12

Плазмон-экситонное рассеяние света наночастицей, находящейся вблизи квантовой ямы

© В.А. Кособукин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Vladimir.Kosobukin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 10 декабря 2014 г.)

Представлено решение задачи о резонансном упругом рассеянии поляризованного света наночастицей и квантовой ямой, находящимися вблизи поверхности полупроводника. Учитывается взаимодействие поверхностных плазмонов металлической частицы с квазидвумерными экситонами квантовой ямы. Задача решается методом функций Грина электродинамики при учете резонансного поляризационного отклика частицы и квантовой ямы в самосогласованном приближении. Эффективная поляризуемость металлической наночастицы, имеющей форму эллипсоида, найдена с учетом динамического эффекта зарядов „изображения“, обусловленного поверхностью полупроводника и квантовой ямой. Численный расчет спектральных характеристик проведен для модельной структуры „металл-полупроводник“, включающей наночастицу серебра и квантовую яму GaAs/AlGaAs. Проявление экситон-плазмонного взаимодействия в резонансном рассеянии света интерпретируется как усиление поверхностными плазмонами оптического отклика квазидвумерных экситонов ямы.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 14-02-01123).

1. Введение

Экситоны и плазмоны представляют собой два типа коллективных электронных возбуждений в конденсированной среде. Низкоразмерные экситоны, изучаемые в оптической спектроскопии полупроводниковых квантовых наноструктур [1], весьма перспективны для многих практических приложений. Поверхностные плазмоны в металлических частицах и их агрегатах тоже возбуждаются в оптическом диапазоне и широко используются в качестве наноконцентраторов световой энергии и оптических сенсоров [2]. Роль плазмонов при резонансном взаимодействии с экситонами может быть двоякой: они могут гасить экситонное излучение или усиливать его в зависимости от характера взаимодействия.

Проявление плазмонов в спектроскопии молекулярных экситонов изучается давно, был поставлен также вопрос о гашении когерентных экситонов при возбуждении плазмонов в металле [3]. В последние годы значительный интерес связан с созданием разнообразных наноструктур „металл-полупроводник“ и изучением в них оптических явлений, обусловленных взаимодействием экситонов большого радиуса с плазмонами [4]. Было показано, что в отсутствие электронного переноса поляризационное взаимодействие экситонов и плазмонов существенно ускоряет спонтанное излучение экситонов [5,6], может приводить к образованию связанных состояний [7–9], к концентрации электромагнитной энергии на нанометровом масштабе и электромагнитному энергопереносу в наноструктурах [10] и т.д. В теории преимущественно рассматривают взаимодействие плазмонов наночастиц с нуль-мерными экситонами квантовых точек [6–8]. Наблюдение плазмонов металлических включений ниже края фундаментального поглощения объемного полупроводника, например [11], делает актуальным анализ оптических процессов, связанных с взаимодействием экситонов и плазмонов разной симметрии.

В данной работе изучается резонансное взаимодействие поверхностных плазмонов металлической наночастицы с квазидвумерными экситонами полупроводниковой квантовой ямы. Для наноструктуры „металл-полупроводник“ этого типа построена теория упругого (рэлеевского) рассеяния света. Коллективный оптический отклик дипольных поверхностных плазмонов наночастицы и квазидвумерных экситонов квантовой ямы вычисляется самосогласованно методом электродинамических функций Грина. Содержание статьи заключается в следующем. В разд. 2 обсуждается модель и общее решение задачи, в разд. 3 вычислены наблюдаемые оптические величины, результаты обсуждаются в разд. 4.

2. Модель и основные уравнения

Рассматриваемая модель включает границу раздела $z = 0$ (рис. 1) между прозрачным диэлектриком ($z < 0$) и полупроводником ($z > 0$) с квантовой ямой, которая обладает квазидвумерными экситонами. Эту модель, изотропную и трансляционно-инвариантную при $z = \text{const}$, считаем невозмущенной. Возмущением служит малая резонансно поляризующаяся неоднородность, которая далее рассматривается как частица, обладающая поверхностными плазмонами. Характерные размеры частицы и ее удаление от поверхности $z = 0$ и квантовой ямы малы по сравнению с длиной волны $2\pi/k_0$, где $k_0 = \omega/c$, ω — частота, c — скорость света. В неоднородной среде

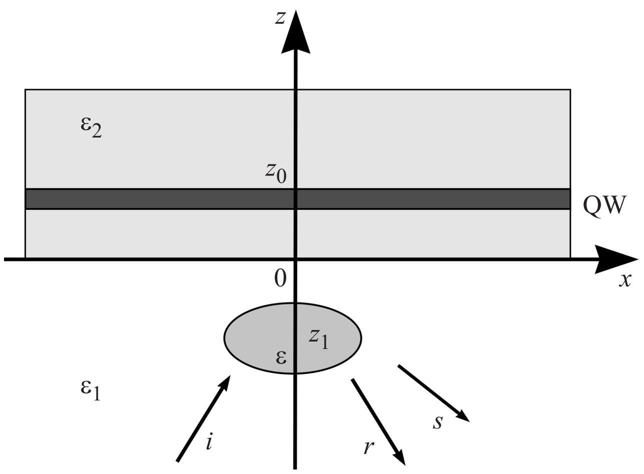

Рис. 1. Геометрия задачи. Символы i, r и s отмечают падающую, отраженную и рассеянную волны.

такая наночастица вместе с динамическими зарядами ее „изображения“ выступает как рассеиватель для света и как источник ближнего поля, обеспечивающий плазмон-экситонное взаимодействие.

