

# ДИПОЛЬНАЯ ПЛАЗМОННАЯ МОДА В НАНОРАЗМЕРНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ ТИПА «ЯДРО-ОБОЛОЧКА» С ГЕТЕРОПЕРЕХОДОМ ВТОРОГО РОДА

*А. Н. Ипатов*<sup>a,b\*</sup>

<sup>a</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого  
195251, Санкт-Петербург, Россия

<sup>b</sup> Академический университет им. Ж. И. Алфёрова  
194021, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 19 ноября 2022 г.,  
после переработки 26 февраля 2023 г.  
Принята к публикации 27 февраля 2023 г.

Исследованы возбужденные состояния наноразмерных двухкомпонентных полупроводниковых кристаллов типа «ядро–оболочка» с гетеропереходом второго рода. Продемонстрировано, что в их спектрах фотопоглощения доминирует дипольный плазмонный резонанс. При этом оказалось, что варьирование высоты потенциального барьера между ядром и оболочкой в сравнительно узком диапазоне приводит к принципиальному изменению характера коллективной моды от поверхностного плазмонного резонанса, типичного для спектров фотопоглощения проводящих наноразмерных частиц, к вращательной плазмонной моде, при которой возбуждаются только угловые степени свободы.

DOI: 10.31857/S0044451023060123

EDN: DHGEJR

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие технологий в области наноэлектроники и нанофотоники в течение последних десятилетий привело к острой необходимости создания принципиально новых материалов, физические и химические свойства которых отличаются от свойств соответствующих объемных компонентов. Одно из направлений, квантовая плазмоника, в настоящее время является быстро развивающейся областью исследований, которая включает в себя изучение квантовых свойств света и механизмов его взаимодействия с материей на наноразмерном уровне [1–3].

Оптические свойства наноразмерных проводящих частиц определяются наличием локализованных поверхностных плазмонных резонансов (LSPR) в их спектрах возбужденных состояний [2, 4–8]. Полупроводниковые нанокристаллы и квантовые точки представляют собой перспективный тип материалов с плазмонным резонансом в оптическом спек-

тре [4, 5, 9–15], причем частоты их плазмонных мод как правило лежат намного ниже по сравнению с резонансными частотами в металлических наночастицах [16] и могут варьироваться в широком диапазоне от терагерцовой до инфракрасной и видимой частей спектра [16–22] путем изменения параметров как материала самого нанокристалла, так и окружающей его среды [13, 14, 16, 17, 21, 24–27], а также от использованного метода легирования, от которого зависит конфигурация носителей заряда основного состояния системы [13, 18, 19, 28–30].

В зависимости от распределения плотности локализованных зарядов дипольный плазмон может представлять собой как гармонические колебания в направлении нормали к поверхности ионного остова [31, 32], так и вращательное движение системы зарядов, при котором они осциллируют тангенциально по отношению к границе кора внутри сравнительно тонкого сферического слоя, в то время, как радиальное движение практически не включается [33, 34].

Коллоидные нанокристаллы (квантовые точки) типа «ядро–оболочка» состоят из двух (или более) полупроводниковых материалов, образующих структуру из подсистем, разделенных барьером ге-

\* E-mail: andrei\_ipatov@mail.ru

тероперехода. Они отличаются от «однокомпонентных» квантовых точек существенно более высокой фотохимической стабильностью [35], причем особенности их строения позволяют легко варьировать их зонную структуру для создания элементарной базы наноразмерной оптоэлектроники [36–39].

Возможность варьирования таких оптических свойств наноразмерных квантовых точек «ядро–оболочка» (далее CSQD, core-shell quantum dots), как длина волны люминесценции, квантовый выход и время жизни возбужденных состояний системы, привела к значительному прогрессу в технологиях синтеза подобных структур [39–41]. С практической точки зрения внешняя оболочка также играет роль барьера между ядром и окружающей средой, что делает нанокристалл менее чувствительным к изменениям физических и химических свойств окружения [39]. Этот эффект, в частности, дает возможность эффективного применения QSQD для создания биологических маркеров [35, 42].

В настоящее время в качестве основы для ядра и оболочки CSQD как правило используются полупроводники типа II-VI, IV-VI, III-V, образуя конфигурации вида CdSe/CdS, CdS/ZnS, CdSe/ZnS, InAs/CdSe, InP/ZnS [39, 40, 43].

В большинстве случаев изоляция ядра CSQD осуществляется путем нанесения поверх него полупроводникового материала с другой шириной запрещенной зоны, чем у материала ядра, таким образом, чтобы обе границы запрещенной зоны материала оболочки оказывались внутри запрещенной зоны ядра. При таком расположении энергетических зон оба типа носителей заряда, и электроны и дырки, оказываются заключенными внутри области ядра. Такая ситуация называется структурой первого типа или квантовой точкой с гетеропереходом первого рода. Напротив, в структурах второго типа, оптическим свойствам которых посвящена данная работа, взаимное расположение зон материалов ядра и оболочки таково, что обе границы и валентной зоны и зоны проводимости материала ядра оказываются ниже (или выше), чем у материала оболочки [44, 45]. В результате электроны и дырки оказываются пространственно разделенными барьером гетероперехода, так, что каждый из типов носителей заряда локализован в своей области [44]. Это приводит к существенному снижению скорости взаимной рекомбинации электронов и дырок и, таким образом, увеличивается их время жизни по сравнению со структурами первого рода [45–48].

Как было показано в работе [40], этот эффект может быть использован при создании полупровод-

никовых лазеров на основе наноразмерных квантовых точек. Также ожидается, что пространственное разделение носителей заряда в квантовых точках с гетеропереходом второго рода дает этим структурам преимущество при их использовании в качестве элементной базы для фотовольтаики [44] и фотолюминесценции [40, 41, 46, 47].

Важно также отметить, что в отличие от плазмонных мод как в однокомпонентных полупроводниковых наночастицах [17, 28, 29], так и в металлических кластерах [49–53], плазмонные колебания в нанокристаллах (квантовых точках) типа «ядро–оболочка» возбуждаются в системе, содержащей два типа делокализованных носителей заряда, взаимодействующих между собой. Коллективные явления в двухкомпонентных системах уже были предметом исследования в ряде работ [54–59], в которых было показано, что в оптических спектрах наноразмерных систем, содержащих свободные заряды противоположного знака, также наблюдается гигантский дипольный плазмонный резонанс. Однако характерной особенностью CSQD является то, что такая конфигурация может приводить к пространственному разделению зарядов разного знака благодаря наличию барьера гетероперехода второго рода между ядром и оболочкой.

В данной работе мы представляем теоретический анализ оптических свойств двухкомпонентных наноразмерных полупроводниковых систем типа «ядро–оболочка» второго типа. При описании их основного состояния была использована модель ступенчатого потенциала [60, 61], который при его достаточной высоте обеспечивает практически полное пространственное разделение компонент системы таким образом, что перекрытие одночастичных волновых функций электронов и дырок оказывается пренебрежимо мало.

