедливо аналогичное уравнение вида (3.7), за исключением слагаемого, соответствующего релаксации импульса [81]. В этом случае, зная матрицу генерации (3.4), находим плотность экситонов $N = \tau g_0 I_0 \, \delta(K)$ и компоненты среднего спина

$$M_{z} = \frac{\tau_{1}}{\tau} \mathcal{P}_{c}^{0}, \quad M_{x} - iM_{y} = \frac{1}{1 + i\Omega\tau_{2}} \frac{\tau_{2}}{\tau} \left(\mathcal{P}_{l}^{0} - i\mathcal{P}_{l'}^{0} \right).$$
(3.12)

Таким образом, при возбуждении экситонов с волновыми векторами |K| = bчерез решётку наночастиц степени круговой и линейной поляризации в повёрнутых осях x',y' по отношению к решётке приобретают дополнительный множитель $2\eta/(\eta^2+1)$. Как и в случае K = 0, свет с круговой поляризацией рождает экситоны с угловым моментом вдоль оси z, а линейно поляризованный свет рождает экситоны с угловым моментом в перпендикулярной плоскости ху. Однако следует отметить, что времена рекомбинации τ и спиновой релаксации τ_i , входящие в уравнения (3.11) и (3.12), будут отличаться для экситонов с |K| = bили K = 0. Параметры Стокса \mathcal{P}_{l}^{0} и $\mathcal{P}_{l'}^{0}$ по-разному вошли в результат (3.11), поскольку мы рассматривали возбуждение экситонов с волновыми векторами К вдоль осей решётки х, у. Если же, наоборот, возбуждать экситоны с волновыми векторами $m{K} = b(m{e}_x \pm m{e}_y)$, то степень поляризации $\mathcal{P}^0_{l'}$ войдет в ответ с множителем 1, а степень пояризации \mathcal{P}_l^0 войдёт с множителем $2\eta'/({\eta'}^2+1)$, где $\eta' = 1 - 2b^2/q^2$. Другими словами, решётка не оказывает влияния на степень линейной поляризации в осях, совпадающих с направлениями распространения возбуждаемых экситонов.

3.4 Люминесценция горячих экситонов

В предыдущем разделе мы нашли распределение экситонов по импульсам и их спиновую матрицу плотности, возникшую в результате непрерывной оптической накачки. Чтобы определить характеристики излучения экситонов, мы воспользуемся правилом Ферми для вероятности спонтанного излучения фотонов [86], поскольку основным каналом рекомбинации экситонов являются безызлучательные процессы. Процесс люминесценции, обратный по отношению к поглощению света, описывается комплексно сопряжённым матричным элементом взаимодействия (3.2), в котором внешнее электрическое поле E_0 следует заменить полем нулевых колебаний выделенной моды фотонов. Хотя фотонные моды в рассматриваемой структуре (Рис. 3.1) и отличаются от фотонов в однородной среде, они так же описываются волновым вектором $q = (q_{\parallel}, q_z)$ и поляризацией (s или p) волны, падающей на решётку из окружающего пространства. При этом излучение с заданной частотой ω и волновым вектором q_{\parallel} , регистрируемое при $z = -\infty$, включает обе моды с $q_z = \pm (q^2 - q_{\parallel}^2)^{1/2}$. Как показано на Рис. 3.3, решётка позволяет излучать свет экситонам с волновыми векторами из областей $|K - b_m| = |q_{\parallel}| < q(\omega)$, где волновой вектор излучения q_{\parallel} принимает любые значения внутри «светового конуса». С точностью до множителя, определяющего интенсивность, матрица поляризации вторичного излучения экситонов записывается в виде

$$d_{\alpha\beta}\left(\boldsymbol{q}_{\parallel}\right) = \sum_{\boldsymbol{K},MM'} V_{\boldsymbol{K},M;\boldsymbol{q}_{\parallel},\alpha} V_{\boldsymbol{K},M';\boldsymbol{q}_{\parallel},\beta}^{*} \rho_{MM'}(\boldsymbol{K}).$$
(3.13)

Далее рассмотрим излучением экситонов под малыми углами к оси роста структуры z, такими что, с одной стороны, это излучение можно отличить от зеркального отражения луча накачки, а с другой стороны, можно положить $q_{\parallel} \approx 0$ и воспользоваться выражением (3.2) для оптического матричного элемента. Подставив в (3.13) матрицу плотности фотовозбуждённых экситонов с |K| = b, заданную при помощи параметров (3.11), и суммируя вклады экситонов с волновыми векторами $K = \pm be_x$ и $\pm be_y$, находим параметры Стокса вторичного излучения (частота которого совпадает с частотой накачки)

$$\mathcal{P}_{l} = \frac{\tau_{2}}{\tau} \left[1 + (\Omega \tau_{2})^{2} \right]^{-1} \left(\mathcal{P}_{l}^{0} - \Omega \tau_{2} \frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \mathcal{P}_{l'}^{0} \right),$$

$$\mathcal{P}_{l'} = \frac{\tau_{2}}{\tau} \left[1 + (\Omega \tau_{2})^{2} \right]^{-1} \frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \left(\frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \mathcal{P}_{l'}^{0} + \Omega \tau_{2} \mathcal{P}_{l}^{0} \right),$$

$$\mathcal{P}_{c} = \frac{\tau_{1}}{\tau} \left(\frac{2\eta}{\eta^{2} + 1} \right)^{2} \mathcal{P}_{c}^{0}.$$
(3.14)

Чтобы описать люминесценцию экситонов с K = 0, можно подставить спиновую матрицу плотности (3.12) в выражение (3.13), или же формально положить $\eta \rightarrow 1$ в уравнении (3.14). Оба способа приводят к известному результату [71]:

$$\mathcal{P}_l - i\mathcal{P}_{l'} = \frac{\tau_2}{\tau} \frac{1}{1 + i\Omega\tau_2} \left(\mathcal{P}_l^0 - i\mathcal{P}_{l'}^0 \right), \quad \mathcal{P}_c = \frac{\tau_1}{\tau} \mathcal{P}_c^0. \tag{3.15}$$

Как видно из уравнений (3.14) и (3.15), степень круговой поляризации излучения уменьшается (по сравнению с поляризацией накачки) за счёт релаксации продольной компоненты спина. Линейная поляризация уменьшается из-за поперечной спиновой релаксации и дополнительно подавляется приложенным

Рис. 3.4 — Отношения степени линейной поляризации излучения экситонов $\mathcal{P}_{l'}$ в повёрнутых осях x',y' к степени линейной поляризации накачки $\mathcal{P}_{l'}^0$ в тех же осях (**a**), или к степени линейной поляризации накачки \mathcal{P}_{l}^0 в осях x,y (**b**). Построены на основании уравнения (3.14) при $\tau_2/\tau = 0.8$ как функции параметра $\Omega \tau_2$, пропорционального приложенному магнитному полю. Сплошные линии ($\eta = 1$) соответствуют обычному случаю выстраивания экситонов с K = 0. Пунктирные ($\eta = -2$) и штрих-пунктирные кривые ($\eta = -3$) демонстрируют влияние решётки на выстраивание. На графиках отмечены характерные точки, которые используются для определения времени релаксации спина τ_2 в эксперименте.

магнитным полем. Кроме того, в магнитном поле линейная поляризация накачки \mathcal{P}_l^0 частично преобразуется в линейную поляризацию люминесценции $\mathcal{P}_{l'}$ в повёрнутых осях (и наоборот, поляризация $\mathcal{P}_{l'}^0$ преобразуется в \mathcal{P}_l).

Отличие поляризованной люминесценции экситонов с K = 0 и |K| = bзаключается в множителе $2\eta/(\eta^2 + 1)$, который обусловлен решёткой и не должен быть слишком малым, если мы хотим наблюдать оптическую ориентацию горячих экситонов. Для этого период решётки *a* должен быть только в несколько раз (в 2-3 раза) меньше чем длина волны излучения в полупроводнике. На Рис. 3.4 показаны отношения степеней линейной поляризации излучения и накачки в зависимости от параметра $\Omega \tau_2$ (пропорционального магнитному полю) для нескольких значений параметра решётки η . Измерение подобных зависимостей (по аналогии с эффектом Ханле) позволяет оценивать времена рекомбинации и спиновой релаксации экситонов, но в случае $\eta \neq 1$, в присутствии решётки, эти времена относятся к горячим экситонам с отличными от нуля волновыми векторами. Таким образом, создание гибридной структуры с квантовой ямой и решёткой наночастиц позволит изучать свойства горячих экситонов.