Амплитуды в выражениях вида $F(z;\kappa)\exp(i\kappa x)$ для электрического поля $\mathbf{E}(z;\kappa)$ и тензорной функции Грина $\hat{g}(z,z';\kappa)$ в невозмущенной модели определяются уравнениями

$$\sum_{\mu}\left[\sum_{\nu}\mathrm{rot}_{\alpha\nu}\mathrm{rot}_{\nu\mu}\begin{pmatrix}E_\mu(z)\\ g_{\mu\beta}(z,z')\end{pmatrix} - \delta_{\alpha\mu}k_0^2\int dz''\varepsilon(z,z'')\begin{pmatrix}E_\mu(z'')\\ g_{\mu\beta}(z'',z')\end{pmatrix}\right] = 4\pi k_0^2\begin{pmatrix}0\\ \delta_{\alpha\beta}\delta(z-z')\end{pmatrix}. \qquad \begin{matrix}(1)\\(2)\end{matrix}$$

Здесь $\mathrm{rot}_{\alpha\beta}=\sum\limits_{\gamma}e_{\alpha\gamma\beta}(\partial/\partial r_\gamma)$, $e_{\alpha\gamma\beta}$ — компоненты единичного антисимметричного псевдотензора, $\delta_{\alpha\beta}$ — символ Кронекера, $\mathbf{r}=(z,\boldsymbol{\rho})$, $\boldsymbol{\rho}=(x,y)$, $(\partial/\partial\mathbf{r})=(i\kappa,0,d/dz)$. В левую часть уравнений (1) и (2) входит диэлектрическая проницаемость

$$\varepsilon(z,z')=\varepsilon^0(z)\delta(z-z')+\delta\varepsilon(z,z'), \qquad (3)$$

где $\varepsilon^0(z)$ равна ε_1 при $z<0$ и ε_2 при $z>0$ (рис. 1). Нелокальный вклад $\delta\varepsilon(z,z')=4\pi T_0\psi(z-z_0)\psi(z'-z_0)$ соответствует экситонной поляризации [1,12–14]

$$P^{\mathrm{I}}_\alpha(z;\kappa)=T_0(\omega)\psi(z-z_0)\int\psi(z'-z_0)E_\alpha(z';\kappa)dz' \qquad (4)$$

квантовой ямы, центрированной в плоскости $z=z_0>0$. Для размерно-квантованного экситона четная функция $\psi(z)=\psi(-z)$, скажем вида $\psi(z)=\sqrt{2/l}\cos(\pi z/l)$, не равна нулю при $|z|<l/2$ на ширине квантовой ямы $l\ll k_0^{-1}$. Для квазидвумерного экситона в полупроводнике с простыми зонами

$$T_0(\omega)=\frac{\Gamma_R}{\omega_0-\omega-i\Gamma}, \qquad (5)$$

где ω_0 — частота экситона, Γ и Γ_R — параметры его диссипативного и излучательного затухания [12–14]. Поля $\mathbf{E}(z,\kappa)$ и $\hat{g}(z,z';\kappa)$, найденные из уравнений (1) и (2), удовлетворяют максвелловским граничным условиям по координате z на поверхности $z=0$ и на узкой квантовой яме.

Возмущение, обусловленное дипольными поверхностными плазмонами наночастицы, описываем анизотропной поляризацией [15,16]

$$P^{\mathrm{II}}_\alpha(\mathbf{r})=\chi^{(\alpha)}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_1)E_\alpha(\mathbf{r}_1), \qquad (6)$$

где $\mathbf{E}(z,\boldsymbol{\rho})$ — фурье-образ решения $\mathbf{E}(z,\boldsymbol{\kappa})$ уравнения (1) по $\boldsymbol{\kappa}=\kappa(\mathbf{e}_x\cos\varphi+\mathbf{e}_y\sin\varphi)$, $\mathbf{r}_1=(z_1,0)$ — радиус-вектор центра частицы, $z_1<0$ (рис. 1). Компоненты $\chi^{(\alpha)}(\omega)$ диагонального тензора эффективной поляризуемости $\hat{\chi}$ комплекса „частица+изображение“ вычисляются далее. Наличие дельта-функции в выражении (6) предполагает, что $\mathbf{P}^{\mathrm{II}}$ представляет дипольный отклик малой частицы на квазиоднородное поле $\mathbf{E}(\mathbf{r})$.

Задачу резонансного рассеяния света частицей, расположенной вблизи квантовой ямы решаем как в теории, развитой в работе [16]. Поле рассеянных волн выражается формулой

$$E'_\alpha(\mathbf{r})=\sum_\beta G_{\alpha\beta}(\mathbf{r},\mathbf{r}_1)\chi^{(\beta)}E_\beta(\mathbf{r}_1). \qquad (7)$$

Здесь поля $\mathbf{E}(z,\boldsymbol{\rho})$ и $\hat{G}(z,z',\boldsymbol{\rho}-\boldsymbol{\rho}')$ представляются интегралами Фурье по $\boldsymbol{\kappa}$ решений $\mathbf{E}(z;\boldsymbol{\kappa})$ и $\hat{g}(z,z';\boldsymbol{\kappa})$ уравнений (1) и (2). Так, для компонент функции Грина $G_{\alpha\beta}(\mathbf{r},\mathbf{r}')$ имеем [15–17]

$$G_{\alpha\beta}(z,z',\boldsymbol{\rho}-\boldsymbol{\rho}') = \int\frac{d^2\kappa}{(2\pi)^2}e^{i\boldsymbol{\kappa}\cdot(\boldsymbol{\rho}-\boldsymbol{\rho}')}\sum_{\mu,\nu}S_{\alpha\mu}(\varphi)g_{\mu\nu}(z,z';\kappa)S_{\beta\nu}(\varphi), \qquad (8)$$

где $S_{xx}=S_{yy}=\kappa_x/\kappa=\cos\varphi$, $-S_{xy}=S_{yx}=\kappa_y/\kappa=\sin\varphi$, $S_{zz}=1$. Выражение (8) учитывает трансляционную инвариантность и изотропию невозмущенной задачи при $z=\mathrm{const}$.