Основной целью работы является исследование зависимости характера плазмонной моды от высоты потенциального барьера. Было продемонстрировано, что ее увеличение в сравнительно узком диапазоне значений приводит к существенному изменению распределения плотности делокализованных носителей заряда и, как результат, к переходу от поверхностного плазмонного резонанса Ми [62, 63] трансляционного типа, характерного, например, для металлических нанокластеров [9, 10], к вращательной поверхностной моде [33, 34].

Наш подход основан на самосогласованном квантово-механическом описании многочастичных возбуждений в системе делокализованных носителей заряда. Расчеты основного состояния

системы проводились в приближении Хартри–Фока с учетом нелокального обменного взаимодействия в подсистемах электронов и дырок.

Мы показываем, что по мере увеличения высоты барьера распределение электронной и дырочной плотностей в в квантовой точке имеет тенденцию к формированию узкого двойного электронно-дырочного слоя вблизи границы раздела ядра и оболочки. При этом заметная перестройка распределения плотности зарядов происходит при изменении высоты барьера в сравнительно узком диапазоне значений, что, в свою очередь, приводит к существенному изменению оптических характеристик системы, в частности, частоты плазмонного резонанса. Последний эффект связан в первую очередь с изменением характера плазмонной моды от поверхностной дипольной моды трансляционного типа, при которой эффективно возбуждается движение зарядов в радиальном направлении, к вращательной моде, для которой характерно возбуждение только угловых степеней свободы, в то время, как радиальное движение остается практически замороженным.

## 2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ ПОДХОД

Рассмотрим электронейтральную систему взаимодействующих фермионов, содержащую равное количество частиц отрицательного и положительного заряда, пространственно разделенных барьером гетероперехода второго рода и при этом связанных между собой кулоновским взаимодействием.

Пусть для примера в области ядра присутствуют  $N$  отрицательных свободных носителей заряда, а в области оболочки — такое же количество положительных. Подобный подход вполне оправдан при высоте барьера достаточной для того, чтобы разделить носители заряда противоположного знака. При меньших значениях высоты барьера, когда распределения плотности зарядов заметно перекрываются, эта простая модель, разумеется, не в полной мере соответствует ситуации, но, по нашему мнению, позволяет на качественном уровне адекватно описывать спектр возбужденных состояний двухкомпонентной системы.

Далее будем называть отрицательные частицы электронами с эффективной массой в зоне проводимости  $m_e$ , а положительные частицы, соответственно, дырками с эффективной массой в валентной зоне  $m_h$ .

Полный гамильтониан описываемой системы представляет собой гамильтониан  $N_e = N$  электронов и  $N_h = N_e$  дырок, взаимодействующих друг с другом посредством кулоновского потенциала  $V$ , с потенциалами внутри ядра и оболочки  $V_{\text{core}}$  и  $V_{\text{shell}}$ , соответственно,

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{e}^{N_e} \frac{\hat{\mathbf{p}}_e^2}{2m_e} + \sum_{h}^{N_h} \frac{\hat{\mathbf{p}}_h^2}{2m_h} + \sum_e V_{\text{core}}(r_e) + \sum_h V_{\text{shell}}(r_h) + \\ & + \frac{1}{2} \left( \sum_e^{N_e} V(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}'_e) + \sum_h^{N_h} V(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}'_h) - \sum_{e,h}^{N_e, N_h} V(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \right). \end{aligned} \quad (1)$$

В общем случае парное кулоновское взаимодействие между частицами в точках  $\mathbf{r}_a$  и  $\mathbf{r}_b$  эффективно экранировано путем введения статической диэлектрической проницаемости в соответствующем полупроводнике. Использование статической диэлектрической проницаемости в нашей модели обусловлено тем, что масштаб энергий электрон-дырочных комплексов соответствует энергии связи экситона Ванье–Мотта, для которой частотной зависимостью диэлектрической проницаемости можно пренебречь [64], так что мультипольное разложение потенциала межчастичного взаимодействия может быть записано в виде [65, 66]

$$V(\mathbf{r}_a, \mathbf{r}_b) = 4\pi e^2 \sum_{LM} \Phi_L(r_a, r_b) \frac{Y_{LM}(\mathbf{n}_a) Y_{LM}^*(\mathbf{n}_b)}{2L+1}, \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} \Phi_L((r_a, r_b) < r_{\text{core}}) &= \frac{r_{<}^L}{\varepsilon_1 r_{>}^{L+1}} + \frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(L+1)(r_a r_b)^L}{\varepsilon_1(L\varepsilon_1 + (L+1)\varepsilon_2)r_{\text{core}}^{2L+1}}, \\ \Phi_L((r_a, r_b) > r_{\text{core}}) &= \frac{r_{<}^L}{\varepsilon_2 r_{>}^{L+1}} + \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)Lr_{\text{core}}^{2L+1}}{\varepsilon_2(L\varepsilon_1 + (L+1)\varepsilon_2)(r_a r_b)^{L+1}}, \\ \Phi_L(r_a < r_{\text{core}} < r_b) &= \frac{(2L+1)r_{<}^L}{(L\varepsilon_1 + (L+1)\varepsilon_2)r_{>}^{L+1}}, \end{aligned} \quad (3)$$

где  $r_{\text{core}}$  — радиус сферически симметричного ядра CSQD,  $r_{>,<}$  обозначают, соответственно, наибольший и наименьший из радиусов  $r_{a,b}$ , а  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$  — статические диэлектрические проницаемости ядра и оболочки. Однако, поскольку основной целью данной работы было исследование зависимости оптических свойств CSQD от высоты эффективного потенциального барьера, разделяющего области ядра

и оболочки, при проведении расчетов были приняты значения  $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 1$ , чтобы не увеличивать число независимых параметров в используемой модели, где диэлектрические константы в первую очередь играют роль масштабирующего коэффициента по шкале энергий.

Поскольку в рамках модели ступенчатого потенциала электроны и дырки жестко ограничены в своем движении внутри объема наночастицы, запишем  $V_{\text{core}}$  и  $V_{\text{shell}}$ , соответственно, как [60, 61]

$$V_{\text{core}}(r) = \begin{cases} 0, & 0 < r < r_{\text{core}}, \\ V_c, & r_{\text{core}} < r < r_{\text{shell}}, \\ \infty, & r > r_{\text{shell}} \end{cases} \quad (4)$$

и

$$V_{\text{shell}}(r) = \begin{cases} V_v, & 0 < r < r_{\text{core}}, \\ 0, & r_{\text{core}} < r < r_{\text{shell}}, \\ \infty, & r > r_{\text{shell}}, \end{cases} \quad (5)$$

где  $r_{\text{shell}} > r_{\text{core}}$  — радиус оболочки CSQD, а потенциалы  $V_c$  и  $V_v$  определим, соответственно, как разности границ зон проводимости и валентных зон полупроводников, разделенных барьером гетероперехода. При проведении численных расчетов в данной работе был рассмотрен частный случай  $V_c = V_v = U_0$ .