3.5 Решение кинетического уравнения при учёте энергетической релаксации экситонов

В рассмотренной выше картине частоты возбуждающего и излучаемого света совпадали, что может осложнять наблюдение поляризованной люминесценции горячих экситонов. Однако экситоны могут терять свою кинетическую энергию в процессе рассеяния на акустических фононах, и затем излучать свет на более низкой частоте, что схематически показано на Рис. 3.5. Для описания оптической ориентации экситонов в том случае необходимо включить энергетическую релаксацию в уравнение (3.7) для стационарной матрицы плотности. Это можно сделать с помощью уравнения Фоккера-Планка [87], поскольку что кинетическая энергия экситонов изменяется небольшими порциями при взаимодействии с длинноволновыми акустическими фононами. Полагая, что спонтанное испускание фононов преобладает над поглощением, можно пренебречь энергетической диффузией и составить следующее уравнение для матрицы плотности экситонов $\langle \rho \rangle$, усреднённой по направлениям импульса

$$-\frac{i\Omega}{2\hbar} \left[\sigma_z, \langle \rho \rangle\right] - \frac{\langle \rho \rangle}{\tau} + \left(\frac{\partial \langle \rho \rangle}{\partial t}\right)_{\text{s.r.}} + \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{\varepsilon}{\tau_\varepsilon} \langle \rho \rangle\right) + \langle g \rangle = 0.$$
(3.16)

По сравнению с уравнением (3.7), здесь сразу учитывается практически мгновенная релаксация импульса экситонов, и матрица плотности $\langle \rho \rangle(\varepsilon)$ зависит только от кинетической энергии $\varepsilon(K) \approx \hbar^2 K^2/(2M_{\rm exc})$. Новое слагаемое в уравнении (3.16) отвечает дрейфу экситонов в сторону уменьшения кинетической энергии. Представим усреднённую по направлениям импульса матрицу генерации экситонов в виде $\langle g \rangle = 1/2 \operatorname{Tr} \langle g \rangle (1 + \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{M}^0)$. При возбуждении в узком спектральном диапазоне $\operatorname{Tr} \langle g \rangle = \mathcal{G} \, \delta(\varepsilon - \varepsilon_0)$, так что экситоны рождаются с определённым значением кинетической энергии ε_0 . Например, в случае экситонов с волновыми векторами $\boldsymbol{K} = \pm b \boldsymbol{e}_x$ и $\pm b \boldsymbol{e}_y$ имеем $\varepsilon_0 = \varepsilon(b)$, и в результате усреднения выражения (3.6) находим $\mathcal{G} = (\eta^2 + 1)g_1I_0\hbar^2/(2\pi M_{\rm exc})$ и среднее значение спина в момент генерации $\boldsymbol{M}^0 = (\mathcal{P}_l^0, 2\eta/(\eta^2 + 1) \mathcal{P}_l^0)$.

Чтобы решить уравнение (3.16), снова воспользуемся представлением матрицы плотности $\langle \rho \rangle = N/2 \ (1 + \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{M})$, и получим систему уравнений для плотности экситонов и средних проекций углового момента (которые являются теперь функциями ε)

$$\frac{N}{\tau} - \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{\varepsilon}{\tau_{\varepsilon}} N \right) = \mathcal{G} \, \delta(\varepsilon - \varepsilon_0), \qquad (3.17)$$

$$\frac{NM_z}{\tau_1} - \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\frac{\varepsilon}{\tau_{\varepsilon}} NM_z \right) = \mathcal{G}M_z^0 \,\delta(\varepsilon - \varepsilon_0), \tag{3.18}$$

$$\left[\frac{1}{\tau_2} + i\Omega - \frac{\partial}{\partial\varepsilon}\frac{\varepsilon}{\tau_{\varepsilon}}\right]N\left(M_x - iM_y\right) = \mathcal{G}\left(M_x^0 - iM_y^0\right) \,\,\delta(\varepsilon - \varepsilon_0). \tag{3.19}$$

Последнее уравнение выполняется одновременно с его комплексно сопряжённым. Уравнения с δ -функциями в правой части эквивалентны однородным уравнениям на интервале $0 < \varepsilon < \varepsilon_0$ с граничными условиями $N(\varepsilon_0 - 0) = \mathcal{G} \tau_{\varepsilon}(\varepsilon_0)/\varepsilon_0$ и $NM_i(\varepsilon_0 - 0) = \mathcal{G}M_i^0 \tau_{\varepsilon}(\varepsilon_0)/\varepsilon_0$ которые предполагают отсутствие экситонов с энергиями $\varepsilon > \varepsilon_0$. Их решение имеет вид

$$N(\varepsilon) = \mathcal{G} \, \frac{\tau_{\varepsilon}}{\varepsilon} \, \exp\left(-\int_{\varepsilon}^{\varepsilon_0} \frac{d\varepsilon'}{\varepsilon'} \frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau}\right), \tag{3.20}$$

$$NM_{z} = \mathcal{G}M_{z}^{0} \frac{\tau_{\varepsilon}}{\varepsilon} \exp\left(-\int_{\varepsilon}^{\varepsilon_{0}} \frac{d\varepsilon'}{\varepsilon'} \frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_{1}}\right), \qquad (3.21)$$

и, если ввести обозначение $T = \int_{\varepsilon}^{\varepsilon_0} d\varepsilon' \tau_{\varepsilon} / \varepsilon'$, поперечные компоненты углового момента определяются следующим выражением (и комплексно сопряжённым)

$$N\left(M_x - iM_y\right) = \mathcal{G}\left(M_x^0 - iM_y^0\right) \frac{\tau_{\varepsilon}}{\varepsilon} \exp\left(-\int_{\varepsilon}^{\varepsilon_0} \frac{d\varepsilon'}{\varepsilon'} \frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_2} - i\Omega T\right).$$
(3.22)

Интегралы в выражениях (3.20) - (3.22) можно оценить, предполагая, что времена $\tau, \tau_{\varepsilon} = \text{const}(\varepsilon)$ не зависящими от кинетической энергии, и что время релаксации спина $\tau_{si}(\varepsilon) \sim \varepsilon^{-1}$, как в случае механизма спиновой релаксации Дьяконова–Переля [88]. Учитывая принятое обозначение $\tau_i^{-1} = \tau^{-1} + \tau_{si}^{-1}$, получаем зависимости от энергии

$$N(\varepsilon) = \mathcal{G} \, \frac{\tau_{\varepsilon}}{\varepsilon} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}\right)^{\tau_{\varepsilon}/\tau},\tag{3.23}$$

$$M_z(\varepsilon) = M_z^0 \exp\left(\frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_{s1}(\varepsilon)} - \frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_{s1}(\varepsilon_0)}\right), \qquad (3.24)$$

$$M_x - iM_y = \left(M_x^0 - iM_y^0\right) \exp\left(\frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_{s2}(\varepsilon)} - \frac{\tau_{\varepsilon}}{\tau_{s2}(\varepsilon_0)}\right) \exp(-i\Omega T).$$
(3.25)

Таким образом, по мере того, как экситоны теряют кинетическую энергию, их продольная компонента спина M_z экспоненциально убывает, тем быстрее, чем длиннее время энергетической релаксации τ_{ε} . Поперечные компоненты спина также убывают при уменьшении энергии экситонов, и дополнительно преобразуются друг в друга за счёт прецессии спина с угловой скоростью Ω в приложенном магнитном поле. Однако в отличие от результата (3.11), полученного без учёта энергетической релаксации, в выражении (3.25) отсутствует множитель $(1 + i\Omega\tau_2)^{-1}$, который обеспечивает убывающую зависимости поперечных компонент спина от магнитного поля.

Следует подчеркнуть, что результаты (3.11) и (3.23) - (3.25) относятся к принципиально разным ситуациям. В первом случае рассматривается спиновая поляризация экситонов, которые ещё не потеряли энергию, а последний случай относится к экситонам с меньшей кинетической энергией, которые появляются именно вследствие процесса релаксации. Часть экситонов, потеряв кинетическую энергию при испускании фононов, окажется вблизи дна энергетической зоны и сможет излучить свет на частоте $\omega \approx \omega_0$. Согласно уравнению (3.13), степени поляризации излучения таких экситонов вдоль оси *z* точно равны средним компонентам углового момента, которые определяются выражениями (3.24) и (3.25) при $\varepsilon \rightarrow 0$. Таким образом, решётка наночастиц позволяет возбуждать горячие экситоны при поглощении фотонов с энергией $\hbar \omega = \mathcal{E}_{\text{exc}}(\boldsymbol{b}_{\boldsymbol{m}})$, и регистрировать люминесценцию термализованных экситонов с волновым вектором $\boldsymbol{K} = 0$ (из Г-точки). Поляризация излучения этих экситонов содержит сведения о кинетике релаксационных процессов.

Рис. 3.5 — Схема возбуждения и излучательной рекомбинации экситонов с учётом энергетической релаксации, обусловленной испусканием длинноволновых акустических фононов.

3.6 Выводы к главе 3

В данной главе построена теория оптической ориентации горячих экситонов, которые генерируются в квантовой яме с помощью ближнего поля короткопериодной решётки металлических наночастиц. Представленная модель учитывает влияние решётки как на ориентацию спина экситонов, так и на поляризацию вторичного излучения. В результате показано, что решётки с периодом в несколько раз меньшим длины волны света позволяют наблюдать корреляцию между поляризацией излучения экситонов и поляризацией накачки. Таким образом, можно определять времена рекомбинации и спиновой релаксации горячих экситонов с помощью измерений степени линейной и круговой поляризации люминесценции в зависимости от приложенного магнитного поля в геометрии Фарадея. Помимо квазирезонансной люминесценции, излучение может наблюдаться на более низкой частоте благодаря релаксации кинетической энергии экситонов. В этом случае зависимости поляризации излучения термализованных экситонов от магнитного поля дают информацию о кинетике неупругого рассеяния экситонов на акустических фононах.

