

РЕТРАНСЛЯЦИЯ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ НАНОАНТЕННОЙ ЭНЕРГИИ ЭКСИТОНА КВАНТОВОЙ НИТИ К КВАНТОВОЙ ТОЧКЕ

Кучеренко М.Г., Коловертнов Г.С.

Центр лазерной и информационной биофизики,
Оренбургский государственный университет, г. Оренбург

Исследование генерации, транспорта и трансформации электронных возбуждений – экситонов в полупроводниковых наноструктурах сегодня представляет собой важнейшее направление нанoeлектроники и фотоники [1-5]. Безызлучательный перенос энергии между экситон-активированной полупроводниковой квантовой нитью (QWR) радиуса R и квантовой точкой (QD) осуществляется на субволновых расстояниях оптического диапазона – в ближнем поле квантовой нити [3-4], [6-7]. Если в эту область вносится дополнительная металлическая наночастица (NP), то последняя может рассматриваться как антенна-ретранслятор энергии экситона Ванье-Мотта квантовой нити к акцептирующей квантовой точке, расположенной недалеко от них. Во избежание ленц-джоулевых потерь металлический ретранслятор должен обладать высокой электрической проводимостью (малым поглощением энергии поля). Рассмотрим в качестве такой наноантенны проводящую сферическую частицу радиуса R_{NP} с достаточно низким удельным сопротивлением входящего в ее состав металла. Расположение всех трех частей такой системы отражено на рис. 1.

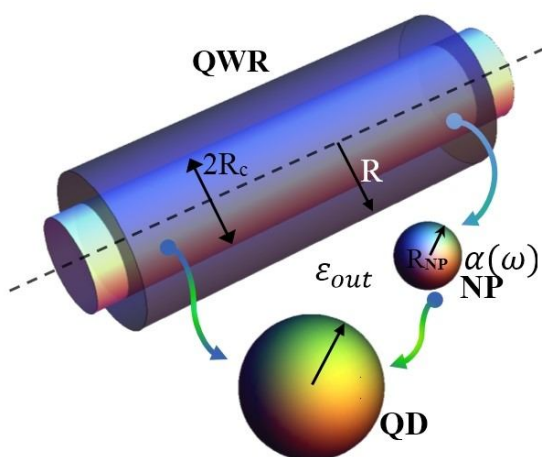


Рис. 1. Относительное расположение квантовой нити (QWR), квантовой точки (QD) и сферической металлической наночастицы (NP). Волнистыми стрелками показаны направления безызлучательной передачи энергии между компонентами системы.

Потенциал $\Phi(\mathbf{r}) = \Phi(r, \varphi, z)$ квазистатического поля, создаваемого поляризованной ($\mathbf{P}(\mathbf{r}) \neq 0$) квантовой нитью с объемной зарядовой плотностью $\rho(r, \varphi, z) = -\text{div } \mathbf{P}(r, \varphi, z)$, во внешней области пространства $r > R$ можно найти из решения уравнения Лапласа $\nabla^2 \Phi(\mathbf{r}) = 0$, вычисляя постоянные интегрирования из граничных условий на поверхности полупроводникового цилиндра [6-8]

$$\Phi(r, \varphi, z) = f_M(R, \varphi) \frac{K_n(k_z r)}{k_z K'_n(k_z R)} \frac{\varepsilon_{in}}{\varepsilon_{out}} \exp(ik_z z), \quad (1)$$

где фактор $f_M(R, \varphi)$ имеет простую угловую зависимость лишь для X -поляризации, а для Z -поляризации ее вовсе утрачивает

$$f_M(R, \varphi) = u_F^{(M)}(R, \varphi) g_M(\varphi) k_z \left[\frac{K_n(k_z R)}{K'_n(k_z R)} \frac{\varepsilon_{in}}{\varepsilon_{out}} - \frac{I_n(k_z R)}{I'_n(k_z R)} \right]^{-1}, \quad g_M(\varphi) = \begin{cases} 1, & M = Z \\ \cos \varphi, & M = X \end{cases} \quad (2)$$

$$u_F^{(M)}(R, \varphi) = \frac{4\pi}{\varepsilon_{in}} \left[\frac{I_n(k_z R) K'_n(k_z R)}{I'_n(k_z R)} - K_n(k_z R) \right] \int_0^{R_\xi} I_n(k_z r) \rho_M(r, z) r dr,$$