Для описания межчастичного взаимодействия в основном состоянии системы было использовано приближение Хартри–Фока, в рамках которого одночастичные волновые функции электронов  $\phi_i(\mathbf{r}_i^{(e)})$  и дырок  $\psi_a(\mathbf{r}_a^{(h)})$  удовлетворяют самосогласованным уравнениям [57, 58, 67]:

$$-\frac{\hbar^2 \Delta_i}{2m_e} \phi_i(\mathbf{r}_i^{(e)}) + \left( U_{\text{core}}(\mathbf{r}_i^{(e)}) + U_H^{(e)}(\mathbf{r}_i^{(e)}) - U_H^{(h)}(\mathbf{r}_i^{(e)}) + U_x^{(e)}(\mathbf{r}_i^{(e)}) \right) \phi_i(\mathbf{r}_i^{(e)}) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}_i^{(e)}), \quad (6)$$

$$-\frac{\hbar^2 \Delta_a}{2m_h} \psi_a(\mathbf{r}_a^{(h)}) + \left( U_{\text{shell}}(\mathbf{r}_a^{(e)}) + U_H^{(h)}(\mathbf{r}_a^{(h)}) - U_H^{(e)}(\mathbf{r}_a^{(h)}) + U_x^{(h)}(\mathbf{r}_a^{(h)}) \right) \psi_a(\mathbf{r}_a^{(h)}) = \epsilon_a \psi_a(\mathbf{r}_a^{(h)}).$$

Здесь  $\epsilon_i$  и  $\epsilon_a$  — одночастичные энергии электронов и дырок,  $U_H^{(e)}$  и  $U_H^{(h)}$  — хартриевские потенциалы. В случае системы, имеющей заполненные оболочки, они записываются в виде [67]

$$\begin{aligned} U_H^{(e)}(\mathbf{r}) &= \int V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rho_e(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \\ U_H^{(h)}(\mathbf{r}) &= \int V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rho_h(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \end{aligned} \quad (7)$$

где объемные концентрации электронов и дырок

$$\begin{aligned} \rho_e(\mathbf{r}) &= 2 \sum_i \phi_i^*(\mathbf{r}) \phi_i(\mathbf{r}), \\ \rho_h(\mathbf{r}) &= 2 \sum_a \phi_a^*(\mathbf{r}) \phi_a(\mathbf{r}) \end{aligned}$$

вычисляются путем суммирования по всем заполненным одночастичным состояниям. При этом нелокальные обменные потенциалы  $U_x^{(e)}$  и  $U_x^{(h)}$ , соответственно, выражаются как

$$\begin{aligned} U_x^{(e)}(\mathbf{r}) \phi_i(\mathbf{r}) &= -q^2 \sum_j \int \frac{\phi_j^*(\mathbf{r}') \phi_i(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \phi_j(\mathbf{r}), \\ U_x^{(h)}(\mathbf{r}) \phi_a(\mathbf{r}) &= -q^2 \sum_b \int \frac{\phi_b^*(\mathbf{r}') \phi_a(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \phi_b(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (8)$$

Для описания многоэлектронных корреляций было использовано приближение случайных фаз с нелокальным обменным взаимодействием (ПСФО или RPAE), следуя работам [54, 55, 57, 58], в которых этот метод был обобщен для двухкомпонентной системы фермионов. В рамках этого подхода волновая функция возбужденного состояния  $|\Phi_k\rangle$  представляется в виде суперпозиции одночастичных возбуждений типа частица-вакансия

$$\begin{aligned} |\Phi_k\rangle &= \sum_{im} \left( X_{im}^{(k)} \hat{a}_m^+ \hat{a}_i + Y_{im}^{(k)} \hat{a}_i^+ \hat{a}_m \right) |\Phi_0\rangle + \\ &+ \sum_{as} \left( X_{as}^{(k)} \hat{a}_s^+ \hat{a}_a + Y_{as}^{(k)} \hat{a}_a^+ \hat{a}_s \right) |\Phi_0\rangle, \end{aligned} \quad (9)$$

где первое слагаемое описывает возбуждение электронной подсистемы, а второе слагаемое — дырочной,  $|\Phi_0\rangle$  обозначает основное состояние комплекса, операторы  $\hat{a}^+$  и  $\hat{a}$  есть одночастичные операторы рождения и уничтожения. Здесь и далее индексы  $i$  и  $m$  используются для обозначения заполненных и незаполненных одночастичных состояний электронной подсистемы, а индексы  $a$  и  $s$  — соответственно, для занятых и незанятых состояний дырочной подсистемы. Амплитудные коэффициенты  $X_{im}^{(k)}$ ,  $X_{as}^{(k)}$  (амплитуды «вперед во времени») и  $Y_{im}^{(k)}$ ,  $Y_{as}^{(k)}$  («назад во времени») определяют вклад соответствующей пары частица-вакансия в многочастичное возбужденное состояние (9).

Возбужденные состояния многочастичной системы с заполненными оболочками, обладающей сферической симметрией, в приближении LS-связи характеризуются полным угловым моментом  $L$  и его проекцией  $M$  [69], поэтому все одночастичные возбуждения «частица-вакансия» в суперпозиции (9) имеют ту же мультипольность.

Для описания оптических свойств электрон-дырочных комплексов достаточно рассмотреть только дипольные переходы из основного состояния  $|\Phi_0\rangle$  в возбужденные многочастичные состояния  $|\Phi_k\rangle$  с  $L = 1, M = 0$ .

В работах [54, 55, 57, 58] было показано, что амплитудные коэффициенты  $\mathbf{X}_e^{(k)}, \mathbf{X}_h^{(k)}$  и  $\mathbf{Y}_e^{(k)}, \mathbf{Y}_h^{(k)}$  в суперпозиции (9) определяются путем решения матричного уравнения ПСФО для двухкомпонентной системы:

$$\mathbf{U}\mathbf{Z}^{(k)} = \Omega_k\mathbf{Z}^{(k)}, \quad (10)$$

где  $\Omega_k$  — собственные числа матрицы

$$\mathbf{U} = \begin{pmatrix} \mathbf{A}^{(e)} & \mathbf{B}^{(e)} & \mathbf{C} & \mathbf{D} \\ -\mathbf{B}^{(e)*} & -\mathbf{A}^{(e)*} & -\mathbf{D}^* & -\mathbf{C}^* \\ \mathbf{C} & \mathbf{D} & \mathbf{A}^{(h)} & \mathbf{B}^{(h)} \\ -\mathbf{D}^* & -\mathbf{C}^* & -\mathbf{B}^{(h)*} & -\mathbf{A}^{(h)*} \end{pmatrix}, \quad (11)$$

$$\mathbf{Z}^{(k)} = \begin{pmatrix} \mathbf{X}_e^{(k)} \\ \mathbf{Y}_e^{(k)} \\ \mathbf{X}_h^{(k)} \\ \mathbf{Y}_h^{(k)} \end{pmatrix}.$$