Заключение

В настоящей работе теоретически рассмотрен ряд оптических явлений, возникающих в полупроводниковых наноструктурах с металлическими частицами. В последние десятилетия подобные системы создавались и исследовались многими научными группами. В диссертации исследованы спектры анизотропного резонансного отражения света от массивов металлических наночастиц на полупроводниковой подложке. Была развита теория, с помощью которой были найдены параметры коллективных плазмонных мод, распространяющихся в слое наночастиц. Далее исследовано кулоновское взаимодействие таких плазмонов с экситонами в квантовой яме, располагающейся на субволновом расстоянии от металлических частиц. Получена оценка константы взаимодействия, и изучено его влияние на оптические спектры сложных структур с металлическими наночастицами или нанопроволоками. В третьей части работы продемонстрирована возможность оптической ориентации низкоразмерных экситонов через решётку наночастиц, и наблюдения поляризованной люминесценции горячих экситонов.

Основные результаты диссертационной работы состоят в следующем.

- 1. Представлена теория плазмонов в слое наночастиц, при помощи которой интерпретированы спектры анизотропного отражения света, наблюдавшиеся для массивов нанокластеров In на подложке InAs.
- 2. Получены оценки константы плазмон-экситонного взаимодействия в модели близко расположенных полупроводниковой квантовой ямы и слоя металлических наночастиц или нанопроволок. Показано, что при плазмон-экситонном резонансе в наносистемах GaAs/Ag и ZnO/Al оптические спектры имеют двухпиковую структуру, поведение которой при расстройке резонанса соответствует антипересечению спектров плазмонов и экситонов.
- 3. Теоретически показано, что в присутствии металлической решётки возможна оптическая ориентация горячих экситонов с ненулевым импульсом в плоскости квантовой ямы. Измерения поляризованной люминесценции горячих экситонов в магнитном поле позволят исследовать структуру их уровней и оценить времена спиновой релаксации.

Список сокращений и условных обозначений

RAS	reflectance anisotropy spectroscopy - спектроскопия анизотроп-				
	ного отражения				
R_x, R_y	коэффициенты отражения линейно поляризованного света при				
	нормальном падении				
$\Delta R/R$	величина анизотропного отражения				
a_x, a_y, a_z	полуоси эллипсоида, рассматриваемого в качестве модели ме-				
	таллической наночастицы				
A_x, A_y	периоды прямоугольной решётки наночастиц				
$\varepsilon(\omega), \varepsilon_1$	диэлектрические проницаемости металла и окружающей нано-				
	частицу прозрачной среды				
$\varepsilon_2 = \varepsilon_b$	диэлектрическая проницаемость полупроводника				
ω_p	плазменная частота в металле				
γ	скорость релаксации импульса электронов в металле				
$\chi^{(0)}_{lpha lpha}$	главные компоненты поляризуемости отдельной наночастицы				
$N^{(\alpha)}$	коэффициенты деполяризации эллипсоида				
$\hat{\chi}(oldsymbol{\kappa})$	эффективная поляризуемость наночастиц в решётке				
$k_0 = \omega/c$	волновое число света в вакууме				
κ	волновой вектор в плоскости структуры				
k_i, q_i	нормальная составляющая и модуль волнового вектора в среде				
	с диэлектрической проницаемостью ε_i				
$\mathbf{b_m}$	векторы обратной решётки				
Î	единичный тензор				
$\hat{D}^{(0)}(oldsymbol{ ho},z,z')$	тензорная функция Грина для электрического поля				
$\mu = \bar{r}_{12}^p$	коэффициент отражения в квазистатическом пределе				
a_B	радиус экситона в объёмном полупроводнике				
$\omega_{ m LT}$	продольно-поперечное расщепление 3D-экситона				
Δ	константа связи плазмон-экситонов				
d	период одномерной решётки нанопроволок				

Публикации автора по теме диссертации

- А1. Кособукин, В. А. Плазмонная спектроскопия анизотропного отражения света от наночастиц металла, находящихся на поверхности полупроводника / В. А. Кособукин, А. В. Коротченков // Физика Твёрдого Тела. 2016. Т. 58, № 12. С. 2446—2453. DOI: 10.21883/ftt.2016.12.43871.164. Перевод на англ.: Kosobukin, V. A. Plasmonic reflectance anisotropy spectroscopy of metal nanoparticles on a semiconductor surface / V. A. Kosobukin, A. V. Korotchenkov // Physics of the Solid State. 2016. Vol. 58, no. 12. Р. 2536—2544. DOI: 10.1134/S1063783416120131.
- A2. Korotchenkov, A. Plasmonic reflectance anisotropy spectroscopy of metal nanoclusters in a dielectric multilayer. Theory / A. Korotchenkov, V. Kosobukin // Journal of Physics: Conference Series. Vol. 929. – 2017. – P. 012071. – DOI: 10.1088/1742-6596/929/1/012071.
- АЗ. Аверкиев, Н. С. К теории плазмон-экситонов: оценка константы взаимодействия и оптический спектр / Н. С. Аверкиев, А. В. Коротченков, В. А. Кособукин // Физика и Техника Полупроводников. 2019. Т. 53, № 8. С. 1063—1067. DOI: 10.21883/FTP.2019.08.47996.9107. Перевод на англ.: Averkiev, N. S. On the Theory of Plasmon–Excitons: An Estimate of the Coupling Constant and the Optical Spectrum / N. S. Averkiev, A. V. Korotchenkov, V. A. Kosobukin // Semiconductors. 2019. Vol. 53, no. 8. Р. 1042—1047. DOI: 10.1134/S1063782619080050.
- A4. Korotchenkov, A. V. Coupling of Quantum-Well Excitons to Plasmons in One-Dimensional Metal Nanocylinder Gratings / A. V. Korotchenkov // Semiconductors. – 2020. – Vol. 54, no. 11. – P. 1506–1508. – DOI: 10.1134/ S1063782620110159.
- A5. Korotchenkov, A. V. Optical orientation of excitons in hybrid metal-semiconductor nanostructures / A. V. Korotchenkov, N. S. Averkiev // Physical Review B. - 2024. - Vol. 109, no. 12. - P. 125418. - DOI: 10.1103/PhysRevB.109. 125418.

Список докладов на конференциях

- К1. Международная молодёжная конференция ФизикА.СПб, 1-3 ноября 2016 г. Коротченков А. В., Кособукин В. А. Плазмонное анизотропное отражение света от массивов металлических нанокластеров. Тезисы докладов, с. 182.
- K2. Международная конференция ФизикА.СПб, 23-25 октября 2018 г. Korotchenkov A. V., Kosobukin V. A. Optics of low-dimensional plasmonexcitons in metal-semiconductor nanostructures. Тезисы докладов, с. 159.
- К3. Совещание по теории твёрдого тела, Санкт-Петербург, 28-30 мая 2019 г. А. В. Коротченков, В. А. Кособукин, Н. С. Аверкиев. Плазмон-экситонный спектр наноструктур с квантовыми ямами. Сборник тезисов, с. 38.
- K4. 28th International Symposium Nanostructures: Physics and Technology, Minsk, September 2020. A. V. Korotchenkov. Coupling of quantum well excitons to plasmons in one-dimensional metal nanocylinder gratings. Proceedings, p. 162.
- К5. ХХVІІ Международный симпозиум НАНОФИЗИКА И НАНОЭЛЕКТРО-НИКА, Нижний Новгород, 13–16 марта 2023 г. Н. С. Аверкиев, А. В. Коротченков. Выстраивание горячих экситонов в гибридных наноструктурах металл-полупроводник. Устный доклад. Том 2 с. 511.
- K6. International conference Days on Diffraction 2023, St. Petersburg, June 5-9, 2023. Korotchenkov A. V., Averkiev N. S. Optical alignment of hot excitons in metal-semiconductor nanostructures. Book of abstracts, p. 98.

Список литературы

- Novotny, L. Principles of nano-optics / L. Novotny, B. Hecht. 2006. DOI: 10.1017/CBO9780511813535.
- Surface Enhanced Raman Scattering / ed. by R. K. Chang, T. E. Furtak. Boston, MA : Springer US, 1982. – DOI: 10.1007/978-1-4615-9257-0.
- Ferry, V. E. Design considerations for plasmonic photovoltaics / V. E. Ferry, J. N. Munday, H. A. Atwater // Advanced Materials. – 2010. – Vol. 22, no. 43. – P. 4794–4808. – DOI: 10.1002/adma.201000488.
- 4. Second-harmonic generation interferometry in magnetic-dipole nanostructures / I. A. Kolmychek [et al.] // Optics Letters. 2015. Vol. 40, no. 16. P. 3758. DOI: 10.1364/OL.40.003758.
- *Zhao*, *Y.* Manipulating light polarization with ultrathin plasmonic metasurfaces / Y. Zhao, A. Alù // Physical Review B. – 2011. – Vol. 84, no. 20. – P. 205428. – DOI: 10.1103/PhysRevB.84.205428.
- Localized surface plasmon resonance biosensor using nanopatterned gold particles on the surface of an optical fiber / H.-M. Kim [et al.] // Sensors and Actuators B: Chemical. 2019. Vol. 280. P. 183–191. DOI: 10.1016/j.snb.2018.10.059.
- 7. *Климов*, *В. В.* Наноплазмоника / В. В. Климов. Москва : Физматлит, 2009. С. 480.
- García De Abajo, F. J. Colloquium: Light scattering by particle and hole arrays / F. J. García De Abajo // Reviews of Modern Physics. – 2007. – Vol. 79, no. 4. – P. 1267–1290. – DOI: 10.1103/REVMODPHYS.79.1267/ FIGURES/19/MEDIUM.
- Plasmonic anisotropy of In nanocluster arrays on InAs(001) surface observed by differential reflectance spectroscopy / V. Berkovits [et al.] // Surface Science. - 2015. - Vol. 632. - P. L9-L12. - DOI: 10.1016/j.susc.2014.09.018.
- Dissimilar gold nanoclusters at GaAs(001) surface: Formation chemistry, structure, and localized plasmons / V. L. Berkovits [et al.] // Applied Surface Science. 2020. Vol. 507. P. 144982. DOI: 10.1016/J.APSUSC.2019. 144982.