и $n = 0$ и $n = 1$ для случаев Z - и X -поляризации соответственно; ε_{in} , ε_{out} - диэлектрические проницаемости полупроводника QWR и внешней среды на частоте экситонного перехода; $I_n(q)$, $K_n(q)$ – функции Бесселя мнимого аргумента первого и второго рода порядка n . Напряженность $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ поля вне нити находим на основе (1): $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\nabla\Phi(\mathbf{r})$.

На рисунках (2) и (3) представлены векторные распределения напряженности $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ поля в пространстве вокруг нити для случаев X - и Z -поляризаций. В центре рис. 2 показаны векторы с наибольшей длиной. Периодический характер поляризации нити вдоль ее оси находит отражение и в картине распределения напряженности поля, что особенно заметно на рис 3. Пространственные осцилляции напряженности $E(z) \sim \exp(ik_z z)$ поля вдоль оси z квантовой нити показаны на рис. 2 и 3 с периодом в 200 нм.

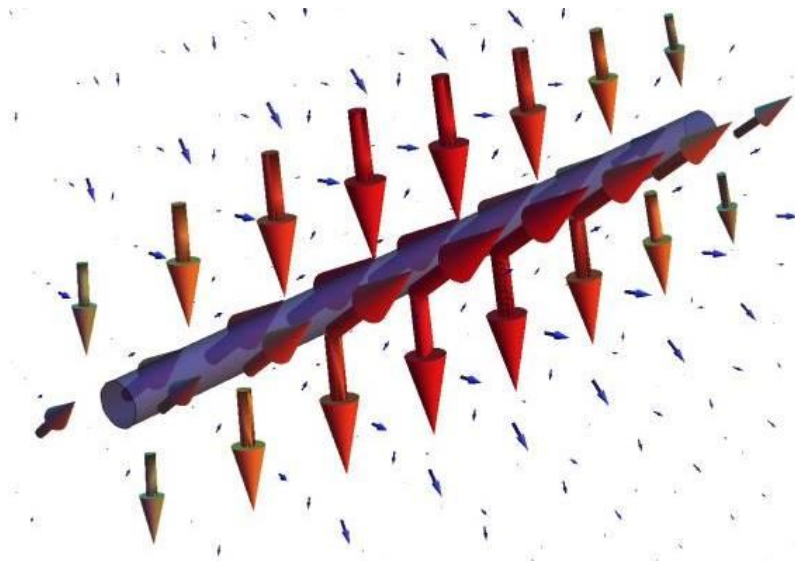


Рис. 2 Векторное распределение напряженности $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\nabla\Phi(\mathbf{r})$ поля вблизи поверхности квантовой нити в случае X -поляризации дипольного момента экситона

В расчетах использовались следующие значения параметров квантовой нити и окружающей ее среды: $R = 5 \cdot 10^{-7}$ см; $R_c = 2 \cdot 10^{-7}$ см; $d_{vc} \approx 0,1ea_B$; $R_ck_r = 2.4$; $a_B = 3,1 \cdot 10^{-7}$ см; $\varepsilon_{out} = 3$; $\varepsilon_{in} = 8$; $k_z = 10^5$ см $^{-1}$.

Распределение векторов напряженности поля в случае осевой поляризации (Z-поляризации) квантовой нити представлено на рисунке 3.

