

Ю.В. КРЮЧЕНКО, Д.В. КОРБУТЯК

Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України
(Просп. Науки, 41, Київ 03028; e-mail: kryuchenko@ispr.kiev.ua)

ЕКСИТОННЕ ВИПРОМІНЮВАННЯ ГІБРИДНОЇ НАНОСИСТЕМИ “СФЕРИЧНА НАПІВПРОВІДНИКОВА КВАНТОВА ТОЧКА + СФЕРИЧНА МЕТАЛЕВА НАНОЧАСТИНКА”

УДК 538.911, 538.958

Досліджено випадок сферичної квантової точки (КТ) прямозонного напівпровідника кубічної модифікації з чотирикратно виродженою валентною зоною Γ_8 в околі сферичної металевої наночастинки (НЧ). Екситонне випромінювання КТ розглянуто як таке, що формується сумою внесків випромінюючих точкових (вузельних) диполів всередині КТ. Опис несферичної в цілому наносистеми базується на використанні трьох сферичних систем координат і встановленні зв'язку між коефіцієнтами мультипольного розкладу електромагнітних (ЕМ) полів у цих системах координат. Полярні осі першої і другої систем з центрами в НЧ і КТ направлені вздовж лінії, що з'єднує ці центри. Орієнтація третьої системи координат з центром в КТ визначається орієнтацією кристалічної ґратки в КТ. Показано, що на відміну від скалярного потенціалу електричного поля, який індукується екситонним станом в КТ і має вигляд потенціалу точкового диполя, ЕМ поле екситонного випромінювання КТ не може бути представлене у вигляді ЕМ поля випромінювання точкового диполя, оскільки містить лише дипольні, квадрупольні і октупольні компоненти. Враховано багатократне розсіювання між НЧ і КТ електромагнітного поля, що випромінює КТ. Розраховані залежності квантового виходу екситонного випромінювання від відстані між поверхнями КТ і НЧ при різних розмірах КТ і НЧ і температурах 4,2 і 300 К у випадку КТ CdTe і срібних або золотих НЧ.

Ключові слова: квантові точки, металеві наночастинки, гібридні наносистеми, електромагнітні поля, квантовий вихід випромінювання.

1. Вступ

Гібридні метал-напівпровідникові наноструктури (з останніх оглядів див., наприклад, [1, 2]), в яких суттєву роль відіграє екситон-плазмонна взаємодія, останніми роками привертають все більший інтерес завдяки своїм унікальним властивостям і значному прогресу у технологіях їх виготовлення. Проте, в багатьох випадках теоретичні моделі, що використовуються для опису таких структур, є недосконалими. Це стосується навіть такого простого на перший погляд випадку, як напівпровіднико-

ва КТ в околі металевої НЧ, коли КТ по аналогії з флуоресцентними молекулами вважається точковим диполем (несферична наносистема в такому підході перетворюється на сферично-симетричну) і всі добре відомі результати, отримані для випадку точкового диполя, автоматично переносяться на випадок КТ.

У даній роботі, яка є продовженням нашої попередньої роботи [3], розвинутий більш строгий підхід, в рамках якого точковим диполем вважається не КТ в цілому, а кожна елементарна комірка кристала в КТ. Такий підхід дозволяє врахувати структуру валентної зони кристала і обчислити всі

© Ю.В. КРЮЧЕНКО, Д.В. КОРБУТЯК, 2015

ЕМ поля і квантовий вихід випромінювання в гібридній наносистемі КТ + НЧ у випадку нерезонансного збудження, коли безпосередньо збуджується лише КТ (у випадку резонансного збудження безпосередньо збуджується і НЧ). В роботі [3] були отримані вирази для всіх електромагнітних полів у системі “випромінюючий точковий диполь в напівпровідниковій КТ + металева НЧ”. Було показано, що для розрахунку ЕМ полів у випадку екситонного випромінювання КТ в цілому необхідно проінтегрувати внески в ЕМ поля від усіх точкових диполів всередині КТ (тобто внески від усіх елементарних комірок кристала, з яких сформована КТ). Було показано також, що відповідні внески визначаються огинаючою екситонною хвильовою функцією в КТ. Таким чином, для подальшого розгляду необхідно конкретизувати модель КТ і записати огинаючі екситонні хвильові функції розмірного квантування. При такій конкретизації задачі на додаток до двох сферичних систем координат, зсунутих одна відносно одної на відстань D між центрами КТ і НЧ (на попередньому етапі був встановлений зв'язок між мультипольними складовими ЕМ полів, записаних у цих двох системах координат, що дає змогу використати окремо сферичну симетрію КТ і НЧ незважаючи на несферичність повної системи КТ + НЧ), необхідно ввести третю систему координат $\{X_{cr}, Y_{cr}, Z_{cr}\}$, осі якої визначаються орієнтацією кристалічної ґратки всередині КТ (див. рис. 1). Вихідні екситонні хвильові функції розмірного квантування в КТ стандартно записуються саме в цій кристалічній системі координат. Але кінцеві екситонні хвильові функції, які необхідно використовувати при розрахунку внеску всього об'єму КТ в ЕМ поля, мають бути записані в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ з віссю \tilde{Z} вздовж лінії, що з'єднує центри НЧ і КТ, а не у власній (кристалічній) системі координат з осями $\{X_{cr}, Y_{cr}, Z_{cr}\}$. В наступних розділах міститиметься опис всіх необхідних перетворень, які дають можливість розрахувати потужності ЕМ випромінювання і поглинання, а також квантовий вихід випромінювання гібридної наносистеми КТ + НЧ.

2. Екситонні стани розмірного квантування і екситонні хвильові функції КТ

В ролі напівпровідника, з якого сформована КТ, розглядався напівпровідник кубічної модифіка-

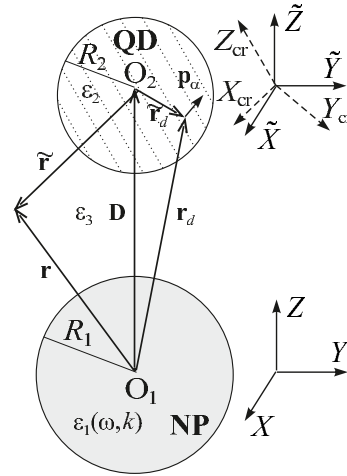


Рис. 1. Схематичний вигляд наносистеми КТ + НЧ

ції з чотирикратно виродженою валентною зоною Γ_8 (зокрема, таким напівпровідником є CdTe). В КТ з такого напівпровідника основний екситонний стан розмірного квантування (стан так званих темних екситонів, відщеплений в область менших енергій обмінною спин-спінною електрон-дірковою взаємодією) характеризується квантовим числом $F = 2$ повного моменту імпульсу екситону. Цей стан є п'ятикратно виродженим за квантовими числами $F_z = \pm 2, \pm 1, 0$ проекції повного моменту на вісь Z_{cr} . Більш високоенергетичний трикратно вироджений стан яскравих екситонів характеризується квантовим числом $F = 1$ повного моменту імпульсу екситону і квантовими числами $F_z = \pm 1, 0$ його проекції на вісь Z_{cr} [4].

В електрон-дірковому представленні екситонні хвильові функції станів розмірного квантування $\Psi_{ex}^{el-h}(F, F_z; \mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr})$ згідно зі стандартним правилом складання моментів (див., наприклад, [5]) мають такий вигляд:

$$\Psi_{ex}^{el-h}(2, 2; \mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}) = \Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{cr}) \uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}), \quad (1)$$

$$\Psi_{ex}^{el-h}(2, -2; \mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}) = \Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{cr}) i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}), \quad (2)$$

$$\Psi_{ex}^{el-h}(2, 1; \mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}) = \Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{cr}) \times \left[\frac{\sqrt{3}}{2} \uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}) + \frac{1}{2} i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}) \right], \quad (3)$$

$$\Psi_{ex}^{el-h}(2, -1; \mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}) = -\Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{cr}) \times \left[\frac{\sqrt{3}}{2} i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}) + \frac{1}{2} \uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{cr}) \right], \quad (4)$$

$$\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(2, 0; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \frac{\Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{\text{cr}})}{\sqrt{2}} \times \left[\uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) + i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) \right], \quad (5)$$

де

$$\uparrow = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{і} \quad \downarrow = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (6)$$

є спіновими функціями електрона (спінорами), що відповідають проекції спіну електрона $+1/2$ і $-1/2$ на вісь Z_{cr} , $\Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{\text{cr}}) = \rho_0^e(\tilde{r}_e)Y_{0,0}(\Omega_e^{\text{cr}})S$ – повна просторова електронна хвильова функція основного стану розмірного квантування, $\rho_0^e(\tilde{r}_e)$ – радіальна частина електронної огинаючої хвильової функції, S – вузельна електронна хвильова функція (локалізована функція Ваньє [6]) сферично-симетричного s -типу, $\tilde{\mathbf{r}}_e^{\text{cr}}$ – просторова електронна змінна у власній кристалічній системі координат, $r_e^{\text{cr}} \equiv \tilde{r}_e$, координати електрона в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ з центром O_2 виражаються радіусом-вектором $\tilde{\mathbf{r}}_e$, Ω_e^{cr} – кутові змінні електрона, $\Psi_h^{M, M_z}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ – діркова хвильова функція з квантовим числом M повного моменту імпульсу дірки і квантовим числом M_z його проекції на вісь Z_{cr} , \mathbf{r}_h^{cr} – просторова змінна дірки, $Y_{l,m}(\Omega)$ – нормовані скалярні сферичні гармоніки, які описують кутову частину відповідної діркової огинаючої хвильової функції розмірного квантування, l – квантове число орбітального моменту дірки, m – квантове число його проекції на відповідну вісь (Z_{cr} в кристалічній системі координат або \tilde{Z} в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$).

В свою чергу, діркові хвильові функції розмірного квантування $\Psi_h^{M, M_z}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ згідно з тим самим правилом складання моментів виражаються таким чином:

$$\Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \rho_0^h(\tilde{r}_h)Y_{0,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{5}} \rho_2^h(\tilde{r}_h) \left[Y_{2,2}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + Y_{2,1}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} Y_{2,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \right], \quad (7)$$

$$\Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \rho_0^h(\tilde{r}_h)Y_{0,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{5}} \rho_2^h(\tilde{r}_h) \left[Y_{2,-2}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle - Y_{2,-1}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} Y_{2,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \right], \quad (8)$$

$$\Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \rho_0^h(\tilde{r}_h)Y_{0,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{5}} \rho_2^h(\tilde{r}_h) \left[Y_{2,2}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle + Y_{2,-1}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} Y_{2,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle \right], \quad (9)$$

$$\Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \rho_0^h(\tilde{r}_h)Y_{0,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle + \sqrt{\frac{2}{5}} \rho_2^h(\tilde{r}_h) \left[Y_{2,-2}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle - Y_{2,1}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} Y_{2,0}(\Omega_h^{\text{cr}}) \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \right]. \quad (10)$$

У виразах (7)–(10) $\rho_0^h(\tilde{r}_h)$ і $\rho_2^h(\tilde{r}_h)$ – діркові огинаючі радіальні функції розмірного квантування сферичної і несферичної частини повної діркової хвильової функції, відповідно, координати дірки в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ виражаються радіусом-вектором $\tilde{\mathbf{r}}_h$, $r_h^{\text{cr}} \equiv \tilde{r}_h$, $|J, J_z\rangle$ – вузельні просторово-спінові діркові хвильові функції з квантовим числом $J=3/2$ повного моменту імпульса (ефективного спіна) дірки і квантовим числом J_z його проекції на вісь Z_{cr} .