- Metallic AsSb nanoinclusions strongly enriched by Sb in AlGaAsSb metamaterial / N. A. Bert [et al.] // Journal of Applied Physics. – 2019. – Vol. 125, no. 14. – DOI: 10.1063/1.5048076.
- Alferov, Z. I. Electroluminescence of heavily-doped heterojunctions pAlxGa1-xAs-nGaAs / Z. I. Alferov // Journal of Luminescence. – 1970. – Vol. 1. – P. 869–884.
- 13. Junction lasers which operate continuously at room temperature / I. Hayashi [et al.] // Applied Physics Letters. 1970. Vol. 17, no. 3. P. 109-111.
- 14. Electromagnetic theory of the coupling of zero-dimensional exciton and photon states: A quantum dot in a spherical microcavity / M. A. Kaliteevski [et al.] // Physical Review B. 2001. Vol. 64, no. 11. P. 115305. DOI: 10.1103/PhysRevB.64.115305.
- Pelton, M. Strong coupling of emitters to single plasmonic nanoparticles: exciton-induced transparency and Rabi splitting / M. Pelton, S. D. Storm, H. Leng // Nanoscale. – 2019. – Vol. 11, no. 31. – P. 14540–14552. – DOI: 10.1039/C9NR05044B.
- 16. Coherent exciton-surface-plasmon-polariton interaction in hybrid metal-semiconductor nanostructures / P. Vasa [et al.] // Physical Review Letters. – 2008. – Vol. 101, no. 11. – P. 116801. – DOI: 10.1103/PhysRevLett. 101.116801.
- 17. Plasmon-exciton hybridization in ZnO quantum-well Al nanodisc heterostructures / B. J. Lawrie [et al.] // Nano Letters. 2012. Vol. 12. P. 6152-6157. DOI: 10.1021/nl3029784.
- Marangos, J. P. Electromagnetically induced transparency / J. P. Marangos // Journal of Modern Optics. - 1998. - Mar. - Vol. 45, no. 3. - P. 471-503. -DOI: 10.1080/09500349808231909.
- 19. Fano resonances in photonics / M. F. Limonov [et al.] // Nature Photonics. –
 2017. Sept. Vol. 11, no. 9. P. 543–554. DOI: 10.1038/nphoton.
 2017.142.
- 20. Enhancement of excitonic emission in semiconductor heterostructures due to resonant coupling to multipole plasmon modes in a gold particle / A. A. Toropov [et al.] // Physical Review B. 2011. Vol. 84, no. 8. P. 085323. DOI: 10.1103/PhysRevB.84.085323.
- Maier, S. A. Plasmonics: Fundamentals and applications / S. A. Maier. New York, NY : Springer, 2007. – P. 224. – DOI: 10.1007/0-387-37825-1.
- Kreibig, U. Optical Properties of Metal Clusters / U. Kreibig, M. Vollmer. Berlin, Heidelberg : Springer, 1995. – (Springer Series in Materials Science). – DOI: 10.1007/978-3-662-09109-8.
- Liz-Marzán, L. M. Nanometals: formation and color / L. M. Liz-Marzán // Materials Today. – 2004. – Vol. 7, no. 2. – P. 26–31. – DOI: 10.1016/ S1369-7021(04)00080-X.
- 24. Atwater, H. A. Plasmonics for improved photovoltaic devices / H. A. Atwater, A. Polman // Nature Materials. 2010. Vol. 9, no. 3. P. 205-213. DOI: 10.1038/nmat2629.
- 25. Meinzer, N. Plasmonic meta-atoms and metasurfaces / N. Meinzer, W. L. Barnes, I. R. Hooper // Nature Photonics. 2014. Vol. 8, no. 12. P. 889–898. DOI: 10.1038/nphoton.2014.247.
- 26. Review of Some Interesting Surface Plasmon Resonance-enhanced Properties of Noble Metal Nanoparticles and Their Applications to Biosystems / P. K. Jain [et al.] // Plasmonics. 2007. Vol. 2, no. 3. P. 107-118. DOI: 10.1007/s11468-007-9031-1.
- 27. Multifold enhancement of quantum dot luminescence in plasmonic metamaterials / K. Tanaka [et al.] // Physical Review Letters. 2010. Vol. 105, no. 22. P. 227403. DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.227403.
- 28. Plasmon-enhanced single photon source directly coupled to an optical fiber / M. Sugawara [et al.] // Physical Review Research. 2022. Vol. 4, no. 4. P. 043146. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.4.043146.
- 29. Reflection anisotropy spectroscopy (RAS) and molecular assembly at ordered surfaces / P. Weightman [et al.] // Rep. Prog. Phys. 2005. Vol. 68, no. 6.
- Берковиц, В. Л. Эффекты локального поля в спектрах анизотропного оптического отражения поверхности (001) арсенида галлия / Берковиц, В. Л., Гордеева, А. Б., Кособукин, В. А. // Физика Твёрдого Тела. 2001. Т. 43, № 6. С. 985—991.
- Спектроскопия анизотропного отражения света от металлических нанокластеров, сформированных на поверхности полупроводника / В. Л. Берковиц [и др.] // Письма в ЖЭТФ. – 2013. – Т. 98, № 10. – С. 687–692.

- Plasmonic anisotropy of In nanocluster arrays on InAs(001) surface observed by differential reflectance spectroscopy / V. L. Berkovits [et al.] // Surface Science. - 2015. - Vol. 632. - P. L9-L12.
- Polarization Spectroscopy of Anisotropic Plasmons in Self-Oriented Nanoclusters of Gold on Monolayer of Nitrogen Atoms Chemisorbed at GaAs(001) Surface / V. L. Berkovits [et al.] // physica status solidi (b). 2022. Vol. 259, no. 1. P. 2100394. DOI: 10.1002/pssb.202100394.
- 34. Optical resonances of indium islands on GaAs(001) observed by reflectance anisotropy spectroscopy / N. Esser [et al.] // Physical Review B. 2003. Vol. 67. P. 125306.
- Aspnes, D. E. Local-field effects and effective-medium theory: A microscopic perspective / D. E. Aspnes // American Journal of Physics. 1982. Aug. Vol. 50, no. 8. P. 704–709. DOI: 10.1119/1.12734.
- Genzel, L. Dielectric function and infrared absorption of small metal particles / L. Genzel, U. Kreibig // Zeitschrift für Physik B Condensed Matter and Quanta. 1980. June. Vol. 37, no. 2. P. 93–101. DOI: 10.1007/BF01365365.
- Ландау Л. Д. Электродинамика сплошных сред / Ландау Л. Д., Лифшиц
 Е. М. М.: Наука. Глав. ред. физ.-мат. лит., 1982. (Теоретическая физика. Том VIII).
- Bohren, C. F. Absorption and Scattering of Light by Small Particles / C. F. Bohren, D. R. Huffman. – Wiley, 04/1998. – DOI: 10.1002/ 9783527618156.
- Кособукин В. А. Анизотропные эффекты локального поля наночастиц в плазмонной оптике и магнитооптике / Кособукин В. А. // Физика Твёрдого Тела. — 2012. — Т. 54, № 12. — С. 2340—2348.
- Кособукин В. А. Метод функций Грина в теории ближнеполевой магнитооптики и сканирующей магнитооптической микроскопии / Кособукин В. А. — 1999. — Препринт 1724. Издательство ФТИ им. А. Ф. Иоффе. Санкт-Петербург.
- Hybrid waves localized at hyperbolic metasurfaces / O. Y. Yermakov [et al.] // Physical Review B. - 2015. - Vol. 91. - P. 235423.