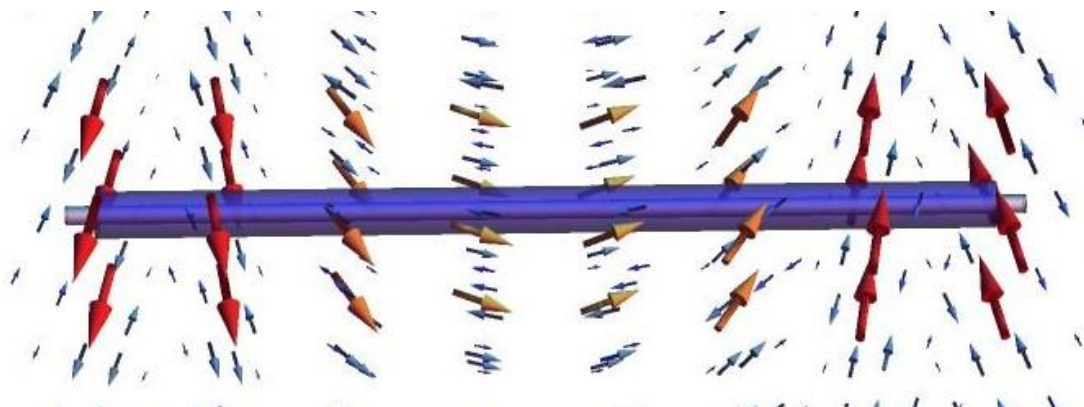


Рис. 3 Векторное распределение напряженности $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\nabla\Phi(\mathbf{r})$ поля
вблизи поверхности квантовой нити в случае Z-поляризации

На рисунке 4 представлена цветная карта распределения квадрата напряженности $|\mathbf{E}(x,y)|^2$ поля в плоскости сечения цилиндра для двух скрещенных X- и Z- поляризаций. Цветовая шкала имеет логарифмический масштаб. Осесимметричная картина распределения интенсивности поля при Z-поляризации противостоит зеркально симметричной картине при X-поляризации.

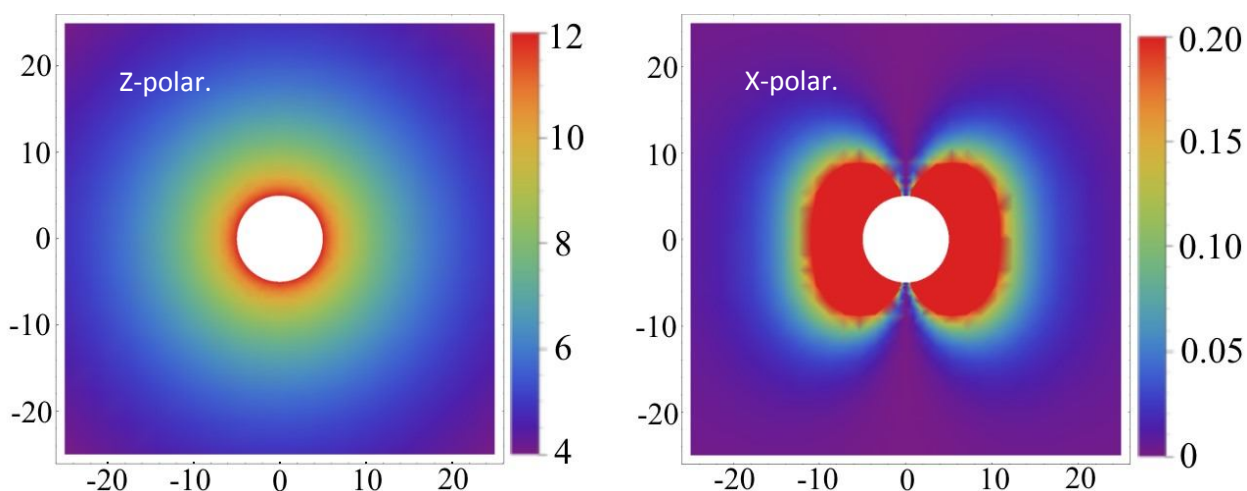


Рис. 4 (С включением цвета). Распределение интенсивности $|\mathbf{E}(x,y)|^2 / |\mathbf{E}(0,R)|^2$ поля в плоскости сечения цилиндра в случае Z- (слева) и X- (справа) поляризации