Вычислим компоненты поляризуемости $\chi^{(\alpha)}$, входящие в выражения (6) и (7), предполагая, что наночастица имеет форму эллипсоида, а ее материал обладает диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega)$. В однородной среде с проницаемостью ε_1 компоненты поляризуемости вдоль главных осей изолированной частицы равны [18]

$$\chi_0^{(\alpha)}=\frac{v}{4\pi}\,\frac{\varepsilon-\varepsilon_1}{(\varepsilon-\varepsilon_1)N^{(\alpha)}+\varepsilon_1}, \qquad (9)$$

где $v=4\pi a_x a_y a_z/3$ — объем эллипсоида с длинами полуосей a_x и a_y в плоскости квантовой ямы и a_z по нормали к ней. Коэффициенты деполяризации $N^{(\alpha)}$, удовлетворяющие условиям $0<N^{(\alpha)}<1$ и $N^{(x)}+N^{(y)}+N^{(z)}=1$, зависят от соотношения между длинами полуосей a_α. Из (9) следует, что при наличии частотной дисперсии $\varepsilon(\omega)$ частота ω_α дипольного резонанса, поляризованного вдоль α-й полуоси эллипсоида, определяется уравнением $\mathrm{Re}\,\varepsilon(\omega)N^{(\alpha)} + \varepsilon_1(1 - N^{(\alpha)}) = 0$. В случае электронного газа металла $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \omega_p^2/(\omega^2 + i\omega\gamma)$, где ω_p — частота плазменных колебаний, $1/\gamma$ — время релаксации электронов. При этом частота соответствующего дипольного поверхностного плазмона наночастицы выражается формулой

$$\omega_\alpha^2 = \omega_p^2 N^{(\alpha)}/\varepsilon_*^{(\alpha)}, \tag{10}$$

где $\varepsilon_*^{(\alpha)} = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_1)N^{(\alpha)} + \varepsilon_1$. Вблизи резонанса (10) поляризуемость (9) можно представить в виде

$$\chi_0^{(\alpha)} = \frac{\nu}{4\pi}\,\frac{\Omega_\alpha^2}{\omega_\alpha^2 - \omega^2 - i\omega\gamma}, \tag{11}$$

где $\Omega_\alpha = \sqrt{\varepsilon_1}\,\omega_p/\varepsilon_*^{(\alpha)}$.

В многослойной диэлектрической среде эффективная плазмонная поляризуемость $\chi^{(\alpha)}$ наночастицы в выражениях (6) и (7) определяется из уравнения [16]

$$\chi^{(\alpha)}(\omega) = \chi_0^{(\alpha)}\big(1 + \Delta G_{\alpha\alpha}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)\chi^{(\alpha)}\big) \tag{12}$$

через поляризуемость изолированной частицы (9). Здесь $\Delta G_{\alpha\alpha}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ — вклад в функцию Грина (8), который выражается общим решением уравнения (2) с постоянными интегрирования, найденными из граничных условий. Компоненты $\Delta G_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)$ описывают динамический эффект зарядов „изображения“, которые зависят от положения частицы. Таким образом, тензор эффективной поляризуемости $\hat{\chi}$ описывает симметрию и резонансные свойства наночастицы в многослойной среде с квантовой ямой.

При учете (8) уравнение (12) дает

$$\chi^{(\alpha)} = \big(1/\chi_0^\alpha - \sigma^{(\alpha)}\big)^{-1}, \tag{13}$$

$$\sigma^{(\alpha)} = (\delta_{\alpha x} + \delta_{\alpha y})\int_0^\infty \frac{\kappa d\kappa}{4\pi}\,\big[\Delta g_{xx}(z_1, z_1; \kappa) + \Delta g_{yy}(z_1, z_1; \kappa)\big]. \tag{14}$$

Компоненты (13) эффективной плазмонной поляризуемости наночастицы в нашем случае (рис. 1) учитывают влияние экситонов квантовой ямы и поляризации поверхности полупроводника при наличии электромагнитного запаздывания.

Функции $\Delta g_{\alpha\alpha}$ соответствуют учету вторых слагаемых в формулах (A.1) и (A.2), приведенных в Приложении, при этом из (14) получаем

$$\sigma^{(x)} = \sigma^{(y)}$$

$$= -\frac{1}{2\varepsilon_1}\int_0^\infty \frac{\kappa d\kappa}{\sqrt{\kappa^2 - \varepsilon_1 k_0^2}}\,\big[\kappa^2 r^p(\kappa) - \varepsilon_1 k_0^2\big(r^p(\kappa) + r^s(\kappa)\big)\big]$$

$$\times \exp\Big(-2\sqrt{\kappa^2 - \varepsilon_1 k_0^2}\,|z_1|\Big). \tag{15}$$

Здесь коэффициенты отражения r^p и r^s волн с поляризациями p и s имеют вид

$$r^\lambda(\kappa) = \frac{\rho_{12}^\lambda + \rho_{QW}^\lambda e^{2ik_2z_0}}{1 + \rho_{12}^\lambda \rho_{QW}^\lambda e^{2ik_2z_0}}, \tag{16}$$

где $\lambda = p$ или s. В (16) ρ_{12}^λ и ρ_{QW}^λ обозначают коэффициенты отражения света с поляризацией λ от границы раздела сред $\varepsilon_1|\varepsilon_2$ и от изолированной квантовой ямы соответветственно.