Функції $|J, J_z\rangle$, знову ж таки, згідно зі стандартним правилом складання моментів мають такий вигляд:

$$|3/2, 3/2\rangle = (X^{\text{cr}} + iY^{\text{cr}})/\sqrt{2} \uparrow, \quad (11)$$

$$|3/2, -3/2\rangle = i(X^{\text{cr}} - iY^{\text{cr}})/\sqrt{2} \downarrow, \quad (12)$$

$$|3/2, 1/2\rangle = i[(X^{\text{cr}} + iY^{\text{cr}}) \downarrow - 2Z^{\text{cr}} \uparrow]/\sqrt{6}, \quad (13)$$

$$|3/2, -1/2\rangle = [(X^{\text{cr}} - iY^{\text{cr}}) \uparrow + 2Z^{\text{cr}} \downarrow]/\sqrt{6}, \quad (14)$$

де \uparrow і \downarrow – діркові спінори, що відповідають проекції спіну дірки $\pm 1/2$ на вісь Z_{cr} , X^{cr} , Y^{cr} і Z^{cr} – вузельні просторові діркові хвильові функції p -типу в кристалічній системі координат $\{X_{\text{cr}}, Y_{\text{cr}}, Z_{\text{cr}}\}$.

У випадку відщеплених спін-спіновою електрон-дірковою обмінною взаємодією більш високоенергетичних трикратно вироджених станів яскравих екситонів з $F = 1$ і $F_z = \pm 1, 0$ відповідні екситонні хвильові функції розмірного квантування $\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(F, F_z; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ мають такий вигляд:

$$\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(1, 1; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{\text{cr}}) \left[\frac{1}{2} \uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) - \frac{\sqrt{3}}{2} i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) \right], \quad (15)$$

$$\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(1, -1; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{\text{cr}}) \times \left[\frac{\sqrt{3}}{2} \uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) - \frac{1}{2} i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) \right], \quad (16)$$

$$\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(1, 0; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}}) = \frac{\Psi_e^0(\mathbf{r}_e^{\text{cr}})}{\sqrt{2}} \left[\uparrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) - i \downarrow \Psi_h^{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}}(\mathbf{r}_h^{\text{cr}}) \right]. \quad (17)$$

Слід зауважити, що в базисній роботі Ефроса зі співавторами [4] у виразах для екситонних хвильових функцій темних екситонів з $F = 2$ і $F_z = \pm 1$ зроблена помилка. У випадку сферичної КТ напівпровідника кубічної модифікації ці вирази повинні переходити у вирази (3) і (4) даної роботи. Але цього не відбувається, оскільки в [4] переплутані коефіцієнти при складових частинах відповідних хвильових функцій. Як наслідок, хвильові функції темних екситонів з $F_z = \pm 1$ в [4] не є ортогональними до хвильових функцій яскравих екситонів з $F_z = \pm 1$, і, відповідно, розраховані в [4] в дипольному наближенні матричні елементи оптичних переходів в ці стани (з цих станів) темних екситонів є не нульовими на відміну від нульових матричних елементів переходу в стани (зі станів) темних екситонів з $F_z = \pm 2$ і $F_z = 0$. Насправді вони так само мають бути нульовими в дипольному наближенні. Згідно з результатами нашої моделі, випромінювання з усіх станів темних екситонів відбувається лише у вигляді сферичних хвиль з дипольними і октупольними компонентами електричного типу і квадрупольними компонентами магнітного типу, причому це випромінювання пов'язане виключно з несферичною частиною діркової огинаючої хвильової функції.

3. Перетворення екситонних хвильових функцій при повороті системи координат

Для подальших розрахунків у випадку наносистеми КТ + НЧ екситонні хвильові функції мають бути записані у системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ з центром O_2 всередині КТ (див. рис. 1). Орієнтацію системи $\{X_{\text{cr}}, Y_{\text{cr}}, Z_{\text{cr}}\}$ відносно системи $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ можна задати стандартним чином за допомогою кутів Ейлера $\{\Psi_e, \theta_e, \varphi_e\}$. В даній роботі всі кути Ейлера є кутами повороту проти руху годинникової стрілки.

Спочатку необхідно зауважити, що при знаходженні згідно з [3] ЕМ поля, яке випромінює КТ,

необхідно, як і в роботі [4], перейти від електрон-діркового представлення екситонних функцій $\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-h}}(F, F_z; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ до електрон-електронного представлення $\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-el}}(F, F_z; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}})$, що просто означає заміну просторових компонент діркових складових цих екситонних функцій на комплексно-спряжені і заміну діркових співорів \uparrow і \downarrow на транспоновані електронні співори \uparrow^T і \downarrow^T , відповідно. Оскільки в результаті в екситонні хвильові функції $\Psi_{\text{ex}}^{\text{el-el}}(F, F_z; \mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ у вихідній кристалічній системі координат будуть виходити добутки співорів $\uparrow\uparrow^T$ і $\downarrow\downarrow^T$, які є скалярами і дорівнюють одиниці, і добутки $\uparrow\downarrow^T$ і $\downarrow\uparrow^T$, які дорівнюють нулеві, то, по-перше, у виразах для ЕМ поля лишається лише ті складові, які відповідають ненульовим добуткам співорів, а по-друге, добутки $\uparrow\uparrow^T$ і $\downarrow\downarrow^T$ будуть дорівнювати так само одиниці і в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$.

Що стосується кутових огинаючих функцій у вигляді нормованих сферичних гармонік $Y_{2,\mu}(\Omega^{\text{cr}})$ системи координат $\{X_{\text{cr}}, Y_{\text{cr}}, Z_{\text{cr}}\}$, які входять у вирази (7)–(10) і, відповідно, у вирази (1)–(5), то згідно з [7] вони можуть бути записані у вигляді наступного розкладу по сферичних гармоніках $Y_{2,m}(\tilde{\Omega})$ системи координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$:

$$Y_{2,\mu}(\theta_{\text{cr}}, \varphi_{\text{cr}}) = \sum_{m=-2}^2 C_{\mu,m} Y_{2,m}(\tilde{\theta}, \tilde{\varphi}). \quad (18)$$

Коефіцієнти розкладу $C_{\mu,m}$ можна знайти, якщо використати запис сферичних гармонік $Y_{2,\mu}(\Omega^{\text{cr}})$ у вигляді $Y_{2,\pm 2}(\Omega^{\text{cr}}) = \sqrt{15/(32\pi)}(x_{\text{cr}} \pm iy_{\text{cr}})^2$, $Y_{2,\pm 1}(\Omega^{\text{cr}}) = \mp \sqrt{15/(8\pi)}(x_{\text{cr}} \pm iy_{\text{cr}})z_{\text{cr}}$ і $Y_{2,0}(\Omega^{\text{cr}}) = \sqrt{5/(16\pi)}(2z_{\text{cr}}^2 - x_{\text{cr}}^2 - y_{\text{cr}}^2)$, де $x_{\text{cr}}, y_{\text{cr}}$ і z_{cr} – координати одиничного вектора у напрямку, що задаються кутами θ_{cr} і φ_{cr} кристалічної системи координат, тобто $x_{\text{cr}} = \sin \theta_{\text{cr}} \cos \varphi_{\text{cr}}$, $y_{\text{cr}} = \sin \theta_{\text{cr}} \sin \varphi_{\text{cr}}$ і $z_{\text{cr}} = \cos \theta_{\text{cr}}$. Записуючи координати одиничного вектора $x_{\text{cr}}, y_{\text{cr}}$ і z_{cr} через кути Ейлера і координати цього вектора у системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ (тобто через $\tilde{x} = \sin \tilde{\theta} \cos \tilde{\varphi}$, $\tilde{y} = \sin \tilde{\theta} \sin \tilde{\varphi}$ і $\tilde{z} = \cos \tilde{\theta}$), помножуючи формулу (18) на $Y_{2,m}^*(\tilde{\theta}, \tilde{\varphi})$ та інтегруючи по кутових змінних $\tilde{\theta}$ і $\tilde{\varphi}$, можна отримати вирази для коефіцієнтів $C_{\mu,m}$ через кути Ейлера. Ці вирази наведені в Додатку 1.

Нарешті, при знаходженні внеску точкових (вузельних) випромінюючих диполів в повне електромагнітне поле КТ матричні елементи вузельних дипольних моментів будуть виражатись у вигляді

$\langle S|e\mathbf{r}_i|X^{cr}\rangle = p\mathbf{n}_1$, $\langle S|e\mathbf{r}_i|Y^{cr}\rangle = p\mathbf{n}_2$ і $\langle S|e\mathbf{r}_i|Z^{cr}\rangle = p\mathbf{n}_3$, де \mathbf{r}_i – координата електрона в межах елементарної комірки, що відповідає тому чи іншому вузлу кристала, p – модуль вузельного дипольного моменту (однаковий для всіх трьох напрямків внаслідок кубічної симетрії кристала), \mathbf{n}_1 , \mathbf{n}_2 і \mathbf{n}_3 – орти кристалічної системи координат. В системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$ ці орти у вузлі в точці $\tilde{\mathbf{r}}_d$ (див. рис. 1) можуть бути записані у такому вигляді [5]:

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_\alpha(\tilde{\mathbf{r}}_d) &= \sqrt{2\pi/3} \times \\ &\times \left\{ n_\alpha^x \nabla_{\tilde{\mathbf{r}}_d} [\tilde{\mathbf{r}}_d \{Y_{1,-1}(\tilde{\Omega}_d) - Y_{1,1}(\tilde{\Omega}_d)\}] + \right. \\ &+ i n_\alpha^y \nabla_{\tilde{\mathbf{r}}_d} [\tilde{\mathbf{r}}_d \{Y_{1,-1}(\tilde{\Omega}_d) + Y_{1,1}(\tilde{\Omega}_d)\}] + \\ &\left. + \sqrt{2} n_\alpha^z \nabla_{\tilde{\mathbf{r}}_d} [\tilde{\mathbf{r}}_d Y_{1,0}(\tilde{\Omega}_d)] \right\}, \end{aligned} \quad (19)$$

де n_α^x , n_α^y і n_α^z – компоненти вектора \mathbf{n}_α в системі координат $\{\tilde{X}, \tilde{Y}, \tilde{Z}\}$. Згідно з виглядом вузельних діркових хвильових функцій (11)–(14), при обчисленнях будуть фігурувати такі комбінації цих компонент:

$$n_1^x \pm i n_2^x = \exp(\mp i \varphi_e) [\cos \Psi_e \mp i \cos \theta_e \sin \Psi_e], \quad (20)$$

$$n_1^y \pm i n_2^y = \exp(\mp i \varphi_e) [\sin \Psi_e \pm i \cos \theta_e \cos \Psi_e], \quad (21)$$

$$n_1^z \pm i n_2^z = \pm i \exp(\mp i \varphi_e) \sin \theta_e, \quad (22)$$

$$n_3^x = \sin \theta_e \sin \Psi_e, \quad n_3^y = -\sin \theta_e \cos \Psi_e, \quad (23)$$

$$n_3^z = \cos \theta_e. \quad (24)$$

4. Електромагнітні поля екситонного випромінювання КТ

При розрахунку ЕМ поля випромінювання п'ятикратно виродженого стану темних екситонів у КТ, що характеризується квантовим числом повного моменту імпульсу екситону $F = 2$, слід користуватись такою ефективною хвильовою функцією:

$$\begin{aligned} \Psi_{ex,2}(\tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) &= \frac{1}{\sqrt{5}} [a_L \Psi_{ex}^{el-el}(2, 0; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + \\ &+ b_L \Psi_{ex}^{el-el}(2, 1; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + c_L \Psi_{ex}^{el-el}(2, -1; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + \\ &+ d_L \Psi_{ex}^{el-el}(2, 2; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + f_L \Psi_{ex}^{el-el}(2, -2; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h)], \end{aligned} \quad (25)$$

де a_L , b_L , c_L , d_L і f_L – довільні фазові множники. Такий вигляд ефективної хвильової функції зумовлений однаковою імовірністю заселення кожного з п'яти вироджених станів темних екситонів при зовнішньому збудженні; наявність довільних фазових

множників зумовлена некогерентним характером знаходження екситону в цих станах.