Электрический дипольный момент $P(\omega)$, наведенный на наночастице полем $\mathbf{E}(\mathbf{r}_{NP})$ определяется ее поляризуемостью $\alpha(\omega)$: $P(\omega) = \alpha(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}_{NP})$. Он создает в месте нахождения акцептора – квантовой точки – дополнительное поле $\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD})$, где $\mathbf{r}'_{QD} = \sqrt{r'^2 + r''^2 + (z' - z'')^2 - 2r'r''\cos(\varphi' - \varphi'')}$. Обозначения параметров геометрической конфигурации системы указаны на рисунке 5. С учетом нанометровых размеров системы расчет напряженности $\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD})$ поля диполя можно произвести в квазистатическом приближении с помощью диадической функции Грина: $\vec{G}(\mathbf{r}'_{QD}) = (\mathbf{r}'_{QD})^{-3} [3\mathbf{n}' \otimes \mathbf{n}' - \vec{I}]$, $\mathbf{n}' = \mathbf{r}'_{QD} / |\mathbf{r}'_{QD}|$. Тогда

$$\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD}) = \vec{G}(\mathbf{r}'_{QD})P(\mathbf{r}''|\omega) = \vec{G}(\mathbf{r}'_{QD})\alpha(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}_{NP}). \quad (3)$$

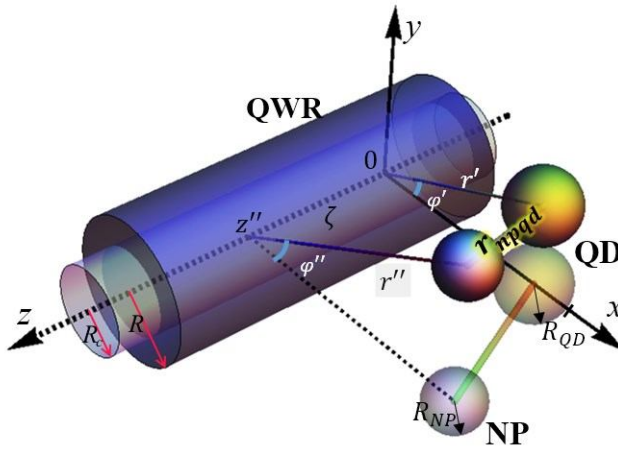


Рис. 5 Пространственные конфигурации, образуемые квантовой точкой и металлической наночастицей-рефлектором относительно квантовой нити ($z' = 0$).

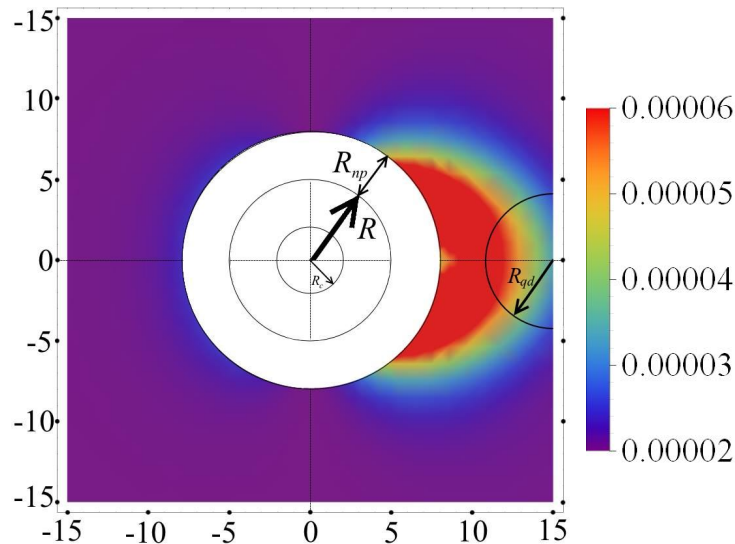
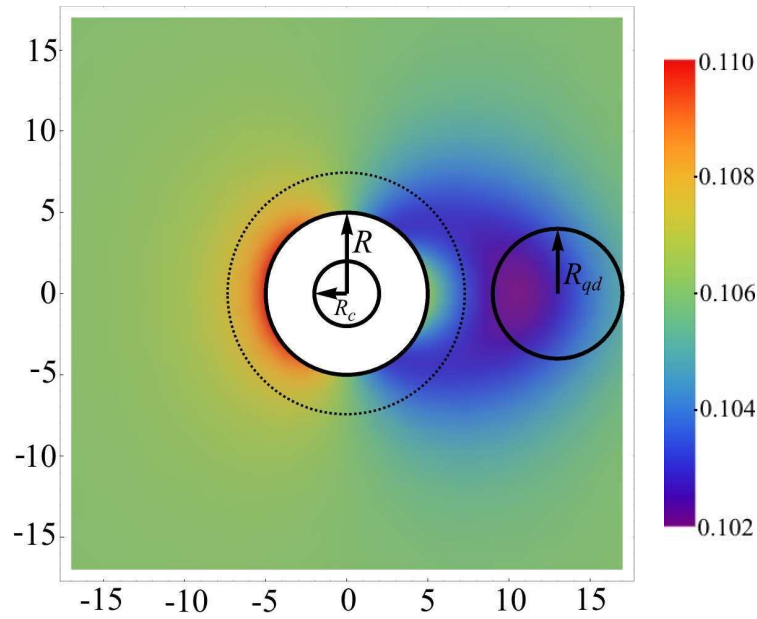