Здесь элементы эрмитовых матриц  $\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}, \mathbf{D}$  выражаются через одночастичные энергии  $\epsilon_i, \epsilon_a$  и кулоновские матричные элементы парного межчастичного взаимодействия

$$\langle \alpha\beta|V|\gamma\eta\rangle = \delta_{\sigma_\alpha\sigma_\gamma}\delta_{\sigma_\beta\sigma_\eta} \times \int \varphi_\alpha^*(\mathbf{r})\varphi_\beta^*(\mathbf{r}')V(\mathbf{r},\mathbf{r}')\varphi_\gamma(\mathbf{r})\varphi_\eta(\mathbf{r}')d\mathbf{r}d\mathbf{r}' \quad (12)$$

с одночастичными функциями, полученными в результате решения уравнений (6), где  $V(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  определен согласно (2).

Матрицы  $\mathbf{A}$  и  $\mathbf{B}$  связывают между собой одночастичные возбуждения внутри электронной и дырочной подсистем, соответственно, и их вид не отличается от случая стандартного уравнения ПСФО для однокомпонентной системы зарядов [67]

$$\begin{aligned} A_{im,jn}^{(e)} &= \delta_{ij}\delta_{mn}(\epsilon_n - \epsilon_i) + \langle in|U|mj\rangle, \\ A_{as,bt}^{(h)} &= \delta_{ab}\delta_{st}(\epsilon_s - \epsilon_a) + \langle at|U|sb\rangle, \\ B_{im,jn}^{(e)} &= \langle ij|U|mn\rangle, \\ B_{as,bt}^{(h)} &= \langle ab|U|st\rangle. \end{aligned} \quad (13)$$

Матричные элементы в (13) включают в себя как прямое (хартриевское), так и нелокальное обменное взаимодействие

$$\langle \alpha\beta|U|\gamma\eta\rangle = 2\langle \alpha\beta|V|\gamma\eta\rangle + \langle \alpha\beta|V|\eta\gamma\rangle, \quad (14)$$

где множитель 2 перед прямой компонентой в (14) появляется в результате суммирования по спиновым переменным.

Матрицы  $\mathbf{C}$  и  $\mathbf{D}$  связывают между собой возбуждения электронной и дырочной подсистем и поэтому содержат только компоненты прямого кулоновского взаимодействия

$$\begin{aligned} C_{im,as} &= -2\langle is|V|ma\rangle, \\ D_{im,as} &= -2\langle ia|V|ms\rangle. \end{aligned} \quad (15)$$

Положительные собственные числа  $\Omega_k$  есть энергии переходов между основным состоянием  $|\Phi_0\rangle$  и коррелированными возбужденными состояниями  $|\Phi_k\rangle$  (9).

Полученные при решении уравнений (10)–(11) спектры энергий возбужденных состояний и соответствующие волновые функции позволяют описывать процессы, связанные с возбуждением системы под действием различных внешних воздействий. Так, отклик системы на внешнее электромагнитное поле определяется спектром дипольных возбуждений. Силы осцилляторов  $f_k$  для дипольных переходов между основным и  $k$ -м возбужденным состоянием равны:

$$f_k = 2\mu D_k^2\Omega_k, \quad (16)$$

где  $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$  — приведенная масса электрон-дырочной пары. Силы осцилляторов удовлетворяют правилу сумм Томаса–Райха–Куна [67],  $\sum_k f_k = N$ .

Дипольные матричные элементы  $D_k$  (в калибровке длины) вычисляются путем суммирования по всем одночастичным возбуждениям [55, 57, 58],

$$\begin{aligned} D_k &= \sum_{im} \left( X_{im}^{(k)} d_{im} + Y_{im}^{(k)} d_{mi} \right) + \\ &+ \sum_{as} \left( X_{as}^{(k)} d_{as} + Y_{as}^{(k)} d_{sa} \right), \end{aligned} \quad (17)$$

где  $d_{\alpha\beta} = \langle \alpha|z|\beta\rangle$  — одночастичные дипольные амплитуды для пары частица-вакансия для электронов и дырок, соответственно, а амплитудные коэффициенты  $\mathbf{X}_e^{(k)}, \mathbf{X}_h^{(k)}$  и  $\mathbf{Y}_e^{(k)}, \mathbf{Y}_h^{(k)}$  нормированы в соответствии с условием

$$\begin{aligned} \sum_{im} \left( |X_{im}^{(k)}|^2 - |Y_{im}^{(k)}|^2 \right) + \\ + \sum_{as} \left( |X_{as}^{(k)}|^2 - |Y_{as}^{(k)}|^2 \right) = 1. \end{aligned} \quad (18)$$

Важно отметить, что движение центра масс всей системы в целом также является дипольным возбуждением и при непосредственном численном решении уравнения (10) его невозможно отделить от

относительного движения электронов и дырок в системе их центра масс.

Чтобы исключить движение центра масс из спектра возбуждений системы, что оказалось особенно важным при малых значениях высоты барьера  $U_0$ , был применен метод, основанный на использовании проекционных операторов [54, 55, 57, 58]. Идея метода состоит в переходе от базисного набора одночастичных возбуждений в разложении (9)  $|\alpha\beta\rangle = \hat{a}_\alpha^+ \hat{a}_\beta |\Phi_0\rangle$  к новому базису дипольных возбуждений  $|\gamma\eta\rangle$ , не содержащих движения центра масс системы,

$$|\gamma\eta\rangle = \hat{P}_{\text{CM}} |\alpha\beta\rangle. \quad (19)$$

Здесь  $\hat{P}_{\text{CM}}$  — проекционный оператор, матричные элементы которого равны

$$P_{\gamma\eta, \alpha\beta}^{\text{CM}} = \delta_{\alpha\gamma} \delta_{\beta\eta} - \frac{P_{\gamma\eta} P_{\alpha\beta}}{Q_{\text{CM}}}, \quad (20)$$

где знаменатель

$$Q_{\text{CM}} = \sum_{in} |p_{in}^{(e)}|^2 + \sum_{as} |p_{as}^{(h)}|^2,$$

а  $p_{\alpha\beta} = \langle \alpha | \hat{p}_z | \beta \rangle$  — одночастичные матричные элементы оператора импульса.

Волновая функция  $k$ -го дипольного возбужденного состояния  $\tilde{\Phi}_k$  относительно неподвижного центра масс теперь по-прежнему записывается в виде разложения (9), но уже по новому базису одночастичных дипольных возбуждений (19) с новыми амплитудными коэффициентами  $\tilde{X}_{im}^{(k)}$ ,  $\tilde{Y}_{im}^{(k)}$  и  $\tilde{X}_{as}^{(k)}$ ,  $\tilde{Y}_{as}^{(k)}$ . Их значения, а также энергия возбуждения  $\Omega_k$ , определяются как компоненты собственного вектора и соответствующее собственное число матрицы  $\tilde{\mathbf{U}} = \mathbf{P}_{\text{CM}} \mathbf{U} \mathbf{P}_{\text{CM}}$ , полученной в результате действия проекционного оператора на исходную матрицу (11).