Відповідно, при розрахунку ЕМ поля випромінювання трикратно виродженого стану яскравих екситонів в КТ, що характеризується квантовим числом повного моменту імпульсу екситону $F = 1$, ефективна хвильова функція буде мати такий вигляд:

$$\begin{aligned} \Psi_{ex,1}(\tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) &= \frac{1}{\sqrt{3}} [a_U \Psi_{ex}^{el-el}(1, 0; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + \\ &+ b_U \Psi_{ex}^{el-el}(1, 1; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h) + c_U \Psi_{ex}^{el-el}(1, -1; \tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h)], \end{aligned} \quad (26)$$

де a_U , b_U і c_U так само є довільними фазовими множниками.

Згідно з [3], зумовлене екситонним станом з квантовим числом повного момента імпульсу F електричне поле на внутрішній поверхні КТ, яке формується внаслідок випромінювання усіх вузельних диполів всередині КТ, повинно мати такий вигляд:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{QD,2}^i(\tilde{\mathbf{r}}; F) &= \sum_{l,m} \left\{ \frac{i}{k_0 \varepsilon_2} \tilde{a}_{2,E}^{i,F}(l, m) \times \right. \\ &\times [\nabla_{\tilde{\mathbf{r}}} \times h_l(k_2 \tilde{r}) \mathbf{X}_{l,m}(\tilde{\Omega})] + \\ &\left. + \tilde{a}_{2,M}^{i,F}(l, m) h_l(k_2 \tilde{r}) \mathbf{X}_{l,m}(\tilde{\Omega}) \right\}, \end{aligned} \quad (27)$$

де $\tilde{r} = R_2$, нижній індекс 2 в $\mathbf{E}_{QD,2}^i$ вказує на те, що це – поле з боку внутрішньої границі КТ (див. рис. 1), $k_0 = \omega/c$, c – швидкість світла, $k_2 = \sqrt{\varepsilon_2} k_0$, $\tilde{a}_{2,E}^{i,F}(l, m)$ і $\tilde{a}_{2,M}^{i,F}(l, m)$ – коефіцієнти мультипольного розкладу електричного поля (електричного і магнітного типів), що випромінюється екситонним станом з квантовим числом повного моменту імпульсу F , ε_2 – фонові діелектрична стала напівпровідника в області частот, в якій відбувається випромінювання (у випадку CdTe $\varepsilon_2 \approx 13$ в області $\hbar\omega$ 1,5–3,0 еВ [8]), $\mathbf{X}_{l,m}(\tilde{\Omega})$ – нормовані векторні сферичні гармоніки [9], $h_l(x)$ – сферична функція Ханкеля першого роду.

Дипольний момент вузла з координатою $\tilde{\mathbf{r}}_d$ може бути записаний у вигляді такого розкладу:

$$\begin{aligned} \langle 0|e\tilde{\mathbf{r}}_i|\Psi_{ex,F}(\tilde{\mathbf{r}}_e, \tilde{\mathbf{r}}_h)\rangle_{\tilde{\mathbf{r}}_d} &= p [\mathbf{n}_1 \Psi_{ex,F}^{(1)}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d) + \\ &+ \mathbf{n}_2 \Psi_{ex,F}^{(2)}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d) + \mathbf{n}_3 \Psi_{ex,F}^{(3)}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d)], \end{aligned} \quad (28)$$

де $|0\rangle = \delta(\tilde{\mathbf{r}}_e - \tilde{\mathbf{r}}_h)$, функції $\Psi_{ex,F}^{(j)}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d)$ – коефіцієнти при вузельних функціях X^{cr} ($j = 1$),

Y^{cr} ($j = 2$) і Z^{cr} ($j = 3$) в повній хвильовій функції $\Psi_{ex,F}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d)$. Отже, цей дипольний момент утворюється дипольними моментами трьох точкових диполів у вузлі $\tilde{\mathbf{r}}_d$, орієнтованих вздовж ортів власної (кристалічної) системи координат \mathbf{n}_1 , \mathbf{n}_2 і \mathbf{n}_3 .

Внесок в електричне поле (27) від орієнтованого вздовж \mathbf{n}_α точкового диполя з дипольним моментом p , що знаходиться всередині КТ в точці $\tilde{\mathbf{r}}_d$, виражається такою формулою [3]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{d,2}^i(\tilde{\mathbf{r}}, \tilde{\mathbf{r}}_d; \mathbf{n}_\alpha) = & \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \left\{ \frac{i}{k_0 \varepsilon_2} \tilde{a}_{d,E}^{\gt}(l, m) \times \right. \\ & \times [\nabla_{\tilde{\mathbf{r}}} \times h_l(k_2 \tilde{r}) \mathbf{X}_{l,m}(\tilde{\Omega})] + \\ & \left. + \tilde{a}_{d,M}^{\gt}(l, m) h_l(k_2 \tilde{r}) \mathbf{X}_{l,m}(\tilde{\Omega}) \right\}, \end{aligned} \quad (29)$$

де $\tilde{a}_{d,M}^{\gt}(l, m) = 4\pi i p k_2 k_0^2 j_l(k_2 \tilde{r}_d) \mathbf{n}_\alpha \cdot \mathbf{X}_{l,m}^*(\tilde{\Omega}_d)$, $\tilde{a}_{d,E}^{\gt}(l, m) = 4\pi p k_2 k_0 \mathbf{n}_\alpha \cdot [\nabla_{\tilde{\mathbf{r}}_d} \times j_l(k_2 \tilde{r}_d) \mathbf{X}_{l,m}^*(\tilde{\Omega}_d)]$, $j_l(x)$ – сферична функція Бесселя.

Повне електричне поле КТ (27) і відповідні мультипольні коефіцієнти $\tilde{a}_{2,E}^{i,F}(l, m)$ і $\tilde{a}_{2,M}^{i,F}(l, m)$ отримуються шляхом інтегрування по об'єму КТ внесків (29) усіх точкових (вузельних) диполів на базі ефективних хвильових функцій (25) і (26):

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{QD,2}^i(\tilde{\mathbf{r}}; F) = & \sum_{\alpha=1,2,3} \int_{QD} \Psi_{ex,F}^{(\alpha)}(\tilde{\mathbf{r}}_d, \tilde{\mathbf{r}}_d) \times \\ & \times \mathbf{E}_{d,2}^i(\tilde{\mathbf{r}}, \tilde{\mathbf{r}}_d; \mathbf{n}_\alpha) d^3 \tilde{r}_d. \end{aligned} \quad (30)$$

З урахуванням того, що (див., наприклад, [10])

$$\begin{aligned} \int_{-1}^1 (1-x^2)^{\lambda-1} P_l^m(x) dx = & \pi 2^m \times \\ & \times \frac{\Gamma(\lambda + \frac{m}{2}) \Gamma(\lambda - \frac{m}{2})}{\Gamma(\lambda + \frac{l+1}{2}) \Gamma(\lambda - \frac{l}{2}) \Gamma(1 + \frac{l-m}{2}) \Gamma(\frac{1-l-m}{2})}, \end{aligned} \quad (31)$$

$$\begin{aligned} \int_0^1 x^\sigma (1-x^2)^{m/2} P_l^m(x) dx = & \frac{(-1)^m}{2^{m+1}} \times \\ & \times \frac{\Gamma(\frac{1+\sigma}{2}) \Gamma(1 + \frac{\sigma}{2}) \Gamma(1+m+l)}{\Gamma(1 + \frac{\sigma+m-l}{2}) \Gamma(\frac{3+\sigma+m+l}{2}) \Gamma(1-m+l)}, \end{aligned} \quad (32)$$

де $P_l^m(x)$ – приєднані поліноми Лежандра, з нескінченного ряду мультиполів (29), які входять в підінтегральний вираз (30), в результаті інтегрування залишаються лише мультиполя магнітного типу з $l = 2$ і мультиполя електричного типу з

$l = 1$ і $l = 3$. Таким чином, можна визначити як функції кутів Ейлера всі мультипольні коефіцієнти $\tilde{a}_{2,E}^{i,F}(l, m)$ і $\tilde{a}_{2,M}^{i,F}(l, m)$ в розкладі (27) електричного поля екситонного випромінювання КТ на внутрішній границі КТ. Всі інші поля, в тому числі відбиті від металевої НЧ і поля всередині НЧ, знаходяться за формулами роботи [3].

5. Енергії екситонних переходів і радіальні хвильові функції електрона і дірки

Для розрахунку випромінювальних характеристик наносистеми КТ + НЧ необхідно визначити енергію E_x екситонного переходу в КТ (тобто частоту випромінювання $\omega = E_x/\hbar$, яка фігурує у формулі (27)) як функцію розміру КТ. На відміну від робіт [4, 11] та інших, де використовується наближення нескінченно високих бар'єрів для електронів і дірок (що приводить до суттєво завищених значень енергій розмірного квантування), в даній роботі розрахунки проведені для більш реального випадку бар'єрів скінченної висоти, а саме для випадку знаходження КТ CdTe і металевої НЧ в матриці SiO₂. В основному такий вибір зумовлений тим, що всі необхідні для розрахунку параметри SiO₂, а також величини розривів зон валентної і провідності на межі поділу CdTe/SiO₂ відомі або можуть бути вираховані. Крім того, SiO₂ в ролі проміжного шару, а також в ролі покриття КТ CdTe і металевих НЧ використовується і в реальних структурах (див., наприклад, [12–15]).