Рис. 6 (С включением цвета). Распределение интенсивности $|\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD})|^2$ ретранслированного поля в месте нахождения квантовой точки ($z' = 0$), в зависимости от расположения нанорефлектора в сечении $z'' = 11$ нм, полученное на основе (3) для случая Х-поляризации QWR.

Значения параметров: $R_{NP} = 3, R_{QD} = 4$ нм; $R_c = 2, R = 5$ нм; $x' = 13, y' = 0$ нм; $k_z = 10^5 \text{ см}^{-1}$; $\omega_{pl} = 13,8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$; $\gamma_m = 2,78 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$; $\omega_{exc} = 10^{15} \text{ с}^{-1}$; $\varepsilon_{out} = 3,5$; $\varepsilon_{in} = 8$.

Результаты расчетов распределения квадрата модуля напряженности $\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD})$ ретранслированного поля в области квантовой точки при перемещении наночастицы-антенны в сечении $z'' = \text{const}$, не проходящем через центр QD ($z=0$), произведенных на основе (1-3) для случая Х-поляризации нити, представлены на рис. 6. Область эффективного действия ретранслятора отчетливо отражена на карте красным цветом. Однако окончательный вывод о характере распределения локального поля, в том числе и в области QD, делать на основе рис. 6 нельзя, поскольку результирующее поле формируется в результате векторного сложения полей $\mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD})$ и $\mathbf{E}(\mathbf{r}_{QD})$. Это соображение подтверждается рис. 7, на котором представлено распределение интенсивности результирующего поля $\mathbf{E}_{tot}(\mathbf{r}_{QD}) = \mathbf{E}_P(\mathbf{r}'_{QD}) + \mathbf{E}(\mathbf{r}_{QD})$ в месте нахождения квантовой точки при изменении положения рефлектора в сечении $z'' = \text{const}$, рассчитанное для случая Х-поляризации. В результате интерференции интенсивность суммарного поля в области локализации квантовой точки уменьшается при размещении наночастицы в «синей зоне», связывающей QWR и QD (рис.7)



$R_{NP} = 3, R_{QD} = 4$ нм; $R_c = 2, R = 5$ нм; $x' = 13, y' = 0$ нм; $k_z = 10^5 \text{ см}^{-1}$; $\omega_{pl} = 13,8 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$; $\gamma_{NP} = 2,78 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$; $\omega_{exc} = 10^{15} \text{ с}^{-1}$; $\varepsilon_{out} = 3$; $\varepsilon_{in} = 8$; $d_{vc} \approx 0,1ea_B$; $R_ck_r = 2.4$; $a_B = 3,1 \cdot 10^{-7} \text{ см}$.