3. Наблюдаемые величины

Вычислим теперь спектры отражения и рассеяния света в геометрии рис. 1. Считаем, что из прозрачной среды с проницаемостью ε_1 на поверхность $z = 0$ полупроводника с фоновой проницаемостью $\varepsilon_2 = \varepsilon_b$ под углом θ падает волна $\mathbf{E}^i(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^i(z;\kappa)\exp(i\kappa x)$ с тангенциальной компонентой волнового вектора $\boldsymbol{\kappa} = \mathbf{e}_x\sqrt{\varepsilon_1}k_0\sin\theta$ и линейной поляризацией s вдоль орта $\mathbf{e}_y$; при этом

$$\mathbf{E}^i(z;\kappa) = \mathbf{e}_y \overline{E}_s^i e^{ik_1(\kappa)z}. \tag{17}$$

Нормальная составляющая $k_1(\kappa)$ волнового вектора выражается формулой

$$k_m(\kappa) = \sqrt{\varepsilon_m k_0^2 - \kappa^2} \tag{18}$$

с $m = 1$. При этих условиях уравнения (1) и (2) с учетом поляризации (3)–(5) квантовой ямы решаются для невозмущенной задачи в рамках нелокальной теории [13,14]. Обсудим результаты.

3.1. Отражение света. При наличии падающей волны (17) уравнение (1) дает

$$\mathbf{E}(z;\kappa) = \mathbf{e}_y \overline{E}_s^i\big(e^{ik_1(\kappa)z} + r^s(\kappa)e^{-ik_1(\kappa)z}\big) \tag{19}$$

при $z < 0$. Уходящая волна определяется коэффициентом отражения света $r^s(\kappa)$ от поверхности полупроводника с квантовой ямой, который дается формулой (16) с $\lambda = s$. В (16) коэффициент отражения света от границы раздела сред $z = 0$ равен

$$\rho_{12}^s(\kappa) = \frac{k_1 - k_2}{k_1 + k_2}, \tag{20}$$

где k_m вычисляются по формуле (18) для сред с $m = 1, 2$. Коэффициент отражения от изолированной квантовой ямы в полупроводнике с проницаемостью $\varepsilon_2 = \varepsilon_b$ имеет вид

$$\rho_{QW}^s = \frac{i\Gamma_R^y}{\omega_0 + \Gamma_R\, u\, I_s - \omega - i\Gamma - i\Gamma_R^y}, \tag{21}$$

где $\Gamma_R^y = \Gamma_R\, u\, I_c^2$, $u = 2\pi k_0^2/k_2$. Интегралы

$$\left.\begin{aligned} I_c &= \int dz\, \exp(ik_2z)\psi(z) = \int dz\, \cos(k_2z)\psi(z),\\ I_0 &= \int dz\, \psi^2(z)\\ I_c^2 + iI_s &= \int dz\, dz'\psi(z)(\cos k_2|z-z'| \\ &\qquad + i\sin k_2|z-z'|)\psi(z') \end{aligned}\right\} \quad (22)$$

учитывают четность функции $\psi(z) = \psi(-z)$ и условие $\mathrm{Im}\, k_2 = 0$.

При возбуждении волной (17) наблюдаемый спектр зеркального отражения

$$R^\lambda(\omega, \kappa) = |r^\lambda(\omega, \kappa)|^2 \quad (23)$$

выражается через коэффициент (16) с $\lambda = s$, включающий (20) и (21). Зависимость коэффициентов отражения (16) и (23) от $|z_0|$ показывает свойства, характерные для резонатора Фабри–Перо, одной из стенок которого является поверхность полупроводника, а другой — квантовая яма. Из резонансного знаменателя выражения (16) с $\lambda = s$ получаем параметр радиационного затухания (обратное время жизни) квазидвумерного экситона

$$\tilde{\Gamma}_R^y(\kappa) = \Gamma_R\, u\, I_c^2\left[1 - \mathrm{Re}\big(\rho_{12}^s(\kappa)e^{2ik_2(\kappa)z_0}\big)\right] \quad (24)$$

и его частоту

$$\tilde{\omega}_0^y(\kappa) = \omega_0 + \Gamma_R\, u\left[I_s - \mathrm{Im}\big(\rho_{12}^s(\kappa)e^{2ik_2(\kappa)z_0}\big)I_c^2\right] \quad (25)$$

с учетом радиационных поправок. Величины (24) и (25) при $\rho_{12}^s \neq 0$ имеют вклады, осциллирующие в зависимости от расстояния $|z_0|$ между квантовой ямой и поверхностью полупроводника.