Огинаючі хвильові функції і енергії екситонних станів в окремій КТ знаходяться з такого рівняння Шредінгера:

$$\begin{aligned} & [\hat{H}_e + \hat{H}_h + \hat{H}_{exch} + U_e(r_e^{cr}) + U_h(r_h^{cr}) + \\ & + U_s(r_e^{cr}) + U_s(r_h^{cr}) + U_{eh}(\mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr})] \times \\ & \times \Psi_{ex,F}(\mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}) = (E_{x,F} - E_g) \Psi_{ex,F}(\mathbf{r}_e^{cr}, \mathbf{r}_h^{cr}), \end{aligned} \quad (33)$$

де E_g – ширина забороненої зони об'ємного матеріалу (у випадку CdTe $E_g = 1,475$ еВ при $T = 300$ К [8]), \hat{H}_e і \hat{H}_h – електронний і дірковий оператори кінетичної енергії в багатозонній моделі Латтінжера–Кона, $\hat{H}_{exch} = -(\hbar\omega_{ST}/12) a_{ex}^3 \delta(\mathbf{r}_e^{cr} - \mathbf{r}_h^{cr})$ ($\sigma \cdot \mathbf{J}$) – оператор електрон-діркової обмінної взаємодії [4], $\hbar\omega_{ST}$ – синглет-триплетне розщеплення в об'ємному напівпровіднику ($\hbar\omega_{ST} = 0,04$ меВ

у випадку CdTe), a_{ex} – борівський радіус екситону ($a_{\text{ex}} \approx 6,5$ нм у випадку CdTe), σ – електронні матриці Паулі для частинок зі спіном $1/2$, \mathbf{J} – діркові матриці для частинок зі спіном $3/2$. Потенціальні енергії $U_s(r_e^{\text{cr}})$ і $U_s(r_h^{\text{cr}})$ описують самодію електрона і дірки в полі сил власних зображень, яке виникає внаслідок поляризації гетероінтерфейсу КТ. Потенціальні енергії $U_e(r_e^{\text{cr}})$ і $U_h(r_h^{\text{cr}})$ описують енергетичні ями для електронів і дірок, що утворюються внаслідок розривів зон провідності і валентної на гетеромежі, $U_{e(h)}(r) = 0$, якщо $r < R_2$ і $U_{e(h)}(r) = U_{c(v)}$, якщо $r > R_2$ (R_2 – радіус КТ), розрив валентної зони на гетеромежі CdTe/SiO₂ становить $U_v = 4,7$ еВ [16], розрив зони провідності $U_c = 2,92$ еВ (з урахуванням того, що ширина забороненої зони SiO₂ становить 9,1 еВ). Потенціальна енергія $U_{eh}(\mathbf{r}_e^{\text{cr}}, \mathbf{r}_h^{\text{cr}})$ описує кулонівську взаємодію між електроном і діркою (як прямою, так і непряму через відповідну поляризацію гетеромежі). Вона знаходиться з розв'язку рівняння Пуасона $\nabla_{\mathbf{r}} \cdot [\varepsilon(r) \nabla_{\mathbf{r}} U(\mathbf{r}, \mathbf{r}')] = 4\pi e^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$, де $\varepsilon(r) = \varepsilon_2^0$, якщо $r < R_2$ і $\varepsilon(r) = \varepsilon_3^0$, якщо $r > R_2$, ε_2^0 – низькочастотне (статичне) значення діелектричної сталої матеріалу КТ (у випадку CdTe $\varepsilon_2^0 = 10,4$ [8]), ε_3^0 – низькочастотне значення діелектричної сталої матеріалу матриці ($\varepsilon_3^0 = 3,9$ у випадку SiO₂ [8]), e – заряд електрона. Вирази для потенціальних енергій самодії $U_s(r)$ та взаємодії $U_{eh}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ в зручному для квантово-механічних розрахунків вигляді наведені, наприклад, в роботі [17].

Радіальна електронна хвильова функція $\rho_0^e(\tilde{r}_e)$ основного електронного стану в КТ ($\tilde{r}_e \equiv r_e^{\text{cr}}$), яка є власною функцією оператора кінетичної енергії \hat{H}_e , у випадку скінченного бар'єра має такий вигляд:

$$\rho_0^e(\tilde{r}_e) = C_e \{ \theta(R_2 - \tilde{r}_e) j_0(k_e \tilde{r}_e) + \theta(\tilde{r}_e - R_2) \times k_0(\lambda_e \tilde{r}_e) [j_0(k_e R_2) / k_0(\lambda_e R_2)] \}, \quad (34)$$

де $j_0(x)$ – сферична функція Бесселя нульового порядку, $k_0(x) = \exp(x)/x$ – модифікована сферична функція Ханкеля нульового порядку, $k_e = \sqrt{2m_{e,2}E_e}/\hbar$, $\lambda_e = \sqrt{2m_{e,3}(U_c - E_e)}/\hbar$, $m_{e,2}$ – ефективна маса електрона в КТ ($m_{e,2} = 0,095m_0$ у випадку CdTe [8]), $m_{e,3}$ – ефективна маса електрона в оточуючій матриці ($m_{e,3} = 0,5m_0$ у випадку SiO₂ [18]). Електронна енергія розмірного квантування E_e знаходиться з умови нетривіального розв'язку граничних умов у вигляді неперервності хвильової функції і її потоку на межі поділу

КТ/матриця, константа нормування C_e знаходиться з умови нормування $\int_0^\infty [\rho_0^e(\tilde{r}_e)]^2 \tilde{r}_e^2 d\tilde{r}_e = 1$.

Радіальні діркові хвильові функції $\rho_0^h(\tilde{r}_h)$ і $\rho_2^h(\tilde{r}_h)$ основного діркового стану в КТ ($\tilde{r}_h \equiv r_h^{\text{cr}}$), які фігурують в діркових хвильових функціях (7)–(10), у випадку скінченного бар'єра мають такий вигляд:

$$\rho_0^h(\tilde{r}_h) = \theta(R_2 - \tilde{r}_h) [A j_0(k_{hh} \tilde{r}_h) + B j_0(k_{lh} \tilde{r}_h)] + \theta(\tilde{r}_h - R_2) [C k_0(\lambda_{hh} \tilde{r}_h) + D k_0(\lambda_{lh} \tilde{r}_h)], \quad (35)$$

$$\rho_2^h(\tilde{r}_h) = \theta(R_2 - \tilde{r}_h) [A j_2(k_{hh} \tilde{r}_h) - B j_2(k_{lh} \tilde{r}_h)] + \theta(\tilde{r}_h - R_2) [C k_2(\lambda_{hh} \tilde{r}_h) - D k_2(\lambda_{lh} \tilde{r}_h)], \quad (36)$$

де $j_2(x)$ – сферична функція Бесселя другого порядку, $k_2(x) = \exp(-x)(1/x + 3/x^2 + 3/x^3)$ – модифікована сферична функція Ханкеля другого порядку, $k_{hh} = \sqrt{2m_{hh,2}E_h}/\hbar$, $k_{lh} = \sqrt{2m_{lh,2}E_h}/\hbar$, $\lambda_{hh} = \sqrt{2m_{hh,3}(U_v - E_h)}/\hbar$, $\lambda_{lh} = \sqrt{2m_{lh,3}(U_v - E_h)}/\hbar$, $m_{hh,2}$ і $m_{lh,2}$ – ефективні маси важкої і легкої дірок в КТ ($m_{hh,2} = 0,81m_0$, $m_{lh,2} = 0,12m_0$ у випадку CdTe [8]), $m_{hh,3}$ і $m_{lh,3}$ – ефективні маси важкої і легкої дірок в матриці ($m_{hh,3} = m_{lh,3} = 0,6m_0$ у випадку SiO₂ [19]). Енергія розмірного квантування дірки E_h також знаходиться з умови нетривіального розв'язку граничних умов у вигляді неперервності хвильових функцій $\rho_0^h(\tilde{r}_h)$ і $\rho_2^h(\tilde{r}_h)$ та їх потоків на межі поділу КТ/матриця, константи A , B , C і D знаходяться з цих граничних умов і умови нормування $\int_0^\infty \{ [\rho_0^h(\tilde{r}_h)]^2 + [\rho_2^h(\tilde{r}_h)]^2 \} \tilde{r}_h^2 d\tilde{r}_h = 1$.

На рис. 2 зображені розраховані залежності енергії екситонного переходу E_x в КТ CdTe від радіуса КТ R_2 без врахування розщеплення, пов'язаного з оператором обмінної взаємодії \hat{H}_{exch} в рівнянні Шредінгера (33).

На рис. 3 проілюстровано розраховані залежності від радіусу КТ CdTe енергій темних і яскравих екситонів (по відношенню до зображених на рис. 2 енергій екситонного переходу E_x).

6. Енергії плазмонів в металевій НЧ

Взаємодія екситонного випромінювання КТ з плазмовими коливаннями в НЧ і підсилення екситонного випромінювання за рахунок такої взаємодії

будуть максимальними в умовах близьких до резонансу між енергією екситонного випромінювання і енергією плазмових коливань. Конкретні розрахунки проводились для випадку золотих і срібних НЧ, діелектричні функції яких в оптичній області частот можуть бути записані у вигляді [21, 22]:

$$\varepsilon_1^{T(L)}(\omega, k) = 1 + \varepsilon_{ib}(\omega) + \varepsilon_{pl}^{T(L)}(\omega, k), \quad (37)$$

де другий доданок у правій частині зумовлений міжзонними електронними переходами (тобто зв'язаними електронами), а третій доданок,

$$\varepsilon_{pl}^{T(L)}(\omega, k) = -\frac{\omega_{pl}^2}{\omega[\omega + i(\Gamma + Av_F/R_1)] - \beta_{T(L)}^2 k^2}, \quad (38)$$

зумовлений електронними переходами всередині зони провідності (тобто вільними електронами). Індeksi T і L використовуються для позначення поперечної і поздовжньої компонент діелектричної сталої, відповідно. У випадку золота або срібла швидкість Фермі $v_F \sim 1,4 \cdot 10^8$ см/с, $\beta_L = \sqrt{3/5} v_F$, $\beta_T = 0$, константа затухання в об'ємному матеріалі $\Gamma = v_F/l_f$, де l_f – довжина вільного пробігу електронів, константа A залежно від механізму розсіювання електронів на стінках НЧ та інших факторів набуває значення в діапазоні 0,1–0,7 [21] (в даній роботі ми поклали $A = 0,5$), $\omega_{pl} = \sqrt{4\pi ne^2/m^*}$ – плазмова частота відповідного матеріалу ($\hbar\omega_{pl} = 8,56$ еВ і $\hbar\Gamma = 73$ меВ у випадку золота [23], $\hbar\omega_{pl} = 9,1$ еВ і $\hbar\Gamma = 18$ меВ у випадку срібла [24]). У випадку золота врахування міжзонних переходів було зроблено на основі моделі [23] з енергіями міжзонних переходів $\hbar\omega_1 = 2,65$ еВ і $\hbar\omega_2 = 3,75$ еВ. У випадку срібла була використана узагальнена модель Друде зі значенням фонові діелектричної сталої $\varepsilon_\infty = 1 + \varepsilon_{ib} = 3,71$ [24]. Розраховані на основі моделей [23] і [24] частотні залежності дійсної і уявної частин діелектричних сталей об'ємного золота і срібла добре узгоджуються з даними експерименту [25] в актуальній області частот.