- Kosobukin, V. A. Plasmon-exciton coupling in neighboring metal nanoparticles and a semiconductor quantum well: Theory / V. A. Kosobukin // Solid State Communications. – 2016. – Vol. 228. – P. 43–46. – DOI: 10.1016/j.ssc. 2015.12.006.
- 43. Aspnes, D. E. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs and InSb from 1.5 to 6.0 eV / D. E. Aspnes, A. A. Studna // Physical Review B. 1983. Vol. 27, no. 2. P. 985–1009.
- 44. Koyama, R. Y. Optical properties of Indium / R. Y. Koyama, N. V. Smith, W. E. Spicer // Physical Review B. 1973. Vol. 8, no. 6. P. 2426-2432.
- 45. Egri, I. Excitons and plasmons in metals, semiconductors and insulators: A unified approach / I. Egri // Physics Reports. 1985. Mar. Vol. 119, no. 6. P. 363-402. DOI: 10.1016/0370-1573(85)90085-7.
- 46. Enhancement of spontaneous recombination rate in a quantum well by resonant surface plasmon coupling / A. Neogi [et al.] // Physical Review B. 2002. Oct. Vol. 66, no. 15. P. 153305. DOI: 10.1103/PhysRevB.66.153305.
- 47. Exciton-Plasmon-Photon Conversion in Plasmonic Nanostructures / Y. Fedutik [et al.] // Physical Review Letters. - 2007. - Sept. - Vol. 99, no. 13. -P. 136802. - DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.136802.
- Achermann, M. Exciton-Plasmon Interactions in Metal-Semiconductor Nanostructures / M. Achermann // The Journal of Physical Chemistry Letters. – 2010. – Oct. – Vol. 1, no. 19. – P. 2837–2843. – DOI: 10.1021/jz101102e.
- 49. Strong Coupling between Localized Plasmons and Organic Excitons in Metal Nanovoids / Y. Sugawara [et al.] // Physical Review Letters. - 2006. -Vol. 97, no. 26. - P. 266808. - DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.266808.
- Balci, S. Ultrastrong plasmon–exciton coupling in metal nanoprisms with J-aggregates / S. Balci // Optics Letters. – 2013. – Vol. 38, no. 21. – P. 4498. – DOI: 10.1364/OL.38.004498.
- 51. Coherent Plasmon-Exciton Coupling in Silver Platelet-J-aggregate Nanocomposites / В. G. DeLacy [и др.] // Nano Letters. 2015. Т. 15, № 4. С. 2588–2593. DOI: 10.1021/acs.nanolett.5b00157.
- 52. Plasmon–Exciton Coupling Using DNA Templates / E.-M. Roller [и др.] // Nano Letters. 2016. Т. 16, № 9. С. 5962–5966. DOI: 10.1021/acs. nanolett.6b03015. eprint: 1704.04559.

- 53. Quantum emitters near a metal nanoparticle: Strong coupling and quenching / A. Delga [et al.] // Physical Review Letters. 2014. June. Vol. 112, no. 25. P. 253601. DOI: 10.1103/PHYSREVLETT.112.253601/FIGURES/5/MEDIUM.
- 54. Кучеренко, М. Динамика энергообмена и релаксация возбуждений при сильном экситон-плазмонном взаимодействии в планарной наноструктуре из молекулярных J-агрегатов на металлической подложке / М. Кучеренко, Т. Чмерева // Оптика и спектроскопия. — 2018. — Т. 125, № 8. — С. 165. — DOI: 10.21883/OS.2018.08.46354.310-17.
- 55. Exciton/plasmon mixing in metal-semiconductor heterostructures / C. Symonds [et al.] // Superlattices and Microstructures. 2010. Vol. 47, no. 1. P. 50-54. DOI: 10.1016/j.spmi.2009.07.031.
- Sugakov, V. I. Localized exciton states with giant oscillator strength in quantum well in vicinity of metallic nanoparticle / V. I. Sugakov, G. V. Vertsimakha // Physical Review B. 2010. Vol. 81, no. 23. P. 235308. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.235308.
- 57. Кособукин, В. А. Плазмон-экситонное рассеяние света наночастицей, находящейся вблизи квантовой ямы / В. А. Кособукин // Физика Твёрдого Тела. — 2015. — Т. 57, № 7. — С. 1413—1419.
- Ivchenko, E. L. Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures / E. L. Ivchenko. – Harrow, UK : Alpha Science International, 2005.
- 59. Exciton longitudinal-transverse splitting in GaAs/AlGaAs superlattices and multiple quantum wells / E. L. Ivchenko [et al.] // Solid State Communications. - 1989. - Vol. 70, no. 5. - P. 529-534. - DOI: 10.1016/0038-1098(89)90944-7.
- 60. Johnson, P. B. Optical constants of the noble metals / P. B. Johnson,
 R. W. Christy // Physical Review B. 1972. Vol. 6, no. 12. P. 4370-4379.
- 61. Greene, R. L. Energy levels of Wannier excitons in GaAs Ga_{1-x}Al_xAs quantum-well structures / R. L. Greene, K. K. Bajaj, D. E. Phelps // Phys. Rev. B. 1984. Vol. 29, issue 4. P. 1807–1812. DOI: 10.1103/ PhysRevB.29.1807.

- 62. Optical properties of excitons in ZnO-based quantum well heterostructures / T. Makino [et al.] // Semiconductor Science and Technology. - 2005. -Vol. 20, no. 4. - S78. - DOI: 10.1088/0268-1242/20/4/010.
- 63. Экситоны в квантовых ямах на основе ZnO / М. Н. Батаев [и др.] // Физика твердого тела. 2018. Т. 60, № 12. С. 2450. DOI: 10.21883/FTT. 2018.12.47356.143.
- 64. Radiative decay rate of excitons in square quantum wells: Microscopic modeling and experiment / E. S. Khramtsov [et al.] // Journal of Applied Physics. – 2016. – Vol. 119, no. 18. – P. 184301. – DOI: 10.1063/1.4948664.
- Plasmonic Films Can Easily Be Better: Rules and Recipes / K. M. McPeak [et al.] // ACS Photonics. - 2015. - Vol. 2, no. 3. - P. 326-333. - DOI: 10.1021/ph5004237.
- 66. Lee, J. Luminescence linewidths of excitons in GaAs quantum wells below 150 K / J. Lee, E. S. Koteles, M. O. Vassell // Physical Review B. 1986. Vol. 33, no. 8. P. 5512. DOI: 10.1103/PhysRevB.33.5512.
- 67. Plasmon-to-exciton spin conversion in semiconductor-metal hybrid nanostructures / I. A. Akimov [et al.] // Physical Review B. 2021. Vol. 103, no. 8. DOI: 10.1103/PhysRevB.103.085425.
- 68. *Морс*, *Φ*. *М*. Методы теоретической физики. Том 2 / Φ. М. Морс, Г. Фешбах. — Москва : Издательство иностранной литературы, 1960.
- 69. *Moroz*, *A*. Exponentially convergent lattice sums / A. Moroz // Opt. Lett. 2001. Vol. 26, no. 15. P. 1119–1121. DOI: 10.1364/OL.26.001119.
- Linton, C. M. Lattice sums for the Helmholtz equation / C. M. Linton // SIAM review. - 2010. - Vol. 52, no. 4. - P. 630-674.
- 71. *Pikus*, *G. E.* Optical orientation and polarized luminescence of excitons in semiconductors / G. E. Pikus, E. L. Ivchenko // Excitons / под ред. Е. I. Rashba, M. D. Sturge. Amsterdam : North-Holland, 1982.
- 72. Planel, R. Optical Orientation of Excitons / R. Planel, C. Benoit a la Guillaume // Optical Orientation / под ред. F. Meier, B. P. Zakharchenya. Amsterdam : North-Holland, 1984. DOI: 10.1016/b978-0-444-86741-4.50013-5.

- 73. Optical Orientation and Alignment of Free Excitons in GaSe during Resonance Excitation. Experiment / E. M. Gamarts [et al.] // Sov. Phys. JETP. 1977. Vol. 46, no. 3. P. 590.
- Determination of interface preference by observation of linear-to-circular polarization conversion under optical orientation of excitons in type-II GaAs/AlAs superlattices / R. I. Dzhioev [et al.] // Physical Review B. – 1997. – Vol. 56, no. 20. – P. 13405–13413. – DOI: 10.1103/PhysRevB.56.13405.
- 75. Optical Alignment and Optical Orientation of Excitons in CdSe/CdS Colloidal Nanoplatelets / O. O. Smirnova [et al.] // Nanomaterials. - 2023. - Vol. 13, no. 17. - P. 2402. - DOI: 10.3390/nano13172402.
- 76. Bir, G. L. Alignment and orientation of hot excitons and polarized luminescence / G. L. Bir, E. L. Ivchenko, G. E. Pikus // Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser. – 1976. – Vol. 40. – P. 81.
- 77. Strong coupling between Tamm plasmon polariton and two dimensional semiconductor excitons / T. Hu [et al.] // Applied Physics Letters. - 2017. -Vol. 110, no. 5. - P. 051101. - DOI: 10.1063/1.4974901.
- Large Rabi splitting obtained in Ag-WS2 strong-coupling heterostructure with optical microcavity at room temperature / B. Li [et al.] // Opto-Electronic Advances. 2019. Vol. 2, no. 5. P. 190008. DOI: 10.29026/oea.2019. 190008.
- 79. Optical orientation and alignment of excitons in quantum dots / R. I. Dzhioev [et al.] // Physics of the Solid State. 1998. Vol. 40. P. 790—793. DOI: 10.1134/1.1130397.
- Chen, Y. General point dipole theory for periodic metasurfaces: Magnetoelectric scattering lattices coupled to planar photonic structures / Y. Chen, Y. Zhang, A. Femius Koenderink // Optics Express. - 2017. - Vol. 25, no. 18. - P. 21358. - DOI: 10.1364/oe.25.021358.
- Bir, G. L. Optical orientation of excitons in uniaxial crystals. Large exchange splitting / G. L. Bir, G. E. Pikus // Sov. Phys. JETP. 1973. Vol. 37, no. 6. P. 1116.