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

При проведении расчетов спектров фотопоглощения полупроводниковых кристаллов типа «ядро-оболочка» были выбраны сферически симметричные электронно-дырочные комплексы с радиусами ядра  $r_{\text{core}} = 75$  ат.ед.  $\approx 4$  нм и оболочки  $r_{\text{shell}} = 150$  ат.ед.  $\approx 8$  нм, соответственно. В дальнейшем условимся называть носители материала ядра электронами, а материала оболочки, соответственно, дырками, как, например, в гетероструктурах типа CdSe/CdTe [45] или CdS/ZnSe [40]. Поскольку цель работы состоит в исследовании зави-

симости оптических свойств системы от одного конкретного параметра, а именно от высоты барьера  $V_c = V_v = U_0$  в (4), (5), для численных расчетов для модельной гетероструктуры были использованы значения  $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 1$  и эффективные массы  $m_e = 0.2m_0$  и  $m_h = 0.5m_0$  для электронов и дырок, соответственно, где  $m_0$  — масса свободного электрона.

В качестве объекта исследования были выбраны структуры, содержащие  $N = 50$  пар частиц. Это соответствует средней концентрации электрон-дырочных пар  $\langle n \rangle = 3N/4\pi r_{\text{shell}} \sim 0.9 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ , что по порядку величины близко к средней концентрации носителей в экспериментах [29, 30]. Соответствующий эффективный радиус Вигнера-Зейца, т.е. среднее расстояние между парами носителей в предельном случае отсутствия барьера, оказался равным  $r_s = (3/4\pi \langle n \rangle)^{-1/3} = 1.7$  нм, что позволяет при описании движения частиц и дырок использовать приближение огибающей функции [70, 71], применение которого оправдано существенно большим радиусом  $r_s$  по сравнению с типичными значениями постоянной решетки нанокристаллов [64]. По этой же причине мы пренебрегаем возможной непараболическостью и анизотропией валентной зоны и зоны проводимости материалов и используем модельные эффективные массы  $m_e$  и  $m_h$ , соответствующие изотропным и параболическим зонам, а также описываем исследуемые наносистемы как сферически симметричные, для которых применима модель ступенчатого потенциала (4), (5).

Проведенные сравнительные расчеты основного состояния двухкомпонентных систем при различных значениях  $U_0$  показали, что даже в предельном случае  $U_0 \rightarrow 0$ , то есть в приближении свободной электронно-дырочной капли [59, 64], ее наименьшая полная энергия соответствует конфигурации обеих подсистем с замкнутыми оболочками и сферически симметричным распределением объемной концентрации электронов и дырок  $\rho_e(r)$  и  $\rho_h(r)$ . Для сферически-симметричных подсистем с замкнутыми оболочками и изотропными угловыми зависимостями  $\rho(r)$  совокупные индексы « $i$ » и « $a$ » у одночастичных волновых функций  $\phi_i$  и  $\phi_a$  в (6) обозначают набор квантовых чисел  $(n, l, m, \sigma)$ , где  $n$  — радиальное квантовое число,  $l$  и  $m$  — угловой момент и его проекция,  $\sigma$  — проекция спина, а сами волновые функции записываются как произведение радиальной, угловой и спиновой компонент [72],

$$\phi_{nlm\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{P_{nl}(r)}{r} Y_{lm}(\theta, \varphi) \chi_\sigma. \quad (21)$$

При заданных параметрах для  $N = 50$  во всем диапазоне изменения высоты барьера наиминимизированной полной энергии соответствует конфигурация с полностью заполненными квантовыми оболочками  $1s^2 2p^6 3d^{10} 4f^{14} 5g^{18}$  для обеих подсистем, то есть при максимально возможных значениях орбитального момента для каждого главного квантового числа, как это наблюдалось, например, и в случае однокомпонентных нанокристаллов с поверхностным типом легирования [29, 30, 33, 34].

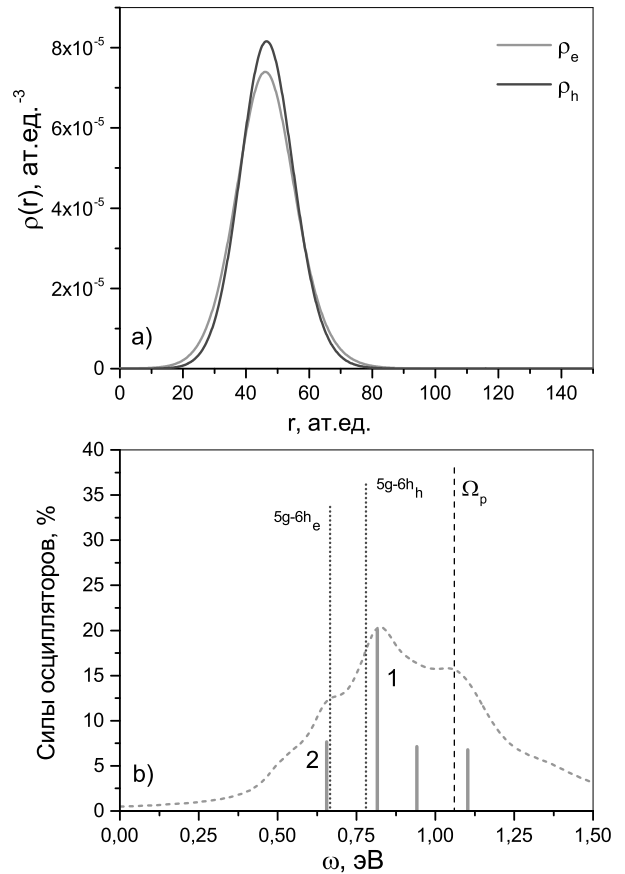
Силы осцилляторов (16) были найдены в результате решения уравнения ПСФО (10)–(11). Для численных расчетов спектров фотопоглощения был использован метод Би-сплайнов (*B-splines*) [73, 74], основанный на замене одночастичных состояний непрерывного спектра дискретным набором псевдосостояний. Радиальные части одночастичных волновых функций  $P_{nl}(r)$  представляются в виде линейной комбинации кусочно-непрерывных полиномов, заданных на достаточно большом конечном радиальном интервале  $[0, R_{\max}]$ ,

$$P_{nl}(r) = \sum_{i=2}^{N_{\text{spl}}-1} C_i B_{i,k}(r), \quad (22)$$

где  $N_{\text{spl}}$  — полное число сплайнов порядка  $k$ . При этом функции  $P_{nl}(r)$  удовлетворяют граничным условиям  $P_{nl}(0) = P_{nl}(r_{\text{shell}}) = 0$ , то есть, согласно (4), (5), фермионная система предполагается помещенной в сферическую потенциальную яму радиуса  $r_{\text{shell}}$  с бесконечно высокими стенками. При этом для обеспечения необходимой точности результатов ( $\sim 10^{-5}$ ) для правила сумм были использованы 50 сплайнов 7-го порядка.