3.2. Р а с с е я н и е   с в е т а. Рассмотрим резонансное рассеяние s-поляризованной волны (17) частицей, расположенной вблизи квантовой ямы (рис. 1). Следуя теории [16], вычислим интеграл (8) в направлении рассеяния $\mathbf{r} = r\cdot\mathbf{N}$, орт которого

$$\mathbf{N} = (\mathbf{e}_x\cos\varphi' + \mathbf{e}_y\sin\varphi')\sin\theta' - \mathbf{e}_z\cos\theta' \quad (26)$$

записан в сферических координатах. Полярный угол θ' отсчитывается от отрицательного направления оси z (от внешней нормали к поверхности полупроводника на рис. 1). Вычисление интеграла по κ в выражении (8) методом наискорейшего спуска в волновой зоне $qr \gg 1$ [16], где $q = \sqrt{\varepsilon_1}k_0$, дает

$$G_{\alpha y}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) = -\frac{iq\cos\theta'}{2\pi}\frac{e^{iqr}}{r}\Big[\delta_{\alpha x}(\tilde{g}_{xx} - \tilde{g}_{yy})\cdot c\cdot s$$
$$+ \delta_{\alpha y}(\tilde{g}_{xx}\cdot s^2 + \tilde{g}_{yy}\cdot c^2) + \delta_{\alpha z}\tilde{g}_{zx}\cdot s\Big]. \quad (27)$$

Здесь $\tilde{g}_{\alpha\beta} = g_{\alpha\beta}(z, z'; \kappa')\exp(ik_1'z)$, а функции $s = \sin\varphi'$, $c = \cos\varphi'$ азимутального угла φ' определяют направление тангенциальной составляющей $\boldsymbol{\kappa}' = q(\mathbf{e}_x\cos\varphi' + \mathbf{e}_y\sin\varphi')\sin\theta'$ волнового вектора $\boldsymbol{\kappa}' - \mathbf{e}_z\cdot k_1(\kappa') = q\cdot\mathbf{N}$ рассеянной волны, где $k_1(\kappa') = q\cos\theta'$. При $qr \gg 1$ поле (7) с учетом (27) представляется суммой поперечных волн с линейными поляризациями p и s вдоль ортов

$$\mathbf{e}_p' = -(\mathbf{e}_x\cos\varphi' + \mathbf{e}_y\sin\varphi')\cos\theta' - \mathbf{e}_z\sin\theta',$$
$$\mathbf{e}_s' = -\mathbf{e}_x\sin\varphi' + \mathbf{e}_y\cos\varphi'. \quad (28)$$

При этом в формуле (27) x- и z-компоненты отвечают рассеянной волне с поляризацией p, а y-компонента отвечает s-поляризованной волне.

Из формулы (27) вычислим вектор Пойнтинга $\mathbf{S}_\lambda'$ рассеянной волны с линейной поляризацией λ при $qr \gg 1$, а из (17) — вектор Пойнтинга $\mathbf{S}_s^i$ падающей волны. Их отношение определяет сечение рассеяния света $d\sigma_\lambda/d\Omega' = r^2|\mathbf{S}_\lambda'|/|\mathbf{S}_s^i|$ с конверсией поляризации $s \to \lambda$, где $d\Omega' = \sin\theta' d\theta' d\varphi'$ — элемент телесного угла для рассеяния в направлении $\mathbf{N} = \mathbf{r}/r$ из (26). В результате для рассеяния в s- и p-поляризованную волны с волновым вектором $q\cdot\mathbf{N}$ получаем

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega'} = k_0^4\big|\chi^{(y)}\big|^2\cdot\big|1 + r^s(\kappa')e^{2ik_1(\kappa')|z_1|}\big|^2$$
$$\times\big|1 + r^s(\kappa)e^{2ik_1(\kappa)|z_1|}\big|^2 F_s(\Omega'), \quad (29)$$

$$\frac{d\sigma_p}{d\Omega'} = k_0^4\left|\chi^{(y)}\right|^2\cdot\left|1 + r^p(\kappa')e^{2ik_1(\kappa')|z_1|}\right|^2$$
$$\times\left|1 + r^s(\kappa)e^{2ik_1(\kappa)|z_1|}\right|^2 F_p(\Omega'), \quad (30)$$

где функции $F_s(\Omega') = \cos^2\varphi'$ и $F_p(\Omega') = \cos^2\theta'\sin^2\varphi'$ определяют угловую направленность излучения. Эти функции показывают, что при $\varphi' = 0$ и $\varphi' = \pi$ возможно только рассеяние $s \to s$, а при других азимутальных углах φ' появляется рассеяние $s \to p$ наряду с $s \to s$. Наличие волн, поляризованных вдоль обоих ортов (28), означает, при что $\varphi' \neq 0$, π рассеянному полю можно приписать эллиптическую поляризацию, зависящую от резонансных частот экситона и плазмона. Заметим, что в рамках представленной теории можно также исследовать рассеяние света в безызлучательные экситоны с $\kappa' > k_0(\sqrt{\varepsilon_1}, \sqrt{\varepsilon_b})$ по аналогии с возбуждением диполем нерадиационных плазмонов на плоской поверхности металла [19].

4. Обсуждение результатов

Используя представленную теорию, обсудим резонансную структуру экситонных спектров отражения света квантовой ямой и рассеяния при наличии наночастицы металла. Наиболее интересен случай, когда расстояние между квантовой ямой и частицей мало по сравнению с длиной волны света, т.е. $z_0 + |z_1| \ll k_0^{-1}$. Тогда применяя квазистатическое приближение ($c \to \infty$), пренебрежем вкладом второго слагаемого в квадратных скобках (15), который мал в отношении $\sim (k_0/\kappa)^2 \ll 1$.

Учитываемый вклад первого члена с $r^p(\kappa)$ связан с p-поляризованным полем, которое ответственно за эффекты ближнего поля (ср. с [15]).