- Ivchenko, E. L. Superlattices and Other Heterostructures: Symmetry and Optical Phenomena. Vol. 110 / E. L. Ivchenko, G. E. Pikus. Berlin : Springer, 1997. (Springer Series in Solid-State Sciences). DOI: 10.1007/978-3-642-60650-2.
- 83. Breuer, H.-P. The Theory of Open Quantum Systems / H.-P. Breuer,
 F. Petruccione. Oxford : Oxford University Press, 2002.
- 84. Kohn, W. Quantum theory of electrical transport phenomena / W. Kohn, J. M. Luttinger // Physical Review. 1957. Vol. 108, no. 3. P. 590—611. DOI: 10.1103/PhysRev.108.590.
- Optical orientation and alignment of free excitons in GaSe under resonant excitation. Theory / E. L. Ivchenko [et al.] // Sov. Phys. JETP. 1977. Vol. 45, no. 6. P. 1172.
- Bebb, H. Photoluminescence I: Theory / H. Bebb, E. Williams // Semiconductors and Semimetals. Vol. 8 / ed. by R. K. Willardson, A. C. Beer. – Amsterdam : Elsevier, 1972. – P. 181–320. – DOI: 10.1016/S0080-8784(08)62345-5.
- Abakumov, V. N. Nonradiative Recombination in Semiconductors / V. N. Abakumov, V. I. Perel, I. N. Yassievich. – Amsterdam : North-Holland, 1991.
- 88. Kokurin, I. A. Optical orientation of electrons in compensated semiconductors / I. A. Kokurin, P. V. Petrov, N. S. Averkiev // Semiconductors. - 2013. -Vol. 47. - P. 1232-1240. - DOI: 10.1134/S106378261309011X.
- 89. Maradudin, A. A. Scattering and absorption of electromagnetic radiation by a semi-infinite medium in the presence of surface roughness / A. A. Maradudin, D. L. Mills // Physical Review B. 1975. Vol. 11, no. 4. P. 1392-1415. DOI: 10.1103/PhysRevB.11.1392.
- Кособукин, В. Плазмон-экситонные поляритоны в сверхрешетках / В. Кособукин // Физика твердого тела. — 2017. — Т. 59, № 5. — С. 972. — DOI: 10.21883/FTT.2017.05.44389.365.
- 91. Ивченко, Е. Л. Отражение света от структур с квантовыми ямами, квантовыми проводами и квантовыми точками / Е. Л. Ивченко, А. В. Кавокин // Физика твердого тела. — 1992. — Т. 34, № 6. — С. 1815—1822.

Приложение А

Функции Грина в многослойных структурах

В данном приложении приведены компоненты функций Грина, которые используются для определения электрического поля диполя в различных главах диссертации. Эти функции, в том или ином виде, можно найти во многих работах по классической электродинамике, плазмонике и оптике наноструктур [40; 80; 89; 90]. Здесь они представлены в удобной форме, которая позволяет последовательно учитывать наличие плоской границы сред или квантовой ямы в полупроводнике.

Функция Грина для электрического поля определяется уравнением

$$\left[\operatorname{rot}_{\alpha\mu}\operatorname{rot}_{\mu\nu} - \varepsilon^{(0)}(z)k_0^2\delta_{\alpha\nu}\right]D_{\nu\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}'; z, z') = 4\pi k_0^2\delta_{\alpha\beta}\delta(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}').$$
(A.1)

Изначально рассматривается немагнитная стратифицированная среда с локальной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon^{(0)}(z)$. При наличии квантовой ямы в правую часть уравнения (A.1) следует добавить слагаемое $4\pi k_0^2 P_{\alpha}^{QW}$, которое соответствует нелокальному вкладу экситонов в поляризацию среды [91]

$$P^{\text{QW}}_{\alpha}(\boldsymbol{\rho}, z) = \int dz'' d^2 \boldsymbol{\rho}'' \int \frac{d^2 \boldsymbol{K}}{(2\pi)^2} \exp[i\boldsymbol{K} \cdot (\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}'')] \times \\ \times \frac{e^2 p^*_{\alpha} p_{\lambda}}{m_0^2 \omega_0^2} \frac{\Phi(z - z_0) \Phi(z'' - z_0)}{\hbar(\omega_0 - \omega - i\Gamma)} D^{(0)}_{\lambda\beta}(\boldsymbol{\rho}'' - \boldsymbol{\rho}'; z'', z').$$
(A.2)

Здесь $\Phi(z - z_0)$ - огибающая волновой функции основного состояния экситона с энергией $\hbar\omega_0$, z_0 - координата центра квантовой ямы. Компоненты межзонного матричного элемента импульса положим равными $p_x = p_y = p_{cv}$ и $p_z = 0$, что отвечает экситонам с тяжёлой дыркой, поляризация которых лежит в плоскости квантовой ямы (001). В литературе часто используется продольно-поперечное расщепление 3D-экситона, которое связано с матричным элементом выражением

$$\varepsilon_b \ \hbar \omega_{\rm LT} \ \pi a_B^3 = 4\pi \left(\frac{ep_{\rm cv}}{m_0\omega_0}\right)^2.$$
 (A.3)

Полную функцию Грина с учётом отклика низкоразмерных экситонов будем обозначать $D_{\alpha\beta}(\boldsymbol{\rho}; z, z')$.

Учитывая симметрию задачи по отношению к поворотам и сдвигам в плоскости xy, удобно совершить преобразование Фурье по $\rho = \rho(\cos \varphi e_x + \sin \varphi e_y)$, и затем повернуть координаты на угол ϕ между осью x и волновым вектором $\kappa = \cos \phi e_x + \sin \phi e_y$

$$D_{\alpha\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\rho};z,z') = \int \frac{d^2\boldsymbol{\kappa}}{(2\pi)^2} e^{i\boldsymbol{\kappa}\cdot\boldsymbol{\rho}} G_{\alpha\beta}^{(0)}(\boldsymbol{\kappa};z,z')$$
$$= \int_0^{+\infty} \frac{\kappa d\kappa}{(2\pi)^2} \int_0^{2\pi} d\phi \ e^{i\kappa\rho\cos(\varphi-\phi)} T_{\mu\alpha}(\phi) g_{\mu\nu}^{(0)}(\kappa;z,z') T_{\beta\nu}(\phi). \quad (A.4)$$

Отличные от нуля компоненты матрицы поворота равны $T_{xx} = T_{yy} = \cos \phi$, $T_{xy} = -T_{yx} = \sin \phi$ и $T_{zz} = 1$. В результате для функций $g^{(0)}_{\alpha\beta}(\kappa; z, z')$ получаем систему уравнений

$$\begin{pmatrix} \frac{d^2}{dz^2} + \varepsilon^{(0)}(z)k_0^2 & 0 & -i\kappa\frac{d}{dz} \\ 0 & \frac{d^2}{dz^2} + \varepsilon^{(0)}(z)k_0^2 - \kappa^2 & 0 \\ -i\kappa\frac{d}{dz} & 0 & \varepsilon^{(0)}(z)k_0^2 - \kappa^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} g_{xx}^{(0)} & 0 & g_{xz}^{(0)} \\ 0 & g_{yy}^{(0)} & 0 \\ g_{zx}^{(0)} & 0 & g_{zz}^{(0)} \end{pmatrix} = -4\pi k_0^2 \delta(z - z')\hat{I}, \quad (A.5)$$

в которой разделяются *s*- и *p*- поляризованные компоненты волн, излучаемых точечным источником. Отметим, что функции $g^{(0)}_{\alpha\beta}(\kappa; z, z')$ также являются преобразованием Фурье для поля бесконечной нити, направленной вдоль оси *y* и однородно поляризованной по всей длине

$$F^{(0)}_{\alpha\beta}(x;z,z') = \int \frac{d\kappa}{2\pi} e^{i\kappa x} g^{(0)}_{\alpha\beta}(\kappa;z,z').$$
(A.6)

В однородной среде с $\varepsilon^{(0)}(z) \equiv \varepsilon_1$ решение системы (А.5) имеет вид

$$\hat{g}^{(\text{hom})}(z-z') = \frac{2\pi i k_1}{\varepsilon_1} e^{ik_1|z-z'|} \begin{pmatrix} 1 & 0 & -\frac{\kappa}{k_1} \operatorname{sgn}(z-z') \\ 0 & \frac{q_1^2}{k_1^2} & 0 \\ -\frac{\kappa}{k_1} \operatorname{sgn}(z-z') & 0 & \frac{\kappa^2}{k_1^2} \end{pmatrix}, \quad (A.7)$$

где $q_1 = \sqrt{\varepsilon_1} k_0$, и $k_1 = \sqrt{q_1^2 - \kappa^2}$ отвечает проекции волнового вектора на ось z. Далее, пусть имеется плоская граница сред z = 0 так что $\varepsilon^{(0)}(z) = \varepsilon_1$ при z < 0и ε_2 при z > 0. Тогда в области с источником (z < 0) решение имеет вид

$$\hat{g}^{(0)}(z < 0, z' < 0) = \hat{g}^{(\text{hom})}(z - z') + \hat{g}^{(\text{ref})}(z, z'),$$

$$\hat{g}^{(\text{ref})} = \frac{2\pi i k_1}{\varepsilon_1} \exp[-ik_1(z + z')] \begin{pmatrix} r_{12}^p & 0 & -\frac{\kappa}{k_1} r_{12}^p \\ 0 & \frac{q_1^2}{k_1^2} r_{12}^s & 0 \\ \frac{\kappa}{k_1} r_{12}^p & 0 & -\frac{\kappa^2}{k_1^2} r_{12}^p \end{pmatrix}, \quad (A.8)$$

где поправка $\hat{g}^{(\text{ref})}$ представляет собой волны, отражённые от плоской границы. В области z > 0 распространяются преломлённые волны

$$\hat{g}^{(0)}(z>0, z'<0) = \frac{2\pi i k_1}{\varepsilon_1} \exp[i(k_2 z - k_1 z')] \begin{pmatrix} t_{12}^p & 0 & -\frac{\kappa}{k_1} t_{12}^p \\ 0 & \frac{q_1^2}{k_1^2} t_{12}^s & 0 \\ -\frac{\kappa}{k_2} t_{12}^p & 0 & \frac{\kappa^2}{k_1 k_2} t_{12}^p \end{pmatrix}$$
(A.9)

с коэффициентами прохождения $t_{12}^{\lambda} = 1 + r_{12}^{\lambda}$. В целом решение (А.8)-(А.9) удовлетворяет максвелловским граничным условиям при z = 0.