Рис. 7 (С включением цвета). Распределение интенсивности $|\mathbf{E}_{tot}(\mathbf{r}_{QD})|^2$ суммарного поля в месте нахождения квантовой точки ($z=0$) в зависимости от расположения нанорефлектора в сечении $z'' = 11$ нм для случая Х-поляризации.

Скорость $U(\mathbf{r}_{QD}, \mathbf{r}'_{QD})$ безызлучательного переноса энергии от квантовой нити к квантовой точке, включая параллельный канал через антенну-ретранслятор, определяется выражением [8]

$$U(\mathbf{r}_{QD}, \mathbf{r}'_{QD}) = \frac{1}{2\hbar} \text{Im} \alpha_{QD}(\omega) |\mathbf{E}_{tot}(\mathbf{r}_{QD})|^2. \quad (4)$$

Рисунок 8 представляет собой цветную карту распределения скорости переноса энергии на частоте ω от квантовой нити к квантовой точке в случае Z-поляризации при перемещении нанорефлектора в сечении $z'' = 11$ нм. Поляризуемость квантовой точки $\alpha_{QD}(\omega)$ определяется тем же соотношением, что и для однородной металлической наночастицы с невырожденным электронным газом:

$$\alpha_S(\omega) = \left[\frac{\varepsilon_S(\omega) - \varepsilon_{out}}{\varepsilon_S(\omega) + 2\varepsilon_{out}} \right] R_S^3,$$

где индекс S относится либо к наночастице (NP), либо к квантовой точке (QD). Соответствующие диэлектрические проницаемости металла и полупроводника в расширенной модели Друде-Лоренца определяются выражениями

$$\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon_m^\infty - \frac{(\omega_{pl}^m)^2}{\omega(\omega + i\gamma_m)}, \quad \varepsilon_{sc}(\omega) = \varepsilon_{sc}^\infty + \frac{(\omega_{pl}^{sc})^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_{sc}}.$$

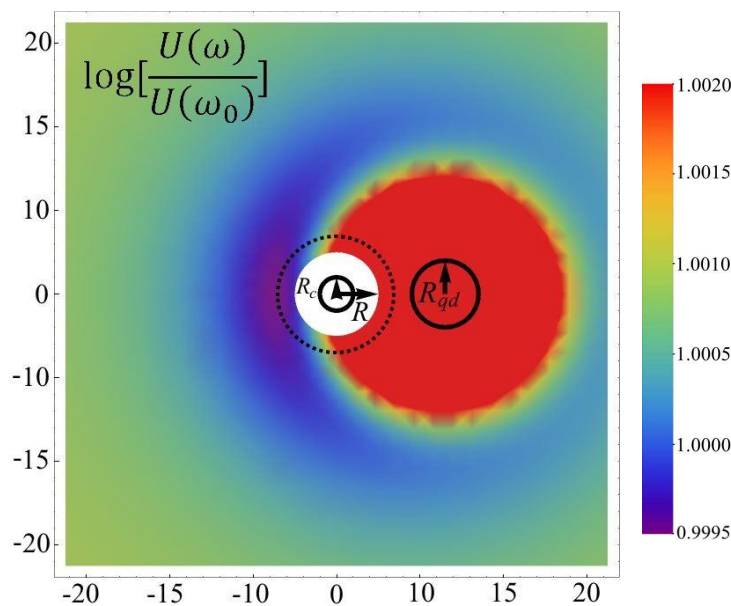


Рис. 8. (С включением цвета). Распределение скорости безызлучательного переноса энергии от квантовой нити QWR к квантовой точке в зависимости от расположения сферического нанорефлектора в сечении $z'' = 11$ нм для случая Z-поляризации.

$\omega_{pl}^{sc} = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$; $\gamma_{sc} = 10^{10} \text{ с}^{-1}$; $\omega_T = 3,2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$. Остальные параметры – как и для рис. 7.