Для упрощения анализа предполагаем, что частица находится вблизи квантовой ямы в однородном полупроводнике, т. е. $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \varepsilon_b$, $z_0 = 0$, $z_1 = -h$, $\rho_{12}^{\lambda} = 0$ и $r^{\lambda} = \rho_{QW}^{\lambda}$ в (16), (17). Интеграл (15) приближенно равен

$$\sigma^{(x)} = \sigma^{(y)} = -\frac{1}{2\varepsilon_b}\int_0^{\infty} e^{-2\kappa h}\tilde{\rho}_{QW}^{p}(\kappa)\kappa^2 d\kappa. \tag{31}$$

Здесь

$$\tilde{\rho}_{QW}^{p} = -\Gamma_R w\,\tilde{I}_c^2\kappa\Big[\frac{1}{\omega_0 + \Gamma_R w\,\tilde{I}_c^2\kappa - \omega - i\Gamma} + \frac{1}{\omega_0 + \Gamma_R w(I_0 + \tilde{I}_c^2\kappa) - \omega - i\Gamma}\Big], \tag{32}$$

$w = 2\pi/\varepsilon_b$, а интегралы из (22) вычислены в квазистатическом приближении. Из выражения (32) следует, что при $\kappa \gg k_0$ исчезает радиационное затухание экситонов и появляется дисперсия частот экситонов по κ.

Поясним этот факт на примере тонкого слоя толщиной $l \ll k_0^{-1}$ с локальной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b + \delta\varepsilon$, включающей экситонный вклад $\delta\varepsilon(\omega) = 4\pi\Gamma_R/(\omega_0 - \omega - i\Gamma)$ при $|z| < l/2$ аналогично модели (3)–(5). Если слой находится в среде с проницаемостью ε_b, то в квазистатическом приближении $(k_0 \ll \kappa)$ спектр экситонных мод вида $A\exp(i\kappa x - \kappa|z|)$, затухающих вне слоя (при $|z| > l/2$), определяется уравнениями

$$\varepsilon(\omega) = -\varepsilon_b\,\frac{1 \pm e^{-\kappa l}}{1 \mp e^{-\kappa l}}. \tag{33}$$

Здесь верхние и нижние знаки относятся к симметричным $E_x^s(z) = E_x^s(-z)$ и антисимметричным $E_z^a(z) = -E_z^a(-z)$ модам, поляризованным преимущественно в направлениях x и z. Эти моды принадлежат безызлучательным экситонам с законами дисперсии

$$\omega_0^{s,a}(\kappa) = \omega_0 + \frac{2\pi\Gamma_R}{\varepsilon_b}\left(1 \mp e^{-\kappa l}\right). \tag{34}$$

Коэффициент отражения от рассматриваемого тонкого слоя при разложении по параметру $\kappa l \ll 1$ в квазистатическом приближении побуквенно совпадает с (32), если в последнем сделать замены $\tilde{I}_c^2 = l$ и $I_0 = 1$. Следовательно, выражение (32) соответствует квазидвумерным нерадиационным (кулоновским) экситонам квантовой ямы, обладающим дисперсией по $\kappa\tilde{I}_c^2$. Дисперсия и поляризация этих продольной и поперечной мод аналогичны характеристикам поверхностных плазмонов в металлической пленке.

В существенной области интегрирования (31), где $\kappa \sim 1/h$, пренебрежем слабой $(\Gamma_R\tilde{I}_c^2\kappa \ll \omega_0)$ дисперсией частот в знаменателях функции (32). В результате

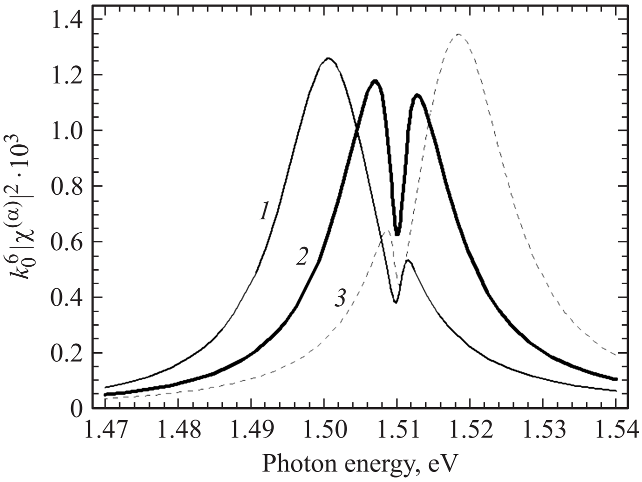

Рис. 2. Спектры компонент $\alpha = x, y$ безразмерной плазмонной поляризуемости $k_0^6\left|\chi^{(\alpha)}\right|^2$ сфероидальной наночастицы Ag в GaAs с учетом взаимодействия ее плазмонов с квазидвумерными экситонами квантовой ямы AlGaAs/GaAs. Использованы параметры $\hbar\omega_0 = 1.51$ eV, $\hbar\Gamma = 1$ meV, $\hbar\Gamma_R = 0.25$ meV для экситона, $\varepsilon_2 = \varepsilon_b = 12$ для GaAs и $l = h = 8$ nm. Спектры вычислены при фиксированной энергии экситона $\hbar\omega_0$ и энергиях плазмонов $\hbar\omega_\alpha$, соответствующих отношениям $a_z/a_x = 0.575$ (*1*), 0.585 (*2*) и 0.595 (*3*) полуосей серебряного сфероида с $a_x = 10$ nm. Параметры $\hbar\omega_p = 9.45$ eV, $\hbar\gamma = 0.02$ eV и $\varepsilon_\infty = 4.7$ получены путем аппроксимации диэлектрической проницаемости Ag [20] функцией $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \omega_p^2/(\omega^2 + i\omega\gamma)$.

из (31) получаем выражение

$$\sigma^{(x)} = \sigma^{(y)} = \frac{3\pi}{8}\,\frac{\Gamma_R}{\varepsilon_b^2}\,\frac{\tilde{I}_c^2}{h^4} \times \left(\frac{1}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} + \frac{1}{\omega_0 + \Gamma_R(4\pi I_0/\varepsilon_b) - \omega - i\Gamma}\right), \tag{35}$$

в котором сохранена малая постоянная $\Gamma_R(4\pi I_0/\varepsilon_b)$, учитывающая анизотропию частот экситонов.