Вначале были рассчитаны распределения объемной плотности заряда для электронной и дырочной компонент в предельном случае  $U_0 = 0$ , то есть для электронно-дырочной капли, содержащей  $N = 50$  частиц обоого сорта, связанных между собой только межчастичным взаимодействием. Результаты расчета в приближении Хартри–Фока (6) приведены на рис. 1 *a*. Из графика видно, что полученные функции распределения имеют вид компактной радиально-симметричной структуры, лишь незначительно различаясь из-за разности эффективных масс электронов и дырок.

Распределения сил осцилляторов, также для сравнения посчитанные в обоих приближениях, показаны на рис. 1 *b* вертикальными линиями. Полученные распределения сил осцилляторов свидетельствуют о наличии в оптическом спектре комплекса гигантского дипольного резонанса, связанного, как



**Рис. 1.** *a* — Распределения плотности заряда электронов  $\rho_e$  и дырок  $\rho_h$  в двухкомпонентной системе, содержащей  $N = 50$  пар частиц при  $U_0 = 0$ . *b* — Распределения сил осцилляторов (17) (в % от правила сумм) в приближении случайных фаз с обменом (ПСФО). Огибающая сечения фотопоглощения показана пунктирными линиями. Тонкими вертикальными штриховыми линиями отмечено положение  $\Omega_p$  (23) и частоты двух основных одночастичных переходов  $5g - 6h$  для электронной и дырочной подсистем

было продемонстрировано в работе [58], с возбуждением поверхностных плазмонных колебаний.

Для сравнения на графике также показано положение частоты гармонических колебаний центра масс системы в адиабатическом приближении [31, 58],

$$\Omega_p = \sqrt{\frac{4\pi e^2 \hbar^2}{3\mu N} \int \rho_e(\mathbf{r}) \rho_h(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}. \quad (23)$$

На этом же графике отмечены положения частот основных одночастичных дипольных переходов для электронной и дырочной подсистем с наибольшей силой осцилляторов, соответственно,  $5g - 6h_e$  и  $5g - 6h_h$ .

Оказалось, что преобладающая доля сил осцилляторов (84%) приходится на энергии выше потенциала ионизации, что приводит к сильной фрагментации линии плазмонного резонанса, частота которого попадает в область непрерывного спектра. Эта особенность плазмонного резонанса в электронно-дырочных каплях отличает его от аналогичного возбуждения в системе делокализованных электронов в металлических кластерах, где положение плазмонного резонанса находится ниже потенциала ионизации [9, 10]. Непосредственное исследование механизмов уширения линий в оптических спектрах наноразмерных объектов, которым было уделено внимание авторами ряда публикаций [75–80], не является целью данной работы.

Поэтому для получения соответствующих сечений фотопоглощения наборы рассчитанных дискретных сил осцилляторов (16) нами были заменены лоренцевыми профилями, ширина которых на построенных тонкими пунктирными линиями графиках была выбрана как  $\Gamma_k = 0.1\Omega_k$  для  $k$ -го дипольного перехода с частотой  $\Omega_k$ .

Несмотря на сильную фрагментацию резонансной линии, плазменные колебания в двухкомпонентной системе даже в отсутствие разделительного барьера можно считать гармоническими. Внешнее электромагнитное поле воздействует непосредственно на центры масс электронов и дырок и не затрагивает их внутреннее движение. В свою очередь, расщепление чисто гармонической плазмонной моды, соответствующей относительному движению центров масс электронной и дырочной подсистем с частотой колебаний  $\Omega_p$ , происходит путем смешивания плазмонной моды и внутренних возбуждений частиц комплекса [57, 58].

Каждое возбужденное состояние  $\Phi_k$  (9), полученное в результате, в общем случае содержит в себе вклады практически всех одночастичных переходов  $\phi_i \rightarrow \phi_m$  и  $\phi_a \rightarrow \phi_n$ , при этом отличаясь их амплитудными коэффициентами и, как следствие, характером движения участвующих частиц. Природа конкретной  $k$ -й спектральной линии может быть проанализирована путем исследования соотношений ее отдельных амплитуд  $X^{(k)}$  и  $Y^{(k)}$ , а также соответствующей плотности переходов, которая определяется как

$$\begin{aligned} \rho_{tr}^{(k)}(\mathbf{r}) &= \langle \Phi_k | \delta\rho(\mathbf{r}) | \Phi_0 \rangle = \\ &= \sum_{im} \left( X_{im}^{(k)} \phi_i^*(\mathbf{r}) \phi_m(\mathbf{r}) + Y_{im}^{(k)} \phi_i(\mathbf{r}) \phi_m^*(\mathbf{r}) \right) + \\ &+ \sum_{an} \left( X_{an}^{(k)} \phi_a^*(\mathbf{r}) \phi_n(\mathbf{r}) + Y_{an}^{(k)} \phi_a(\mathbf{r}) \phi_n^*(\mathbf{r}) \right). \end{aligned} \quad (24)$$

Для сравнительного анализа были выбраны две основные линии в спектре, отмеченные на графике рис. 1 *b* цифрами «1» и «2». На рис. 2 приведены соответствующие радиальные распределения плотности переходов на фоне плотности электронной и дырочной компонент основного состояния системы. Из графиков видно, что для дипольной моды «1» с энергией  $\Omega_1 \approx 0.82$  эВ, на которую приходится около 20% суммы сил осцилляторов, максимум плотности переходов приходится на область внешней границы электронно-дырочного комплекса, что свидетельствует о преимущественно радиальном и при этом синфазном характере движения частиц в этом колебательном процессе. Напротив, для моды «2» с  $\Omega_2 \approx 0.66$  эВ, содержащей около 7.5% правила сумм, распределение плотности переходов имеет один максимум в объеме системы и, таким образом, колебания в этом возбужденном состоянии не являются поверхностной плазмонной модой.