В отличие от рис. 7 с интерференционным подавлением поля на частице - акцепторе при X-поляризации, при Z-поляризации (рис. 8), наоборот, наблюдается повышение интенсивности суммарного поля в месте нахождения квантовой точки и последующее за этим увеличение скорости безызлучательного переноса энергии при размещении нанорефлектора вблизи QD.

В электромагнитном спектре такой системы как полупроводниковая квантовая нить с экситоном Ванье-Мотта, металлическая наноантенна сферической формы и шаровая полупроводниковая квантовая точка, возникают три характерных резонанса: на экситонной частоте ω_{exc} квантовой нити, на частоте ω_{pl}^m плазмонного резонанса металлической наночастицы и на частоте ω_{res}^{sc} резонанса поляризуемости $\alpha_{QD}(\omega)$ сферической QD. На рисунке 9 представлена частотная зависимость скорости переноса энергии от квантовой нити к квантовой точке в присутствии медного сферического нанорефлектора, в которой присутствуют все три резонансных полосы. Низкочастотный пик спектра отвечает экситонной линии QWR, плазмонный резонанс наночастицы-рефлектора – частоте $\omega_{pl}^m = 4,9 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, которая близка к частоте ω_{res}^{sc} резонанса поляризуемости $\alpha_{QD}(\omega)$ полупроводниковой квантовой точки.

Следует отметить, что частота $\gamma_m \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ столкновений электронов для металлов имеет сильную зависимость от температуры. Так, например, при низких температурах электропроводность меди возрастает на несколько порядков по сравнению с комнатной. Поэтому расчеты спектра скорости $U(\omega)$ безызлучательного переноса энергии на рис. 9 произведены при аномально низкой частоте столкновений $\gamma_m \sim 10^{12} \text{ с}^{-1}$ электронов металла, сравнимой с шириной экситонной полосы QWR, что позволило получить значительные «всплески» резонансов и существенно уменьшить их ширину.