Енергії інтерфейсних плазмонних коливань в металевих НЧ можуть бути визначені в рамках задачі розсіювання як полюси розрахованих в нашій попередній роботі [3] коефіцієнтів відбиття $V_{E,33}^{NP}$ падаючого на НЧ електромагнітного випромінювання. На рис. 4 і 5 наведені залежності енергій

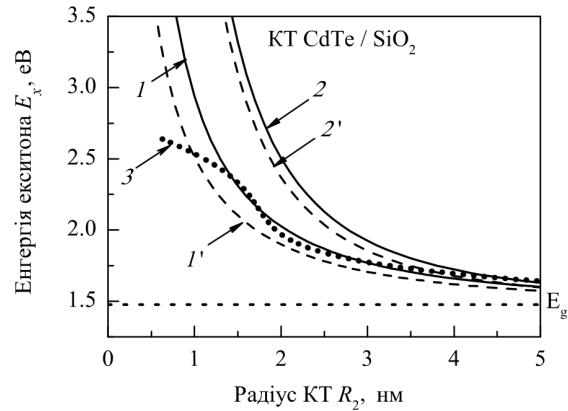


Рис. 2. Залежності енергії основного екситонного переходу E_x в КТ CdTe від радіуса КТ. Криві 1 і 1' відповідають скінченному бар'єру CdTe/SiO₂, 2 і 2' – нескінченно високому бар'єру. Криві 1 і 2 побудовані з урахуванням змішування станів важких і легких дірок, 1' і 2' – враховано лише стан важкої дірки. Крива 3 – емпірична залежність енергії першого піка поглинання від радіуса КТ CdTe [20]

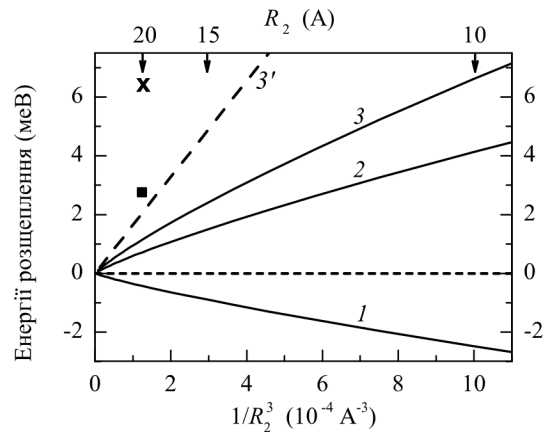


Рис. 3. Залежності енергій $E_{x,F} - E_x$ від радіуса R_2 КТ CdTe. Крива 1 відповідає станам темних екситонів з квантовим числом повного моменту імпульсу $F = 2$, крива 2 – станам яскравих екситонів з $F = 1$. Крива 3 – залежність сумарного розщеплення $\Delta = E_{x,1} - E_{x,2}$. Штрихова крива 3' – залежність сумарного розщеплення у випадку нескінченно високих бар'єрів для електронів і дірок. Значком \times відмічено значення сумарного розщеплення в КТ CdTe при $R_2 = 2$ нм згідно з розрахунком Ефроса зі співавторами [4], значком \blacksquare – згідно з розрахунком Блоккланда зі співавторами [11]

інтерфейсних плазмонів різного порядку від розміру золотої і срібної НЧ у випадку знаходження НЧ в матриці SiO₂, що характеризується високо-частотною діелектричною сталою $\varepsilon_3 \approx 2,37$ – $2,45$ в області енергій 1,6–3 еВ [26].

7. Розрахунок потужності екситонного випромінювання в наносистемі “напівпровідникова КТ + металева НЧ”

Після того, як в розділі 4 були отримані вирази для ЕМ поля, що падає на внутрішню границю КТ (тобто розраховані всі коефіцієнти мультипольного розкладу цього поля), всі інші поля в розглядуваній системі визначаються за формулами роботи [3]. В результаті, можна розрахувати потужність випромінювання як окремої ізолюваної КТ, так і наносистеми КТ + НЧ в цілому. Згідно з [9], усереднена за період $T = 2\pi/\omega$ потужність випромінювання $\overline{P}_{\text{QD}}^{(F)}$ ізолюваної напівпровідникової КТ буде виражатися таким чином:

$$\overline{P}_{\text{QD}}^{(F)} = \frac{\omega}{8\pi k_0^3} \sum_{l,m} [|\tilde{a}_{3,E}^{l,F}(l,m)|^2 + \varepsilon_3 |\tilde{a}_{3,M}^{l,F}(l,m)|^2]. \quad (39)$$

де коефіцієнти $\tilde{a}_{3,E}^{l,F}(l,m)$ і $\tilde{a}_{3,M}^{l,F}(l,m)$ мультипольного розкладу ЕМ поля зовні КТ пов'язані з роз-

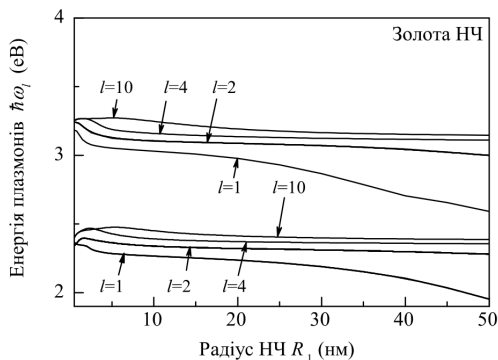


Рис. 4. Енергії інтерфейсних плазмонів золотої НЧ з різними орбітальними числами l залежно від радіуса НЧ

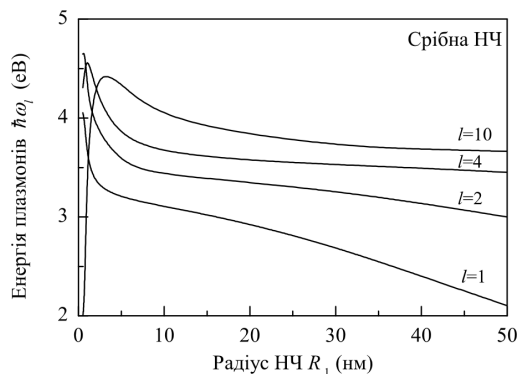


Рис. 5. Енергії інтерфейсних плазмонів срібної НЧ з різними орбітальними числами l залежно від радіуса НЧ

рахованими коефіцієнтами $\tilde{a}_{2,E}^{i,F}(l,m)$ і $\tilde{a}_{2,M}^{i,F}(l,m)$ ЕМ поля на внутрішній границі КТ коефіцієнтами проходження ЕМ поля $V_{E,23}^{\text{QD}}(l)$ і $V_{M,23}^{\text{QD}}(l)$ [3], відповідно.

В результаті, у випадку випромінювання з вищих рівнів яскравих екситонів з $F = 1$ маємо такий вираз:

$$\overline{P}_{\text{QD}}^{(1)} = \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{108} \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_3}\right)^{3/2} \left[\sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(1)|^2 I_0^2 \times \left(24 - 8 \frac{I_2}{I_0} + \frac{13}{2} \frac{I_2^2}{I_0^2}\right) + \frac{192}{7} \sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(3)|^2 I_2^2 + \frac{3234}{125} \frac{\varepsilon_3}{\sqrt{\varepsilon_2}} |V_{M,23}^{\text{QD}}(2)|^2 I_2^2 \right], \quad (40)$$

де

$$I_0 = \int_0^{R_2} \rho_0^e(\tilde{r}) \rho_0^h(\tilde{r}) j_0(k_2 \tilde{r}) \tilde{r}^2 d\tilde{r},$$

$$I_2 = \int_0^{R_2} \rho_0^e(\tilde{r}) \rho_2^h(\tilde{r}) j_2(k_2 \tilde{r}) \tilde{r}^2 d\tilde{r}.$$

У випадку випромінювання з нижчих рівнів темних екситонів з $F = 2$

$$\overline{P}_{\text{QD}}^{(2)} = \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{450} \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_3}\right)^{3/2} \left[6 \sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(1)|^2 + \frac{128}{7} \sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(3)|^2 + \frac{392}{5} \frac{\varepsilon_3}{\sqrt{\varepsilon_2}} |V_{M,23}^{\text{QD}}(2)|^2 \right]. \quad (41)$$

Як видно з формул (40) і (41), потужності випромінювання ізолюваної напівпровідникової КТ не залежать від кутів Ейлера, що є зрозумілим з фізичної точки зору. Цей факт є підтвердженням правильності отриманих електричних полів.

За наявності металевої НЧ в околі напівпровідникової КТ поле в хвильовій зоні є сумою ЕМ поля, що випромінюється безпосередньо КТ, та полів, що формуються внаслідок багатократного розсіювання цього поля між КТ і НЧ. Поле, що випромінює КТ, містить лише мультипольні складові з $l = 1, 2$ і 3 . Але в процесі розсіювання цього поля між КТ і НЧ будуть з'являтися і мультипольні складові більш високих порядків l' [3]. Більшим значенням l' буде відповідати менший внесок у загальне поле, так що можна обмежитись скінченною кількістю мультиполів, які мають бути враховані. Подальше

викладення в цілях скорочення пояснень базується цілком на позначеннях роботи [3], в тому числі і для коефіцієнтів відбиття і проходження ЕМ поля на гетеромежах матриця/НЧ і матриця/КТ.

Задамо число k в ролі максимального порядку мультиполів, які будуть враховані в матрицях розсіювання, а також сформуємо матрицю $\mathbf{N}^{(m)}$ як суму ступенів матриць ξ_m однократного розсіювання ЕМ поля на КТ [3]:

$$\mathbf{N}^{(m)} = \mathbf{I} + \xi_m + \xi_m^2 + \dots = (\mathbf{I} - \xi_m)^{-1}. \quad (42)$$

Цією матрицею багатократного розсіювання розміром $2k \times 2k$ і буде описуватись розсіювання ЕМ поля на КТ. Сформуємо також $2k \times 2k$ матрицю $\mathbf{M}^{(m)} = \mathbf{Z}_m \mathbf{N}^{(m)}$ для врахування багатократного розсіювання ЕМ поля на металевій НЧ ($2k \times 2k$ матриця \mathbf{Z}_m визначена в [3]), і введемо такі величини, в яких фігурують матричні елементи матриць $\mathbf{M}^{(m)}$ і $\mathbf{N}^{(m)}$

$$B_{l,n}^{(m)} = |V_{E,33}^{\text{NP}}(l) M_{k+l,n}^{(m)} + N_{k+l,n}^{(m)}|^2 + \varepsilon_3 |V_{M,33}^{\text{NP}}(l) M_{l,n}^{(m)} + N_{l,n}^{(m)}|^2, \quad (43)$$

$$C_{l,n,j}^{(m)} = [V_{E,33}^{\text{NP}}(l) M_{k+l,n}^{(m)} + N_{k+l,n}^{(m)}] \times [V_{E,33}^{\text{NP}}(l) M_{k+l,j}^{(m)} + N_{k+l,j}^{(m)}]^* + \varepsilon_3 [V_{M,33}^{\text{NP}}(l) M_{l,n}^{(m)} + N_{l,n}^{(m)}] \times [V_{M,33}^{\text{NP}}(l) M_{l,j}^{(m)} + N_{l,j}^{(m)}]^*. \quad (44)$$

Отримані з використанням цих коефіцієнтів вирази для потужностей випромінювання $\langle \overline{P}_{\text{QD+NP}} \rangle_{\psi_{\epsilon, \theta_{\epsilon}, \varphi_{\epsilon}}}$ системи КТ + НЧ, що є усередненими за період $T = 2\pi/\omega$ і за кутами Ейлера (тобто по орієнтації кристалічної ґратки всередині КТ, або, що еквівалентно, по розташуванню КТ навколо НЧ), наведені в Додатку 2 (для станів яскравих екситонів з квантовим числом повного моменту імпульсу $F = 1$) і в Додатку 3 (для станів темних екситонів з $F = 2$).