Наконец, при наличии в среде $\varepsilon_2 = \varepsilon_b$ (полупроводнике) квантовой ямы оказывается, что функции $\hat{g}(z,z')$ отличаются от $\hat{g}^{(0)}(z,z')$ лишь коэффициентами отражения и пропускания, которые теперь определяются для всей структуры

$$r^{\lambda} = r_{12}^{\lambda} + \frac{t_{12}^{\lambda} t_{21}^{\lambda} r_{QW}^{\lambda} e^{2ik_2 z_0}}{1 - r_{21}^{\lambda} r_{QW}^{\lambda} e^{2ik_2 z_0}}, \quad t^{\lambda} = \frac{t_{12}^{\lambda} t_{QW}^{\lambda}}{1 - r_{21}^{\lambda} r_{QW}^{\lambda} e^{2ik_2 z_0}}.$$
 (A.10)

Коэффициенты отражения и пропускания узкой квантовой ямы равны [57]

$$r_{QW}^{p} = \frac{i\Gamma_{0,x}}{\omega_{x} - \omega - i(\Gamma + \Gamma_{0,x})}, \quad r_{QW}^{s} = \frac{i\Gamma_{0,y}}{\omega_{y} - \omega - i(\Gamma + \Gamma_{0,y})}, \quad t_{QW}^{\lambda} = 1 + r_{QW}^{\lambda}.$$
(A.11)

Здесь $\Gamma_{0,x} = \omega_{\text{LT}} k_b L$ и $\Gamma_{0,y} = \Gamma_{0,x} k_0^2 / k_b^2$ - скорости радиационного затухания экситонных поляритонов, ω_{α} - их частоты с учётом радиационного сдвига. Длина L определяется в Главе 2 через интеграл от огибающей волновой функции экситона $\Phi(z - z_0)$. В результате в области z < 0 функция $\hat{g}(z, z') = \hat{g}^{(\text{hom})} + \hat{g}^{(\text{ref})} + \hat{g}^{(\text{exc})}$ разделяется на три слагаемых, последнее из которых обусловлено экситонами

$$\hat{g}^{(\text{exc})}(z,z') = \frac{2\pi i k_1}{\varepsilon_1} e^{-ik_1(z+z')} \begin{pmatrix} \Delta r^p & 0 & -\frac{\kappa}{k_1} \Delta r^p \\ 0 & \frac{q_1^2}{k_1^2} \Delta r^s & 0 \\ \frac{\kappa}{k_1} \Delta r^p & 0 & -\frac{\kappa^2}{k_1^2} \Delta r^p \end{pmatrix}, \quad \Delta r^{\lambda} = r^{\lambda} - r_{12}^{\lambda}.$$
(A.12)

А.1 Расчёт ближнего поля наночастиц

Чтобы найти ближнее поле источника, в полученных функциях $\hat{g}(\kappa; z, z')$ необходимо положить $\kappa \gg q_{1,2}$, что соответствует квазистатическому пределу электродинамики. При этом волновые числа $k_{1,2} \rightarrow i |\kappa|$ становятся мнимыми, и поле таких волн экспоненциально убывает в направлении z. Кроме того, в квазистатическом пределе исчезают s-поляризованные волны $(g_{yy}/g_{xx} \sim q_1^2/\kappa^2)$. Функции, полученные в результате предельного перехода $\kappa \rightarrow \infty$, помечаем верхней чертой: $\bar{g}_{\alpha\beta}$, $\bar{D}_{\alpha\beta}$ и $\bar{F}_{\alpha\beta}$.

В случае точечного источника (диполя) интегралы по ϕ в выражении (А.4) сводятся к интегральному представлению $2\pi i^n J_n(\kappa \rho) = \int d\phi \exp[i\kappa \rho \cos \phi + in\phi]$ функций Бесселя. В результате остаётся проинтегрировать выражение

$$\bar{D}_{\alpha\beta}(\rho,\varphi) = \int_0^{+\infty} \frac{\kappa d\kappa}{4\pi} \begin{pmatrix} (J_0 - J_2 \cos 2\varphi)\bar{g}_{xx} & -J_2 \sin 2\varphi \ \bar{g}_{xx} & 2iJ_1 \cos \varphi \ \bar{g}_{xz} \\ -J_2 \sin 2\varphi \ \bar{g}_{zx} & (J_0 + J_2 \cos 2\varphi)\bar{g}_{xx} & 2iJ_1 \sin \varphi \ \bar{g}_{xz} \\ 2iJ_1 \cos \varphi \ \bar{g}_{zx} & 2iJ_1 \sin \varphi \ \bar{g}_{zx} & 2J_0 \ \bar{g}_{zz} \end{pmatrix}$$

с $J_n = J_n(\kappa \rho)$, которое мы разделим на три слагаемых $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}$, $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{ref})}$ и $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}$. Первое - поле источника в однородной среде, определяется функцией

$$\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\kappa;z-z') = -\frac{2\pi |\kappa|}{\varepsilon_1} e^{-|\kappa||z-z'|} \begin{pmatrix} 1 & i \operatorname{sgn}\kappa(z-z')\\ i \operatorname{sgn}\kappa(z-z') & -1 \end{pmatrix}, \quad (A.13)$$

второе - сумма волн, отражённых от границы сред

$$\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\mathrm{ref})}(\kappa;z,z') = -\frac{2\pi |\kappa|}{\varepsilon_1} \bar{r}_{12}^p \exp[|\kappa| (z+z')] \begin{pmatrix} 1 & i \operatorname{sgn}(\kappa) \\ -i \operatorname{sgn}(\kappa) & 1 \end{pmatrix}, \quad (A.14)$$

и третье - дополнительное отражение, обусловленное экситонами

$$\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}(\kappa;z,z') = -\frac{2\pi |\kappa|}{\varepsilon_1} \,\Delta\bar{r}^p \,\exp[|\kappa| \,(z+z')] \begin{pmatrix} 1 & i \,\operatorname{sgn}(\kappa) \\ -i \,\operatorname{sgn}(\kappa) & 1 \end{pmatrix}. \quad (A.15)$$

Матрицы 2×2 состоят из компонент с $\alpha, \beta = x, z$, поскольку в квазистатическом пределе существуют только *p*-поляризованные волны. Коэффициент их отражения от границы сред не зависит от κ и равен $\bar{r}_{12}^p = \mu = (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)$. Поэтому интегралы с функциями $\bar{g}^{(\mathrm{hom})}$ и $\bar{g}^{(\mathrm{ref})}$ вычисляются при помощи тождества

$$\int_{0}^{+\infty} d\kappa \kappa^{2} e^{-\kappa|z|} J_{n}(\kappa \rho) = \left(\rho^{2} + z^{2}\right)^{-5/2} \begin{cases} 2z^{2} - \rho^{2}, & n = 0, \\ 3|z|\rho, & n = 1, \\ 3\rho^{2}, & n = 2. \end{cases}$$
(A.16)

В результате интегрирование (А.13) и (А.14) даёт поле электрического диполя

$$\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\mathbf{R}) = \frac{1}{\varepsilon_1} \frac{3R_{\alpha}R_{\beta} - \delta_{\alpha\beta}R^2}{R^5}, \quad \mathbf{R} = \boldsymbol{\rho} + (z - z')\boldsymbol{e}_z, \quad (A.17)$$

и поле его изображения, находящегося в точке -z'

$$\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{ref})}(\boldsymbol{\rho};z,z') = \mu(-1)^{\delta_{\beta z}} \bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\boldsymbol{\rho},z+z').$$
(A.18)

Отметим, что *z*-компонента диполя-изображения дополнительно меняет знак.