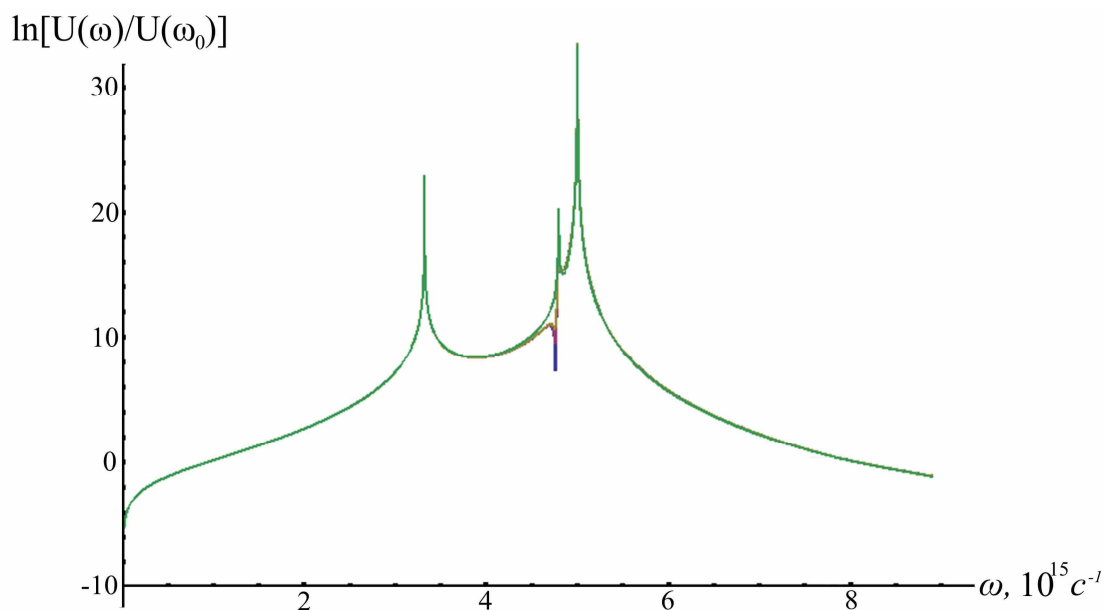


Рис. 9 Спектр скорости безызлучательного переноса энергии в системе с QWR, NP (Cu) и QD при различных значениях k_z волнового числа свободного продольного движения экситона в квантовой нити. $\Gamma=10^{12} \text{ c}^{-1}$ (exciton); $\gamma_m=10^{12} \text{ c}^{-1}$ (Cu); $R=5 \text{ нм}$; $R_c=2 \text{ нм}$; $\varepsilon_{out}=3$. Наночастица-рефлектор радиусом 3 нм локализована в точке с координатами $(0,R)$.

Таким образом, приведенные в работе результаты моделирования безызлучательного переноса энергии от квантовой нити к квантовой точке в присутствии металлической наноплазмонной антенны-ретранслятора указывают на сильную зависимость эффективности действия такой антенны от места ее локализации. Это связано с эффектами интерференции ближних полей источника и частицы-рефлектора. Расчет параметров технических устройств наноэлектроники и их оптимизацию необходимо производить с учетом этого обстоятельства.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ и правительства Оренбургской области (проект № 14-02-97000), а также Министерства образования и науки РФ (Госзадание № 233).

Список литературы

1. Tsuneya, Ando. *Environment Effects on Excitons in Semiconducting Carbon Nanotubes* / Ando Tsuneya // Submitted to Journal of Physical Society of Japan 2009. 12 p.
2. Didraga, C. *Excitons in tubular molecular aggregates* / C. Didraga, J. Knoester // Journal of Luminescence 110 (2004). P. 239–245.
3. Hernandez-Martínez, P.L. *Exciton energy transfer between nanoparticles and nanowires* // P.L. Hernandez-Martínez, A.O. Govorov // PHYSICAL REVIEW B 78, 035314. 2008. 7 p.
4. Hernandez-Martínez, P.L. *Generalized Theory of Förster-Type Nonradiative Energy Transfer in Nanostructures with Mixed Dimensionality* // P.L. Hernández-Martínez, A.O. Govorov, H.V. Demir. Revised: April 16, 2013. [dx.doi.org/10.1021/jp402242y](https://doi.org/10.1021/jp402242y) / J. Phys. Chem. C.

5. *Koyama, T. Ultrafast energy transfer of one-dimensional excitons between carbon nanotubes: a femtosecond time-resolved luminescence study / T. Koyama, Y. Miyata, K. Asaka, H. Shinohara, Y. Saito, A. Nakamura // Phys. Chem. Chem. Phys., 2012, 14, 1070–1084 Received 1st September 2011, Accepted 2nd November 2011 DOI: 10.1039/c1cp22781e*
6. *Кучеренко, М.Г. Перенос энергии экситонов квантовой нити в органическую среду / М.Г. Кучеренко, Ю.А. Строкова // Матер. Всеросс. научно-метод. конфер. «Университет. комплекс как регион. центр образования, науки и культуры». Оренбургский гос. ун-т. – Оренбург: ООО ИПК «Университет», 2014. – 4014 с. Секция 6 «Вопросы фундаментальной, прикладной физики и физического образования». – С.1458-1466.*
7. *Stroкова, Y.A. Electronic energy transfer from the semiconductor quantum wire excitons to an organic media / Y.A. Stroкова, M.G. Kucherenko // Journal of Physics: Conference Series. IOP Publishing. 2014. –Volume 541, Issue 1, 2014, Article number 012088.*
8. *Кучеренко, М.Г., Чмерева Т.М. Экситон-плазмонное взаимодействие в системе «полупроводниковая квантовая нить - сферическая металлокомпозитная наночастица» / М.Г. Кучеренко, Т.М. Чмерева // В сборнике: Университет. комплекс как регион. центр образования, науки и культуры Матер. Всеросс. научно-метод. конфер. Оренбург, 2015. С. 1097-1106.*