8. Розрахунок інтенсивності поглинання енергії ЕМ поля металевією НЧ

Всередині НЧ відбувається поглинання енергії ЕМ поля електронами. Для ЕМ поля, що випромінюється екситонним станом в КТ з квантовим числом

повного моменту імпульсу F , усереднену за період $T = 2\pi/\omega$ інтенсивність $\overline{Q}_{\text{NP}}^{(F)}$ його поглинання металевією НЧ (енергію, що поглинається НЧ за одиницю часу) можна розрахувати згідно з такою формулою:

$$\begin{aligned} \overline{Q}_{\text{NP}}^{(F)} &= \int_{\text{NP}} \overline{[\mathbf{j}(\mathbf{r}, t; F)]_{\text{Re}} \cdot [\mathbf{E}_1^{\text{NP}}(\mathbf{r}, t; F)]_{\text{Re}}} d^3r = \\ &= \frac{\omega}{8\pi} \int_{\text{NP}} \left\{ \text{Im}(\varepsilon_1^T(\omega, 0)) |\mathbf{E}_{1,T}^{\text{NP}}(\mathbf{r}; F)|^2 + \text{Re}(\varepsilon_1^T(\omega, 0)) \times \right. \\ &\times \text{Im} \left[\mathbf{E}_{1,T}^{\text{NP}}(\mathbf{r}; F) \cdot (\mathbf{E}_{1,L}^{\text{NP}}(\mathbf{r}; F))^* \right] + \text{Im}(\varepsilon_1^T(\omega, 0)) \times \\ &\times \text{Re} \left[\mathbf{E}_{1,T}^{\text{NP}}(\mathbf{r}; F) \cdot (\mathbf{E}_{1,L}^{\text{NP}}(\mathbf{r}; F))^* \right] \left. \right\} d^3r, \quad (45) \end{aligned}$$

де $[\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)]_{\text{Re}} = [\mathbf{A}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t) + \mathbf{A}^*(\mathbf{r}) \exp(i\omega t)]/2$, $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t; F)$ – густина струму електронів, $\mathbf{E}_{1,T}^{\text{NP}}(\mathbf{r}, t; F)$ і $\mathbf{E}_{1,L}^{\text{NP}}(\mathbf{r}, t; F)$ – поперечне і поздовжнє електричні поля в НЧ (відповідні вирази для цих полів у вигляді їх мультипольних розкладів наведені в [3]), хвильове число $k_L(\omega)$ поздовжніх коливань визначається з умови $\varepsilon_1^L(\omega, k_L) = 0$, хвильове число $k_T(\omega)$ поперечних коливань визначається дисперсійним рівнянням $k_T^2 = \varepsilon_1^T(\omega, 0) \omega^2/c^2$. Для компактного запису подальших формул знадобляться такі позначення:

$$t_l^E = |V_{E,31}^{\text{NP}}(l)|^2 \frac{\text{Im}[\varepsilon_{pl}^T(\omega, 0)]}{|\varepsilon_1^T(\omega, 0)|^2 (k_0 R_1)^2} \times \int_0^1 \left\{ l(l+1) |j_l(k_T R_1 x)|^2 + \left| [y j_l(y)]'_{y=k_T R_1 x} \right|^2 \right\} dx, \quad (46)$$

$$\alpha_l = \int_0^1 \left\{ j_l(k_T R_1 x) [y j_l'(y)]_{y=k_L R_1 x}^* + [y j_l(y)]'_{y=k_T R_1 x} j_l^*(k_L R_1 x) \right\} dx, \quad (47)$$

$$\beta_l = \frac{V_{E,31}^{\text{NP}}(l) (V_{L,31}^{\text{NP}}(l))^*}{\varepsilon_1^T(\omega, 0) k_L^* R_1}, \quad (48)$$

$$t_l^{E,L} = t_l^E - \frac{\sqrt{l(l+1)}}{k_0 R_1} \left\{ \text{Re}[\varepsilon_1^T(\omega, 0)] [\beta_l' \alpha_l'' + \beta_l'' \alpha_l'] + \text{Im}[\varepsilon_{pl}^T(\omega, 0) + \varepsilon_{pl}^L(\omega, k_L)] [\beta_l' \alpha_l' - \beta_l'' \alpha_l''] \right\}, \quad (49)$$

$$t_l^M = |V_{M,31}^{NP}(l)|^2 \text{Im}[\varepsilon_{pl}^T(\omega, 0)] \int_0^1 |j_l(k_T R_1 x)|^2 x^2 dx. \quad (50)$$

У виразах (46)–(47) штрих означає похідну функції по аргументу, штрих і два штриха біля величин α_l і β_l у виразі (49) означають дійсну і уявну частини цих величин, $V_{E,31}^{NP}(l)$, $V_{M,31}^{NP}(l)$ і $V_{L,31}^{NP}(l)$ є амплітудами зв'язку між коефіцієнтами мультипольного розкладу ЕМ поля зовні і всередині НЧ [3]. Якщо сформувати величини

$$X_{l,n}^{(m)} = t_l^{E,L} |M_{k+l,n}^{(m)}|^2 + t_l^M |M_{l,n}^{(m)}|^2, \quad (51)$$

$$W_{l,n,j}^{(m)} = t_l^{E,L} M_{k+l,n}^{(m)} (M_{k+l,j}^{(m)})^* + t_l^M M_{l,n}^{(m)} (M_{l,j}^{(m)})^*, \quad (52)$$

то усереднені за період $T = 2\pi/\omega$ і за кутами Ейлера інтенсивності поглинання енергії електромагнітного поля металеву НЧ $\langle \overline{Q}_{NP}^{(F)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e}$ будуть виражатись такими формулами:

$$\langle \overline{Q}_{NP}^{(1)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e} = \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{108} \varepsilon_2^{3/2} (k_0 R_1)^3 S_{Q,1}, \quad (53)$$

$$\langle \overline{Q}_{NP}^{(2)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e} = \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{450} I_2^2 \varepsilon_2^{3/2} (k_0 R_1)^3 S_{Q,2}, \quad (54)$$

де $S_{Q,1}$ і $S_{Q,2}$ – суми, що фігурують у формулах (Д2.1) і (Д3.1), відповідно, але з коефіцієнтами $X_{l,n}^{(m)}$ замість $B_{l,n}^{(m)}$ і $W_{l,n}^{(m)}$ замість $C_{l,n}^{(m)}$.

9. Розрахунок темпів екситонного випромінювання і безвипромінювальних втрат та квантового виходу випромінювання в наносистемі КТ + НЧ

При розрахунку випромінювальних характеристик гібридної наносистеми КТ + НЧ необхідно враховувати квазірівноважний характер заселеності рівнів темних і яскравих екситонів при скінченних температурах. Загальна усереднена потужність випромінювання $\langle P_{QD} \rangle$ ізольованої напівпровідникової КТ може бути записана таким чином:

$$\langle P_{QD} \rangle = \frac{\overline{P}_{QD}^{(2)} + \overline{P}_{QD}^{(1)} \exp(-\Delta/k_B T)}{1 + \exp(-\Delta/k_B T)}, \quad (55)$$

де $\Delta(R_2)$ – розщеплення рівнів темних і яскравих екситонів (див. розділ 5). Аналогічно (55) виражається і загальна усереднена потужність випромінювання $\langle P_{QD+NP} \rangle$ наносистеми КТ + НЧ з тією відмінністю, що замість $\overline{P}_{QD}^{(1)}$ і $\overline{P}_{QD}^{(2)}$ в цьому випадку будуть фігурувати $\langle \overline{P}_{QD+NP}^{(1)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e}$ (Д2.1) і $\langle \overline{P}_{QD+NP}^{(2)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e}$ (Д3.1). Зробивши заміну в формулі (55) $\langle P_{QD} \rangle$ на $\langle Q_{NP} \rangle$, $\overline{P}_{QD}^{(2)}$ на $\langle \overline{Q}_{NP}^{(2)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e}$ і $\overline{P}_{QD}^{(1)}$ на $\langle \overline{Q}_{NP}^{(1)} \rangle_{\psi_e, \theta_e, \varphi_e}$, аналогічний вираз можна отримати і для загальної інтенсивності поглинання металеву НЧ енергії електромагнітного поля, що випромінює КТ.

Задамо в ролі параметрів розрахунку темп нерадіаційних втрат (темپ безвипромінювальної рекомбінації) γ_{nr}^{QD} і квантовий вихід екситонного випромінювання $\eta_{QD} = \gamma_r^{QD} / (\gamma_r^{QD} + \gamma_{nr}^{QD})$ ізольованої КТ (типовими значеннями темпу нерадіаційних втрат КТ CdTe є значення $\gamma_{nr}^{QD} \sim (2-7) \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ [27, 28]). Тим самим фактично задано і темп випромінювальної екситонної рекомбінації ізольованої КТ $\gamma_r^{QD} = \gamma_{nr}^{QD} \eta_{QD} / (1 - \eta_{QD})$. Зрозуміло, що потужність випромінювання $\langle P_{QD} \rangle$ ізольованої напівпровідникової КТ має бути пропорційна темпу випромінювальної рекомбінації γ_r^{QD} , $\langle P_{QD} \rangle / \hbar \omega = A_r \gamma_r^{QD}$. Визначивши звідси коефіцієнт пропорційності A_r , можна знайти темп екситонного випромінювання наносистеми КТ + НЧ в цілому $\gamma_r^{QD+NP} = \langle P_{QD+NP} \rangle / (A_r \hbar \omega)$, а також темп безвипромінювальних втрат в такій системі $\gamma_{nr, TOT}^{QD+NP} = \gamma_{nr}^{QD+NP} + \gamma_{nr, FRET}^{QD+NP}$, де $\gamma_{nr}^{QD+NP} = \gamma_{nr}^{QD} + \langle Q_{NP} \rangle / (A_r \hbar \omega)$, а $\gamma_{nr, FRET}^{QD+NP}$ є внеском, зумовленим безпосередньою резонансною передачею енергії екситонів плазмонним збудженням в НЧ без участі фотонів. Цей внесок, який в дипольному наближенні спадає як D^{-6} з відстанню між КТ і НЧ, розраховується згідно з моделлю [29].

На рис. 6 зображені розраховані залежності темпу випромінювальної рекомбінації γ_r^{QD+NP} і темпів безвипромінювальних втрат γ_{nr}^{QD+NP} і $\gamma_{nr, FRET}^{QD+NP}$ від відстані $h = D - R_1 - R_2$ між поверхнями КТ CdTe і срібної або золотої НЧ (D – відстань між центрами НЧ і КТ) у випадку КТ діаметром 2,5 і 3,5 нм, НЧ діаметром 70 нм, квантового виходу ізольованої КТ $\eta_{QD} = 10\%$ і $T = 300 \text{ K}$. Відсутність на цьому рисунку залежності темпу безвипромінювальних втрат $\gamma_{nr, FRET}^{QD+NP}$ у випадку срі-

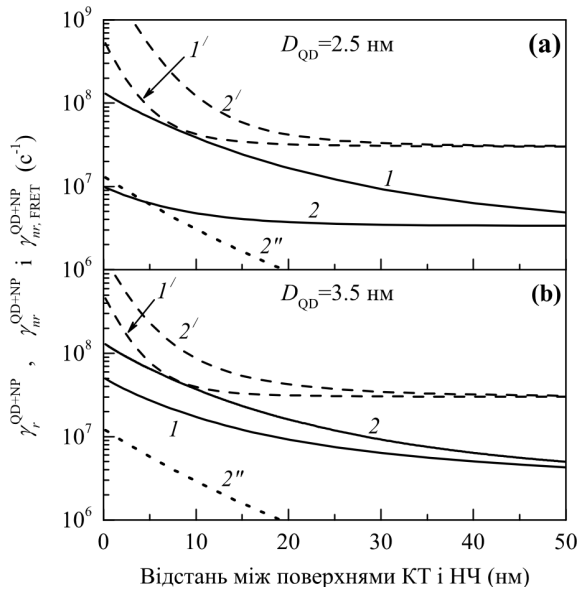


Рис. 6. Залежності темпу випромінювальної рекомбінації γ_{nr}^{QD+NP} (1, 2) і темпів безвипромінювальних втрат γ_{nr}^{QD+NP} ($1'$, $2'$) і $\gamma_{nr, FRET}^{QD+NP}$ ($2''$) від відстані між поверхнями КТ CdTe діаметром 3 нм (а) і 3,5 нм (б) та срібної (1, 1') або золотої (2, 2', 2'') НЧ діаметром 70 нм. Параметри розрахунку: $\gamma_{nr}^{QD} = 3 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$, $\eta_{QD} = 10\%$, $T = 300 \text{ K}$