На рис. 2 и 3 представлены результаты численного расчета спектров поляризуемости и рассеяния света серебряной частицей в форме эллипсоида вращения (сфероида) с $a_x = a_y \neq a_z$, $\chi_0^{(x)} = \chi_0^{(y)}$. Учитывалось взаимодействие дипольных плазмонов частицы с экситонами квантовой ямы GaAs/AlGaAs в GaAs. Изначально длины полуосей сплюснутого сфероида выбирались так, чтобы частоты экситонного и плазмонного резонансов совпали $(\omega_\alpha = \omega_0)$. При дальнейшем вычислении спектра величин (13), (29) и (30) частота экситонного резонанса ω_0 в (5) фиксировалась, а частоты ω_α плазмонных резонансов (10) изменялись путем варьирования отношения a_z/a_x длин полуосей сфероида. Результат, представленный на рис. 2, показывает, что в спектре поляризуемости из (13) и (35) экситонный резонанс проявляется в виде провала, величина которого при $\omega_\alpha = \omega_0$ (кривая *2*) имеет тот же масштаб, что плазмонная поляризуемость.

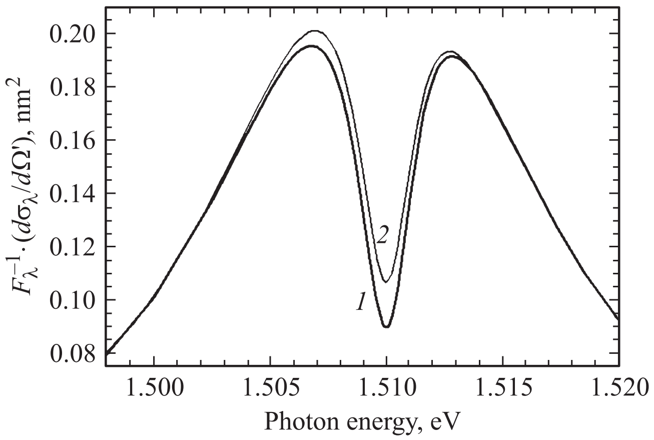

Рис. 3. Спектральные зависимости $F_\lambda^{-1}(d\sigma_\lambda/d\Omega')$ сечений рассеяния s-поляризованного света в волны с поляризациями $\lambda = s$ (*1*) и p (*2*) наночастицей Ag и квантовой ямой AlGaAs/GaAs в GaAs. Вычислено по формулам (29) и (30) с теми же параметрами, что на рис. 2, при $\theta = 0$ и $\theta' = 75^\circ$.

Вдали от резонанса (спектры 1 и 3) форма экситонной особенности меняется, а ее масштаб уменьшается. Таким же образом экситон-плазмонное взаимодействие проявляется и в спектральных зависимостях сечений рассеяния $s \to \lambda$. При условии резонанса $\omega_\alpha = \omega_0$ это иллюстрируется на рис. 3, где представлены сечения рассеяния $F_\lambda^{-1}(d\sigma_\lambda/d\Omega')$, вычисленные по формулам (29) и (30) с исключенными угловыми распределениями $F_\lambda(\Omega')$. Из-за малости коэффициентов отражения r_{QW}^λ квантовой ямой распространяющихся волн приведенные на рис. 3 спектры рассеяния $s \to p$ и $s \to s$ отличаются друг от друга незначительно. В то же время они близки по форме к спектру поляризуемости (кривая *2* на рис. 2), в котором проявляется экситон-плазмонное взаимодействие через ближнее поле.

Проявление экситон-плазмонного взаимодействия в резонансном рассеянии света можно интерпретировать как усиление поверхностными плазмонами частицы оптического отклика квазидвумерных экситонов ямы. Действительно, поляризуемость (13), вычисленная при учете (35) с функцией $\varepsilon(\omega)$ серебра [20], рис. 2, при $\omega_\alpha = \omega_0$ превышает в отношении $(\omega_0/\gamma)^2 \sim 10^2$ поляризуемость, вычисленную из (13) и (35) для диэлектрической частицы тех же размеров с частотно-независимой проницаемостью, например, с $\varepsilon = 2$. Как следствие, в последнем случае связанная с экситоном особенность в спектре рассеяния, проявляющаяся на нерезонансном „фоне“, оказывается на два порядка величины меньше, чем на рис. 3 в случае металлической наночастицы.

5. Заключение

В работе представлена теория упругого рассеяния света поверхностным (локальным) плазмоном наночастицы при учете его резонансного взаимодействия с квазидвумерным экситоном квантовой ямы. Наблюдаемые спектральные характеристики модельных структур „полупроводник-металл“ обсуждаются применительно к полупроводниковым квантовым ямам GaAs/AlGaAs и наночастицам благородного металла. Показано, что в плазмонном спектре рассеяния наночастицы экситонная особенность проявляется в виде узкого провала, масштаб которого сопоставим с масштабом плазмонного резонанса. Проявление резонансного плазмон-экситонного взаимодействия в рассеянии света интерпретируется как эффект усиления оптического отклика квазидвумерных экситонов ямы поверхностными плазмонами наночастицы. В качестве перспективного направления для развития представленной теории можно указать ее возможное применение для анализа возбуждения нерадиационных („темных“) экситонов. Представляет интерес также обобщение теории на упорядоченные массивы и брэгговские структуры, образованные металлическими наночастицами, с учетом взаимодействия их плазмонов с низкоразмерными экситонами.