Чтобы вычислить вклад экситонов в ближнее поле, оценим добавку Δr^p к коэффициенту отражения структуры (А.10) в квазистатическом пределе

$$\Delta \bar{r}^p \approx -(1-\mu^2) \ e^{-2|\kappa|z_0} \frac{\omega_{\rm LT}}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \ |\kappa| \ L. \tag{A.19}$$

Здесь множитель $1 - \mu^2 = \bar{t}_{12}^p \bar{t}_{21}^p$ связан с прохождением волн через границу, и предполагается, что можно пренебречь сдвигом частоты экситона $\omega_x(\kappa) - \omega_0 \sim \omega_{\rm LT} \ll \Gamma$ на фоне нерадиационной ширины резонанса. Тогда замечая, что

$$\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}(z,z') = -(1-\mu^2) \frac{\omega_{\text{LT}}L}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} (-1)^{\delta_{\beta z}} \frac{d}{d\tilde{z}} \bar{g}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\tilde{z}), \quad \tilde{z} = z + z' - 2z_0,$$

получим ближнее поле «экситонного» изображения диполя

$$\bar{D}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}(\rho; z, z') = (1 - \mu^2) \frac{\omega_{\text{LT}}}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \frac{3L}{\varepsilon_1(\rho^2 + \tilde{z}^2)^{7/2}} \times \begin{pmatrix} \tilde{z}(4x^2 - y^2 - \tilde{z}^2) & 5xy\tilde{z} & x(\rho^2 - 4\tilde{z}^2) \\ 5xy\tilde{z} & \tilde{z}(4y^2 - x^2 - \tilde{z}^2) & y(\rho^2 - 4\tilde{z}^2) \\ -x(\rho^2 - 4\tilde{z}^2) & -y(\rho^2 - 4\tilde{z}^2) & \tilde{z}(3\rho^2 - 2\tilde{z}^2) \end{pmatrix}. \quad (A.20)$$

Решёточные суммы (2.7) из Раздела 2.2 соответствуют полю источников, находящихся в узлах квадратной решётки $\rho_n = An$ в плоскости $z = -h_1$, которое действует на диполь при $\rho = 0$: $S_{\alpha\beta} = \sum_n \varepsilon_1 \bar{D}_{\alpha\beta} (\rho_n; -h_1, -h_1)$. Сумма разбивается на три слагаемых, отвечающих полю диполей $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(hom)}$ и его отражению от границы сред $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(ref)}$ и квантовой ямы $\bar{D}_{\alpha\beta}^{(exc)}$. Рассматриваются компоненты $\alpha,\beta = x,y$, соответствующие поляризации в плоскости решётки, недиагональные компоненты с $\alpha \neq \beta$ при суммировании сокращаются. Аналогичные суммы (1.27) и (1.28) для прямоугольной решётки ($A_x \neq A_y$) использованы в Главе 1.

A.2 Вычисление ближнего поля нанопроволок и одномерных решёточных сумм

Теперь подставим квазистатические функции (А.13) - (А.15) в интеграл (А.6), чтобы найти ближнее поле бесконечной поляризованной нити $\bar{F}_{\alpha\beta}(x; z, z')$. Разделив интегрирование по областям $\kappa < 0$ и $\kappa > 0$, для $\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\mathrm{hom})}$ вычисляем $\int_{0}^{+\infty} d\kappa \kappa e^{-\kappa |z-z'| \pm i\kappa x} = (|z-z'| \mp ix)^{-2}$, и получаем

$$\bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\mathbf{R}) = \frac{2}{\varepsilon_1} \frac{2R_{\alpha}R_{\beta} - \delta_{\alpha\beta}R^2}{R^4}, \quad \mathbf{R} = x\boldsymbol{e}_x + (z - z')\boldsymbol{e}_z. \tag{A.21}$$

Точно так же для отражённой от поверхности волны получим

$$\bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{ref})}(x;z,z') = \mu \ (-1)^{\delta_{\beta z}} \bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(x,z+z'), \tag{A.22}$$

что соответствует изображению нити, расположенному в точке -z'. И так же, как для диполей, можно оценить экситонный вклад в ближнее поле

$$\bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}(x;z,z') = -(1-\mu^2) \; \frac{(-1)^{\delta_{\beta z}} \; \omega_{\text{LT}} L}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \; \frac{d}{dz} \; \bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(x,z+z'-2z_0). \tag{A.23}$$

Однако суммарное поле нитей $\bar{S}_{\alpha\beta}(\kappa; x, z, z') = \sum_{n} \varepsilon_{1} e^{in\kappa d} \bar{F}_{\alpha\beta}(x - nd, z, z')$, в отличие от поля двумерной решётки диполей, может быть вычислено аналитически в любой точке пространства. Чтобы найти поле, действующее на проволоку с n = 0, необходимо вычесть её собственное поле и устремить $x \to 0$ и $z \to z'$. Именно $\bar{\Sigma}_{\alpha\beta} = \lim_{x\to 0, z\to z'} \left[\bar{S}_{\alpha\beta}(\kappa; x, z, z') - \varepsilon_1 \bar{F}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(x, z - z') \right]$ входит в эффективную поляризуемость нанопроволок (2.16), введённую в Разделе 2.3. Перейдём к суммированию по обратной решётке согласно правилу $\bar{S}_{\alpha\beta}(\kappa; x, z, z') = d^{-1} \sum_{m} \varepsilon_1 \bar{g}_{\alpha\beta}(\kappa + mb; z, z') \exp[i(\kappa + mb)x]$, где $b = 2\pi d^{-1}$. При этом достаточно вычислить сумму $\bar{S}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\kappa; x, z)$ в однородном пространстве, поскольку суммарное поле изображений можно выразить через неё с помощью соотношений (A.22) и (A.23). Подставляя функции $\bar{g}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}$ из (A.13) и раскрывая $|\kappa + mb|$ в диапазоне значений $0 \leq \kappa \leq b$, получаем ряды

$$\bar{S}_{xx}^{(\text{hom})} = -\bar{S}_{zz}^{(\text{hom})} = -b \left[\sum_{m \ge 0} (\kappa + mb) e^{(ix - |z|)(\kappa + mb)} - \sum_{m \ge 1} (\kappa - mb) e^{(ix + |z|)(\kappa + mb)} \right],$$

$$\bar{S}_{xz,\ zx}^{(\text{hom})} = -ib\ \text{sgn}z \left[\sum_{m \ge 0} (\kappa + mb)e^{(ix-|z|)(\kappa + mb)} + \sum_{m \ge 1} (\kappa - mb)e^{(ix+|z|)(\kappa + mb)} \right].$$

Эти ряды можно просуммировать с помощью формул $\sum_{m \ge 0} u^m = (1-u)^{-1}$ и $\sum_{m \ge 1} m u^m = u(1-u)^{-2}$, в результате находим

$$\bar{S}_{xx}^{(\text{hom})} = -b \left[e^{(\kappa-b)(ix-|z|)} \frac{b + \kappa (e^{-b(ix-|z|)} - 1)}{(e^{-b(ix-|z|)} - 1)^2} + e^{(\kappa-b)(ix+|z|)} \frac{b + \kappa (e^{-b(ix+|z|)} - 1)}{(e^{-b(ix+|z|)} - 1)^2} \right], \quad (A.24)$$

$$\bar{S}_{xz}^{(\text{hom})} = -ib \operatorname{sgn} z \left[e^{(\kappa-b)(ix-|z|)} \frac{b + \kappa (e^{-b(ix-|z|)} - 1)}{(e^{-b(ix-|z|)} - 1)^2} \right]$$

$$-e^{(\kappa-b)(ix+|z|)} \frac{b+\kappa(e^{-b(ix+|z|)}-1)}{(e^{-b(ix+|z|)}-1)^2} \bigg].$$
(A.25)

Раскладывая это громоздкое выражение в ряд при $x,z \to 0$ и вычитая функцию $\bar{F}^{(\mathrm{hom})}_{\alpha\beta}(x,z)$, получим окончательный результат

$$\bar{\Sigma}_{xx}^{(\text{hom})} = -\bar{\Sigma}_{zz}^{(\text{hom})} = \frac{b^2}{6} - \kappa b + \kappa^2, \quad \bar{\Sigma}_{xz, zx}^{(\text{hom})} = 0.$$
(A.26)

Вклад изображений (А.22), обусловленных границей сред z = 0, определяется значением $\bar{S}^{(\mathrm{hom})}_{\alpha\beta}(\kappa;0,\,2z')$ и имеет вид

$$\bar{\Sigma}_{xx,\ zz}^{(\text{ref})} = -\frac{b\ \mu}{2\,\text{sh}^2(bz')} \left[(b-\kappa)\,\text{ch}(2\kappa z') + \kappa\,\text{ch}(2(b-\kappa)z') \right], \qquad (A.27)$$

$$\bar{\Sigma}_{xz}^{(\text{ref})} = -\bar{\Sigma}_{zx}^{(\text{ref})} = \frac{ib\ \mu}{2\,\text{sh}^2(bz')} \left[-(b-\kappa)\,\text{sh}(2\kappa z') + \kappa\,\text{sh}(2(b-\kappa)z') \right].$$
(A.28)

Отсюда видно, что смешивание плазмонов с поляризацией вдоль x и вдоль z происходит при $\kappa \neq 0$ только за счёт изображений проволок. Наконец, поле экситонных изображений (A.23) в квазистатическом приближении можно получить из $\bar{S}_{\alpha\beta}^{(\mathrm{hom})}$ дифференцированием

$$\bar{S}_{\alpha\beta}^{(\text{exc})}(\kappa; x, z, z') = -(1-\mu^2) \; \frac{(-1)^{\delta_{\beta z}} \; \omega_{\text{LT}} L}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \; \frac{d}{dz} \; \bar{S}_{\alpha\beta}^{(\text{hom})}(\kappa; x, z+z'-2z_0). \quad (A.29)$$

В случае $\kappa = 0$, который изучается в Разделе 2.3, суммарное поле проволок с учётом поверхности и квантовой ямы имеет вид

$$\bar{\Sigma}_{\alpha\beta}(\kappa=0) = \delta_{\alpha\beta} \left[(-1)^{\delta_{\alpha z}} \frac{b^2}{6} - \mu \frac{b^2}{2 \operatorname{sh}^2(bh_1)} + (1-\mu^2) \frac{\omega_{\mathrm{LT}}}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \frac{b^3 L \operatorname{ch}(bh)}{2 \operatorname{sh}^3(bh)} \right].$$
(A.30)