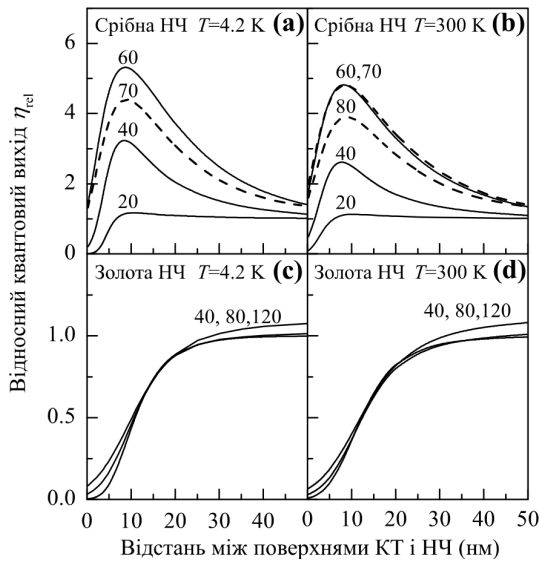


Рис. 7. Відносний квантовий вихід випромінювання наносистеми “напівпровідникова КТ + металева НЧ” як функція відстані між поверхнями КТ і НЧ для випадку КТ діаметром 2 нм. Діаметри НЧ в нм вказані безпосередньо на рисунку біля відповідних кривих. Срібна НЧ, T (К): 4,2 (а), 300 (б). Золота НЧ, T (К): 4,2 (с), 300 (д)

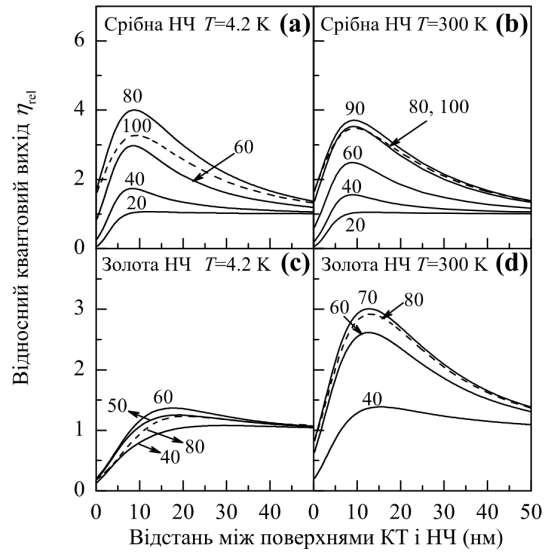


Рис. 8. Те саме, що і на рис. 7 для випадку КТ діаметром 3 нм

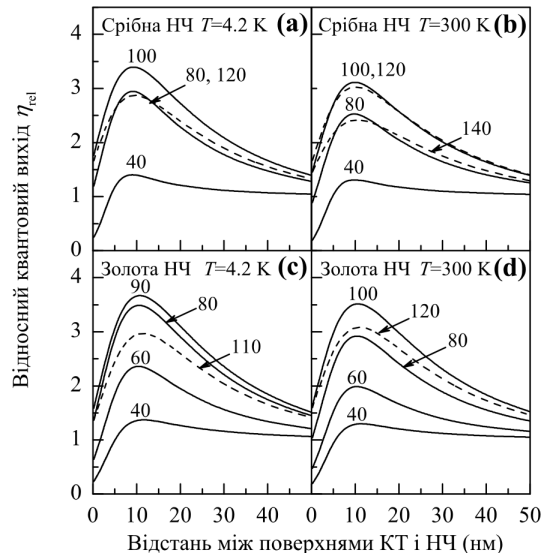


Рис. 9. Те саме, що і на рис. 7 для випадку КТ діаметром 3,5 нм

бної НЧ зумовлена малими значеннями $\gamma_{nr, FRET}^{QD+NP} < 3 \cdot 10^6 \text{ c}^{-1}$.

На рис. 7–10 зображені залежності відносного квантового виходу випромінювання $\eta_{rel} = \eta_{QD+NP} / \eta_{QD}$ від відстані між поверхнями КТ і НЧ у випадку срібних і золотих НЧ при температурах 4,2 і 300 К для різних наборів розмірів КТ і НЧ при значенні квантового виходу випромінюва-

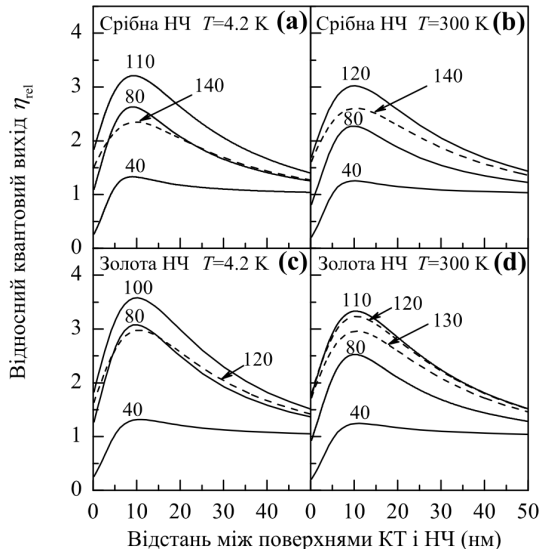


Рис. 10. Те саме, що і на рис. 7 для випадку КТ діаметром 5 нм

ння ізолюваної КТ $\eta_{\text{QD}} = 10\%$. Суттєве збільшення квантового виходу випромінювання у випадку золотих НЧ при розмірах КТ $D_{\text{QD}} = 2R_2 \gtrsim 3,5$ нм пов'язано з тим, що при таких розмірах КТ енергії екситонних переходів (див. рис. 2) попадають в область енергій інтерфейсних плазмонів золотої НЧ (див. рис. 4), внаслідок чого виникає резонансна екситон-плазмонна взаємодія.

Аналогічні залежності відносного квантового виходу випромінювання від відстані між поверхнями НЧ і КТ у випадку квантового виходу ізолюваної КТ $\eta_{\text{QD}} = 50\%$ мають максимуми на рівні 1,3–1,5 при більших відстанях між КТ і НЧ (16 нм у випадку срібної НЧ і 20–25 нм у випадку золотої НЧ).

10. Висновки

Побудована модель екситонного випромінювання неферичної наносистеми “випромінююча сферична напівпровідникова КТ + сферична металева НЧ” для випадку напівпровідника кубічної модифікації з чотирикратно виродженою валентною зоною Γ_8 . Враховане багатократне розсіювання між КТ і НЧ електромагнітного поля, що випромінюють темні і яскраві екситони КТ. Розраховані потужність і темп випромінювальної рекомбінації, а також інтенсивність поглинання і темп безвипромінювальних втрат енергії в такій системі, що дає

змогу визначити квантовий вихід випромінювання в залежності від відстані між НЧ і КТ, розмірів НЧ і КТ, температури та інших параметрів. Показано, що на відміну від електромагнітного поля випромінюючого точкового диполя в околі металевої НЧ, яке містить нескінченну кількість мультипольних складових, електромагнітне поле, що випромінює КТ, має тільки дипольні і октупольні складові електричного типу і квадрупольні складові магнітного типу. В результаті, поглинання енергії ЕМ поля інтерфейсними плазмонами металевої НЧ у випадку наносистеми КТ + НЧ є суттєво меншим, ніж у випадку точкового диполя в околі НЧ, коли мультипольні складові вищих порядків дають основний внесок у поглинання при малих відстанях між точковим диполем і металевою НЧ [30–32]. Як наслідок, квантовий вихід випромінювання КТ в околі металевої НЧ є більшим, ніж квантовий вихід випромінювання уявного точкового диполя, розташованого на тій самій відстані від поверхні металевої НЧ, що і центр КТ, і параметри випромінювання якого (включно з частотою) є такими, як і параметри відповідної КТ.

Автори висловлюють щире подяку в.о. директора ІФН ім. В.Є. Лашкарьова НАН України, члену-кореспонденту НАН України О.Є. Беляєву за підтримку і обговорення результатів даної роботи.

Робота виконана в рамках цільової комплексної програми фундаментальних досліджень НАН України “Фундаментальні проблеми наноструктурних систем, наноматеріалів, нанотехнологій” на 2010–2014 рр. (тема № 52/7/47).

ДОДАТОК 1

$$C_{2,0} = -\sqrt{3/8} \exp(-2i\varphi_e) \sin^2 \theta_e, \quad C_{-2,0} = C_{2,0}^*, \quad (\text{Д1.1})$$

$$C_{2,\pm 1} = \mp i \exp(-2i\varphi_e \mp i\Psi_e) \sin \theta_e \frac{1 \pm \cos \theta_e}{2}, \quad (\text{Д1.2})$$

$$C_{-2,\pm 1} = -C_{2,\mp 1}^*,$$

$$C_{2,\pm 2} = \exp(-2i\varphi_e \mp 2i\Psi_e) (1 \pm \cos \theta_e)^2 / 4, \quad (\text{Д1.3})$$

$$C_{-2,\pm 2} = C_{2,\mp 2}^*,$$

$$C_{1,0} = -i\sqrt{3/2} \exp(-i\varphi_e) \sin \theta_e \cos \theta_e,$$

$$C_{-1,0} = -C_{1,0}^*, \quad (\text{Д1.4})$$

$$C_{1,\pm 1} = \exp(-i\varphi_e \mp i\Psi_e) (1 \pm \cos \theta_e) \times$$

$$\times (\pm \cos \theta_e - 1/2), \quad C_{-1,\pm 1} = C_{1,\mp 1}^*, \quad (\text{Д1.5})$$

$$C_{1,\pm 2} = \mp i \exp(-i\varphi_e \mp 2i\Psi_e) \sin \theta_e \times$$

$$\times (1 \pm \cos \theta_e) / 2, \quad C_{-1,\pm 2} = -C_{1,\mp 2}^*, \quad (\text{Д1.6})$$

$$C_{0,0} = (3 \cos^2 \theta_e - 1)/2, \quad (\text{Д1.7})$$

$$C_{0,\pm 1} = -i\sqrt{3/2} \exp(\mp i\Psi_e) \sin \theta_e \cos \theta_e, \quad (\text{Д1.8})$$

$$C_{0,\pm 2} = -\sqrt{3/8} \exp(\mp 2i\Psi_e) \sin^2 \theta_e. \quad (\text{Д1.9})$$

$$\times \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(3) \left[V_{M,23}^{\text{QD}}(2)\right]^* \left[(1 - 63i) C_{l,k+3,2}^{(1)} + \sqrt{10}(-13 - 45i) C_{l,k+3,2}^{(2)} \theta(l-2)\right]\right) \quad (\text{Д3.1})$$