Автор признателен М.М. Глазову и А.В. Селькину за полезное обсуждение результатов работы.

Приложение

Приведем использованные выше решения уравнения (2) при $\boldsymbol{\kappa} = \kappa\mathbf{e}_x$. В рамках формализма [15] для модели двух сред с квантовой ямой (рис. 1) при учете нелокального экситонного отклика (4), (5) функция Грина для s-поляризованных волн получается в виде

$$g_{yy}(z, z'; \kappa) = \frac{2\pi i k_0^2}{k_1} \left[e^{ik_1|z-z'|} + r^s e^{-ik_1(z+z')} \right] \quad \text{(A.1)}$$

при $z, z' < 0$. Коэффициент отражения $r^s(\kappa)$ дается формулой (16) с $\lambda = s$, а $k_m(\kappa)$ — формулой (18) с $m = 1, 2$.

Для p-поляризованных волн компоненты функции Грина при $z, z' < 0$ равны

$$g_{xx}(z, z'; \kappa) = \frac{2\pi i k_1}{\varepsilon_1} \left[e^{ik_1|z-z'|} + r^p e^{-ik_1(z+z')} \right],$$

$$g_{zx}(z, z'; \kappa) = \frac{i\kappa}{k_1^2} \frac{d}{dz} g_{xx}(z, z'; \kappa), \quad \text{(A.2)}$$

где $r^p(\kappa)$ выражается формулой (16) с $\lambda = p$. В него входят коэффициент отражения

$$\rho_{12}^p(\kappa) = \frac{\varepsilon_1 k_2 - \varepsilon_2 k_1}{\varepsilon_1 k_2 + \varepsilon_2 k_1} \quad \text{(A.3)}$$

от границы раздела сред $z = 0$ и коэффициент экситонного отражения [13,14]

$$\rho_{QW}^p = \frac{i\Gamma_R^x}{\omega_0^x - \omega - i\Gamma - i\Gamma_R^x} - \frac{i\Gamma_R^z}{\omega_0^z - \omega - i\Gamma - i\Gamma_R^z} \quad \text{(A.4)}$$

от изолированной квантовой ямы, находящейся в однородной среде с проницаемостью $\varepsilon_2 = \varepsilon_b$. В выражении (A.4)

$$\{\omega_0^x - \omega_0, \quad \omega_0^z - \omega_0\} = \Gamma_R w \left\{k_b I_s, \quad 2I_0 + k_b I_s \kappa^2/k_b^2\right\},$$

$$\{\Gamma_R^x, \Gamma_R^z\} = \Gamma_R w k_b I_c^2 \left\{1, \quad \kappa^2/k_b^2\right\}, \qquad (A.5)$$

куда входят интегралы из (22) и $w = 2\pi/\varepsilon_b$.

Список литературы

[1] E.L. Ivchenko. Optical spectroscopy of semiconductor nanostructures. Alpha Science International, Ltd. (2005). 315 p.
[2] В.В. Климов. Наноплазмоника. Физматлит, М. (2010). 480 с.
[3] В.М. Агранович, М.Д. Галанин. Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах. Наука, М. (1978). 383 с.
[4] M. Achermann. J. Phys. Chem. Lett. **1**, 2837 (2010).
[5] A. Neogi, C.-W. Lee, H.O. Everitt, T. Kuroda, A. Tackeuchi, E. Yablonovitch. Phys. Rev. B **66**, 153 305 (2002).
[6] A.A. Toropov, T.V. Shubina, K.G. Belyaev, S.V. Ivanov, P.S. Kop'ev, Y. Ogawa, F. Minami. Phys. Rev. B **84**, 085 323 (2011).
[7] W. Zhang, A.O. Govorov, G.W. Bryant. Phys. Rev. Lett. **97**, 146 804 (2006).
[8] A.O. Govorov, G.W. Bryant, W. Zhang, T. Skeini, J. Lee, N.A. Kotov, J.V. Slocik, R.R. Naik. Nano Lett. **6**, 984 (2006).
[9] P. Vasa, R. Pomraenke, S. Schwieger, Yu.I. Mazur, Vas. Kunets, P. Srinivasan, E. Johnson, J.E. Kihm, D.S. Kim, E. Runge, G. Salamo, C. Lienau. Phys. Rev. Lett. **101**, 116 801 (2008).
[10] Y. Fedutik, V.V. Temnov, O. Schops, U. Woggon, M.V. Artemyev. Phys. Rev. Lett. **99**, 136 802 (2007).
[11] В.И. Ушанов, В.В. Чалдышев, Н.Д. Ильинская, Н.М. Лебедева, М.А. Яговкина, В.В. Преображенский, М.А. Путято, Б.Р. Семягин. ФТТ **56**, 1891 (2014).
[12] L.C. Andreani, F. Bassani. Phys. Rev. B **41**, 7536 (1990).
[13] Е.Л. Ивченко. ФТТ **33**, 2388 (1991).
[14] В.А. Кособукин, М.М. Моисеева. ФТТ **37**, 3694 (1995).
[15] В.А. Кособукин. ФТТ **36**, 3015 (1994).
[16] V.A. Kosobukin. Surf. Sci. **406**, 32 (1998).
[17] A.A. Maradudin, D.L. Mills. Phys. Rev. B **11**, 1392 (1975).
[18] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М. (1982). 620 с.
[19] В.А. Кособукин. ФТТ **35**, 884 (1993).
[20] P.B. Johnson, R.W. Christy. Phys. Rev. B **6**, 4370 (1972).