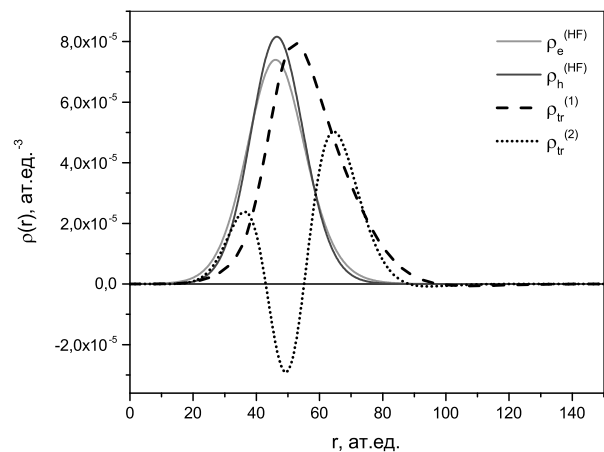
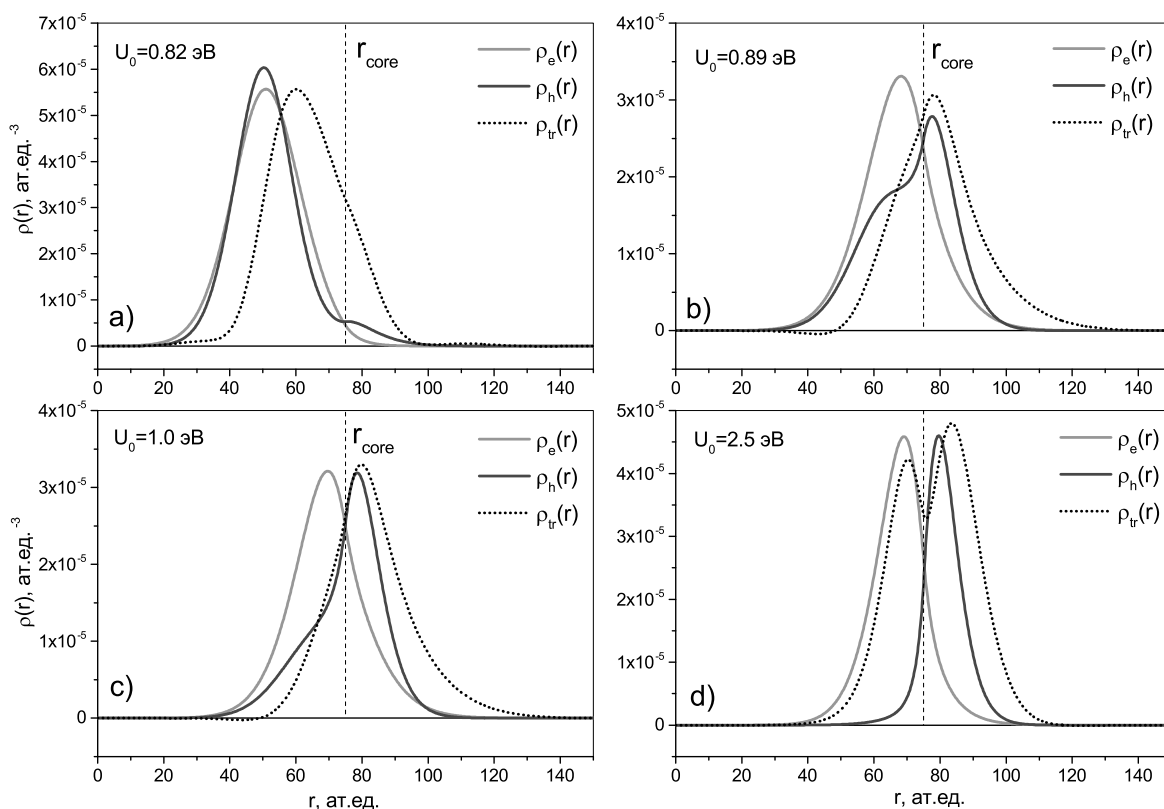


Рис. 2. Радиальные распределения плотности дипольных переходов  $\rho_{tr}(r)$  (в относительных единицах) для возбужденных состояний, соответствующих линиям «1» и «2» на графике рис. 1(b), на фоне распределения зарядовой плотности электронной и дырочной компонент

Чтобы выявить принципиальное различие этих двух мод по своему характеру, также был проведен анализ соответствующих амплитуд «вперед-» и «назад-во-времени». Для коллективных возбуждений плазмонного типа характерны близкие по порядку величины значения  $X$  и  $Y$ , в то время, как для других мод наблюдается соотношение  $X \gg |Y|$ . Большой вклад амплитуды «назад-во-времени» свидетельствует о значительном смешивании электрон-дырочных состояний и существенно коллективном





**Рис. 3.** Распределения плотности заряда электронов и дырок в двухкомпонентной системе, содержащей  $N = 50$  пар частиц при различных значениях высоты барьера  $U_0$  и соответствующие радиальные распределения плотностей переходов для плазмонной моды

характере возбуждения. Напротив, малые значения элементов  $Y$  характерны для преимущественно одночастичных состояний, для которых межчастичные корреляции практически не играют роли. Оказалось, что возбужденное состояние, сила осциллятора которого соответствует линии «1» в спектре, представляет собой линейную комбинацию (9), в которой доминирует пара двух дипольных переходов НОМО–LUMO  $5g \rightarrow 6h$  между электронными и дырочными одночастичными состояниями с бескорневыми радиальными волновыми функциями  $P_{nl}(r)$  и всеми возможными проекциями углового момента. При этом значения  $|Y_{5g \rightarrow 6h}| \approx 0.3$  для обеих компонент, а соотношения  $|Y|/X$  для этих переходов составляют  $\sim 0.6$  и  $\sim 0.7$ , соответственно, для электронной и дырочной подсистем. Вклад остальных одночастичных состояний остается незначительным и не оказывает заметного влияния на характер этого многочастичного возбуждения.

Таким образом, колебательная мода с частотой 0.82 эВ обладает всеми признаками поверхностного плазмонного резонанса «традиционного» транс-

ляционного типа, при котором возбуждены преимущественно радиальные степени свободы. Напротив, среди коэффициентов  $Y$ , соответствующих линии «2», отсутствуют значения, превышающие  $10^{-2}$ , и, хотя суммирование (9) включает в себя сравнимые по величине вклады нескольких одночастичных дипольных переходов, эта мода не может быть отнесена к коллективным плазмонным возбуждениям.

Следовательно, в пределе низких значений потенциального барьера между ядром и оболочкой в электронно-дырочном комплексе под воздействием внешнего электромагнитного поля возбуждается коллективная гармоническая мода, спектральная линия которой в результате межчастичных взаимодействий оказывается уширена и фрагментирована на отдельные линии в спектре фотопоглощения, основной пик среди которых сохраняет свойства дипольного поверхностного плазмона трансляционного типа.