ДОДАТОК 2

$$\begin{aligned} \langle \bar{P}_{\text{QD+NP}}^{(1)} \rangle_{\Psi_e, \theta_e, \varphi_e} &= \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{108} \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_3}\right)^{3/2} \sum_{l=1}^k \left\{ \sqrt{\varepsilon_2} \times \right. \\ &\times |V_{E,23}^{\text{QD}}(1)|^2 I_0^2 \left[B_{l,k+1}^{(0)} \left(10 - 2\frac{I_2}{I_0} + \frac{13}{8} \frac{I_2^2}{I_0^2}\right) + \right. \\ &+ B_{l,k+1}^{(1)} \left(14 - 6\frac{I_2}{I_0} + \frac{39}{8} \frac{I_2^2}{I_0^2}\right) \left. \right] + \\ &+ \sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(3)|^2 \frac{I_2^2}{56} \left[234 B_{l,k+3}^{(0)} + 597 B_{l,k+3}^{(1)} + \right. \\ &+ 390 B_{l,k+3}^{(2)} \theta(l-2) + 315 B_{l,k+3}^{(3)} \theta(l-3) \left. \right] + \\ &+ \frac{|V_{M,23}^{\text{QD}}(2)|^2}{\sqrt{\varepsilon_2}} \frac{147}{250} I_2^2 \left[12 B_{l,2}^{(0)} + 19 B_{l,2}^{(1)} + 13 B_{l,2}^{(2)} \theta(l-2) \right] + \\ &+ \sqrt{\varepsilon_2} \sqrt{3/7} I_0 I_2 \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(1) \left[V_{E,23}^{\text{QD}}(3)\right]^* (1+i) \tilde{I} \times \right. \\ &\times \left. \left[\sqrt{\frac{3}{2}} C_{l,k+1,k+3}^{(0)} + \frac{13}{2} C_{l,k+1,k+3}^{(1)} \right] \right) + \\ &+ \frac{42}{5\sqrt{15}} I_0 I_2 \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(1) \left[V_{M,23}^{\text{QD}}(2)\right]^* (2-i) \tilde{I} C_{l,k+1,2}^{(1)}\right) + \\ &+ \frac{21}{20\sqrt{14}} I_2^2 \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(3) \left[V_{M,23}^{\text{QD}}(2)\right]^* (1-3i) \times \right. \\ &\times \left. \left[\frac{11}{\sqrt{10}} C_{l,k+3,2}^{(1)} + C_{l,k+3,2}^{(2)} \theta(l-2) \right] \right) \left. \right\}, \quad (\text{Д2.1}) \end{aligned}$$

де

$$\tilde{I} = 1 - \frac{I_2}{I_0} \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{4}i\right). \quad (\text{Д2.2})$$

ДОДАТОК 3

$$\begin{aligned} \langle \bar{P}_{\text{QD+NP}}^{(2)} \rangle_{\Psi_e, \theta_e, \varphi_e} &= \frac{\omega |p|^2 k_0^3}{450} \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_3}\right)^{3/2} I_2^2 \times \\ &\times \sum_{l=1}^k \left\{ \sqrt{\varepsilon_2} |V_{E,23}^{\text{QD}}(1)|^2 \frac{3}{2} \left[B_{l,k+1}^{(0)} + 3 B_{l,k+1}^{(1)} \right] + \right. \\ &+ \sqrt{\varepsilon_2} \frac{|V_{E,23}^{\text{QD}}(3)|^2}{56} \left[138 B_{l,k+3}^{(0)} + 329 B_{l,k+3}^{(1)} + \right. \\ &+ 326 B_{l,k+3}^{(2)} \theta(l-2) + 231 B_{l,k+3}^{(3)} \theta(l-3) \left. \right] + \\ &+ \frac{|V_{M,23}^{\text{QD}}(2)|^2}{\sqrt{\varepsilon_2}} \frac{49}{200} \left[75 B_{l,2}^{(0)} + 112 B_{l,2}^{(1)} + \right. \\ &+ 133 B_{l,2}^{(2)} \theta(l-2) \left. \right] - \sqrt{\varepsilon_2} \sqrt{\frac{3}{112}} \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(1) \times \right. \\ &\times \left. \left[V_{E,23}^{\text{QD}}(3) \right]^* (1+i) \left[\sqrt{6} C_{l,k+1,k+3}^{(0)} + \right. \right. \\ &+ 13 C_{l,k+1,k+3}^{(1)} \left. \right] \left. \right) - \sqrt{\frac{147}{125}} \operatorname{Re}\left(V_{E,23}^{\text{QD}}(1) \times \right. \\ &\times \left. \left[V_{M,23}^{\text{QD}}(2) \right]^* (2-i) C_{l,k+1,2}^{(1)} \right) + \frac{1}{20} \sqrt{\frac{7}{5}} \times \end{aligned}$$

1. N.C. Bigall, W.J. Parak, and D. Dorfs, *Nano Today* **7**, 282 (2012).
2. R. Jiang, B. Li, C. Fang, and J. Wang, *Adv. Mater.* **26**, 5274 (2014).
3. Yu.V. Kryuchenko and D.V. Korbutyak, *Semicond. Phys. Quant. Electr. Optoelectr.* **16**, 227 (2013).
4. Al.L. Efros, M. Rosen, M. Kuno, M. Nirmal, D.J. Norris, and M. Bawendi, *Phys. Rev. B* **54**, 4843 (1996).
5. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Квантовая механика* (Физматлит, Москва, 1963).
6. Р. Нокс, *Теория экситонов* (Наука, Москва, 1966).
7. S. Flügge, *Practical Quantum Mechanics* (Springer, Berlin, 1971), Vol. 1.
8. O. Madelung, *Semiconductors: Data Handbook*, 3-rd edition (Springer, Berlin, 2004).
9. Дж. Джексон, *Классическая электродинамика* (Мир, Москва, 1965).
10. Г. Бейтмен, А. Эрдейи, *Таблицы интегральных преобразований* (Наука, Москва, 1970), Том 2.
11. J.H. Blokland, V.I. Claesse, F.J.P. Wijnen *et al.*, *Phys. Rev. B* **83**, 035304 (2011).
12. P. Yang and N. Murase, *J. Phys.: Conf. Ser.* **152**, 012009 (2009).
13. L. Jing, L. Yang, R. Qiao, M. Niu, M. Du, D. Wang, and M. Gao, *Chem. Mater.* **22**, 420 (2010).
14. P. Reineck, D. Gomez, S.H. Ng, M. Karg, T. Bell, P. Mulvaney, and U. Bach, *ACS Nano* **7**, 6636 (2013).
15. L. Tang, J. Xu, P. Guo, X. Zhuang, Y. Tian, Y. Wang, H. Duan, and A. Pan, *Opt. Express* **21**, 11095 (2013).
16. D. Van, J. Xue, R. Fang, S. Xu, E. Lu, and P. Xu, *J. Vac. Sci. Technol. B* **16**, 989 (1998).
17. И.М. Купчак, Д.В. Корбутяк, Ю.В. Крюченко, А.В. Саченко, И.О. Соколовский, О.М. Сресели, *ФТП* **40**(1), 98 (2006).
18. Z.A. Weinberg, *J. Appl. Phys* **53**, 5052 (1982).
19. C. Wood and D. Jena, *Polarization Effects in Semiconductors: From Ab Initio Theory to Device Applications* (Springer, Berlin, 2008).
20. W.W. Yu, L. Qu, W. Guo, and X. Peng, *Chem. Mater.* **15**, 2854 (2003).
21. В.В. Климов, *Наноплазмоника* (Наука/Интерпериодика, Москва, 2012).
22. В.В. Дацюк, *УФЖ* **56**(2), 122 (2011).
23. P.G. Etchegoin, E.C. Le Ru, and M. Meyer, *J. Chem. Phys.* **125**, 164705 (2006).
24. C. Sönnichsen, *Ph.D. thesis* (Ludwig Maximilian University of Munich, Munich, 2001).
25. P.B. Johnson and R.W. Christy, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972).
26. W.J. Tropf, M.E. Thomas, and T.J. Harris, in *Handbook of Optics*, edited by M.Bass, 2nd edition (McGraw-Hill, New York, 1995), Ch. 33.

27. S. Emin, A. Loukanov, M. Wakasa, S. Nakabayashi, and Y. Kaneko, *Chem. Lett.* **39**, 654 (2010).
28. S.J. Byrne, S.A. Corr, T.Y. Rakovich *et al.*, *J. Mater. Chem.* **16**, 2896 (2006).
29. A.O. Govorov, G.W. Bryant, W. Zhang, T. Skeini, J. Lee, N.A. Kotov, J.M. Slocik, and R.R. Naik, *Nano Lett.* **6**, 984 (2006).
30. R. Ruppin, *J. Chem. Phys.* **76**, 1681 (1982).
31. H. Mertens, A.F. Koenderink, and A. Polman, *Phys. Rev. B* **76**, 115123 (2007).
32. G. Sun and J.B. Khurgin, *IEEE J. Select. Topics Quant. Electr.* **17**, 110 (2011).

Одержано 02.12.14

Ю.В. Крюченко, Д.В. Корбутяк

ЭКСИТОННОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ
ГИБРИДНОЙ НАНОСИСТЕМЫ
“СФЕРИЧЕСКАЯ ПОЛУПРОВОДНИКОВАЯ
КВАНТОВАЯ ТОЧКА + СФЕРИЧЕСКАЯ
МЕТАЛЛИЧЕСКАЯ НАНОЧАСТИЦА”

Резюме

Исследован случай сферической квантовой точки (КТ) прямозонного полупроводника кубической модификации с четырехкратно вырожденной валентной зоной Γ_8 в окрестности сферической металлической наночастицы (НЧ). Экситонное излучение КТ рассматривается как формируемое суммой вкладов излучающих точечных (узельных) диполей внутри КТ. Описание несферической в целом наносистемы базируется на использовании трех сферических систем координат и установлении связи между коэффициентами мультипольного разложения электромагнитных (ЭМ) полей в этих системах координат. Полярные оси первой и второй систем с центрами в КТ и НЧ направлены вдоль линии, соединяющей эти центры. Ориентация третьей системы координат с центром в КТ определяется ориентацией кристаллической решетки в КТ. Показано, что в отличие от скалярного потенциала электрического поля, который индуцируется экситонным состоянием в КТ и имеет вид потенциала точечного диполя, ЭМ поле экситонного излучения КТ не может быть представлено в виде ЭМ поля излучения точечного диполя, поскольку содержит только ди-

польные, квадрупольные и октупольные компоненты. Учтено многократное рассеивание между НЧ и КТ электромагнитного поля, излучаемого КТ. Рассчитаны зависимости квантового выхода экситонного излучения от расстояния между поверхностями КТ и НЧ при разных размерах КТ и НЧ и температурах 4,2 и 300 К в случае КТ CdTe и серебряных или золотых НЧ.

Yu.V. Kryuchenko, D.V. Korbutyak

EXCITONIC EMISSION OF HYBRID
NANOSYSTEM “SPHERICAL SEMICONDUCTOR
QUANTUM DOT + SPHERICAL
METAL NANOPARTICLE”

Summary

The hybrid nanosystem composed of a spherical metal nanoparticle (NP) and a spherical semiconductor quantum dot (QD) of a direct-band semiconductor with a cubic lattice structure and a fourfold degenerate valence band Γ_8 has been studied. The excitonic emission of the system is considered as a sum of contributions from point dipoles located at the QD lattice sites. The description of the QD + NP nanosystem, nonspherical as a whole, is based on using three spherical coordinate systems and finding the relations between the coefficients of multipole expansions of electromagnetic (EM) fields in those systems. The origins of two of them are fixed at the centers of NP and QD, and their polar axes are directed along the line connecting the centers. The orientation of the third coordinate system with the origin in the QD is determined by the orientation of the QD crystal lattice. It is shown that, unlike the electric scalar potential, which is induced by the exciton state in the QD and looks like a point-dipole potential, the EM field of the QD excitonic emission cannot be represented as that of a point dipole emission, because it contains only dipole, quadrupole, and octupole components. The multiple scattering, between the NP and the QD, of the EM field emitted by the QD is taken into account. The dependences of the excitonic emission efficiency on the separation distance between the QD and the NP surfaces are calculated in a particular case of the CdTe QD and a silver or gold NP for various QD and NP sizes and temperatures.