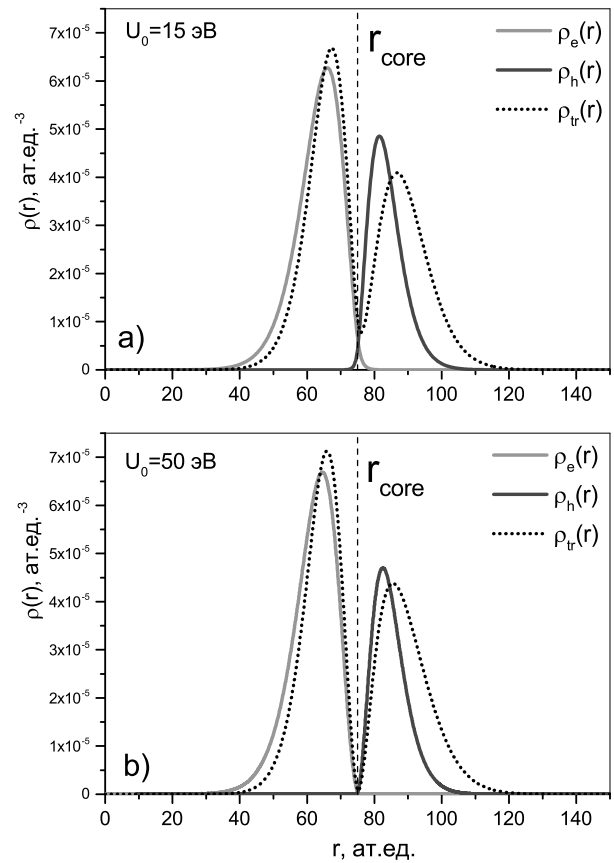
После того, как были выявлены критерии, по которым определяется плазмонная мода в спектре возбужденных состояний двухкомпонентной

электронно-дырочной системы в отсутствие потенциального барьера между ядром и оболочкой, появилась возможность исследовать влияние, которое оказывает потенциальный барьер на оптические свойства квантовой точки в зависимости от его высоты. Расчеты показали, что изменение высоты барьера даже в сравнительно узком диапазоне ее значений может привести к кардинальным изменениям в распределении плотности зарядов в системе и, в итоге, в спектре ее дипольных возбуждений.

Из результатов проведенных вычислений следует, что при относительно малых значениях  $U_0 \lesssim 0.4$  эВ влияние барьера на структуру электронно-дырочного комплекса практически не сказывается. Заметные качественные изменения начинаются при  $U_0 \sim (0.5-0.6)$  эВ. На рис. 3 для примера представлены распределения электронной и дырочной плотности в объеме квантовой точки для различных значений параметра  $U_0$ . Для сравнения также показаны соответствующие распределения плотности дипольных переходов для плазмонной линии, доминирующей в спектре возбужденных состояний.

Из приведенных графиков видно, что даже относительно незначительное изменение высоты барьера в интервале (0.82–0.89) эВ вызвало заметное перераспределение плотности заряда дырочной подсистемы и, как результат, смещение плотности переходов к границе между ядром и оболочкой. Помимо этого изменился сам характер распределения плотности переходов. Если при  $U_0 = 0.82$  эВ, как и в случае отсутствия барьера, максимум плотности переходов приходился на внешнюю границу распределения зарядовой плотности, что свидетельствует о преобладании в колебательном процессе радиально-направленного движения, то уже при  $U_0 = 0.89$  эВ наблюдается заметное перекрытие функций распределения плотностей зарядов и дипольных переходов, что косвенно свидетельствует о возбуждении не только радиальных, но и угловых (вращательных) степеней свободы вблизи границы ядра. Дальнейшее увеличение высоты барьера, как видно из графиков, приводит к постепенному пространственному разделению электронов и дырок в системе. Так при  $U_0 = 2.5$  эВ положительные и отрицательные носители зарядов уже почти полностью разделены, а в распределении плотности переходов у плазмона появились отдельные «электронный» и «дырочный» максимумы. При этом функция распределения плотности переходов в значительной степени повторяет распределение плотности зарядов, в особенности это заметно для электронной подсистемы, что

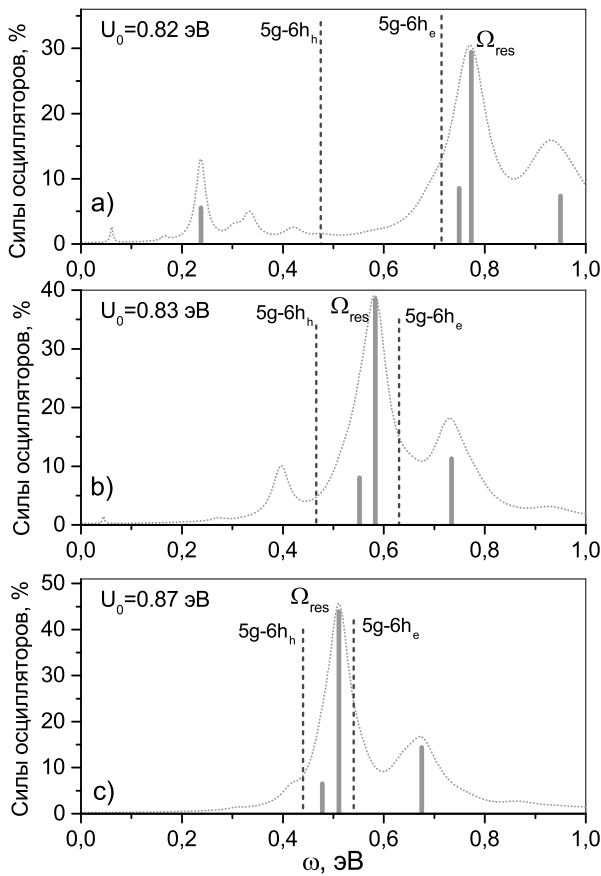
свидетельствует о преобладании в плазмонной моде колебаний вращательного типа.



**Рис. 4.** Радиальные распределения плотности дипольных переходов  $\rho_{tr}(r)$  (в относительных единицах) для плазмонной моды на фоне распределения зарядовой плотности электронной и дырочной компонент для значений высоты барьера  $U_0 = 15$  эВ (а) и 50 эВ (б)

На рис. 4 (а, б) в качестве иллюстрации изображены распределения плотности зарядов и плотности переходов в пределе больших значений высоты барьера  $U_0 = 15$  эВ и  $U_0 = 50$  эВ. Вид функции распределения плотности переходов в электронной подсистеме практически в точности воспроизводит распределение плотности заряда, из чего следует, что в колебаниях плазмонной моды радиальное движение электронов заморожено и возбуждены только угловые (вращательные) степени свободы. В то же время для дырочной подсистемы ситуация несколько иная, в ее плазмонных колебаниях все еще присутствуют как угловые, так и радиальные степени свободы. Тем не менее, судя по тому, что при увеличении  $U_0$  от 15 до 50 эВ функции распределения практически не изменились, этот барьер можно условно

считать бесконечно высоким, при котором электроны и дырки полностью пространственно разделены.



**Рис. 5.** Распределения сил осцилляторов (17) (в % от правила сумм) при значениях высоты потенциального барьера 0.82 (a), 0.83 (b) и 0.87 эВ (c). Огибающие соответствующих сечений фотопоглощения показаны тонкими пунктирными линиями. Штриховыми линиями отмечены частоты двух основных одночастичных переходов  $5g - 6h$  для электронной и дырочной подсистем

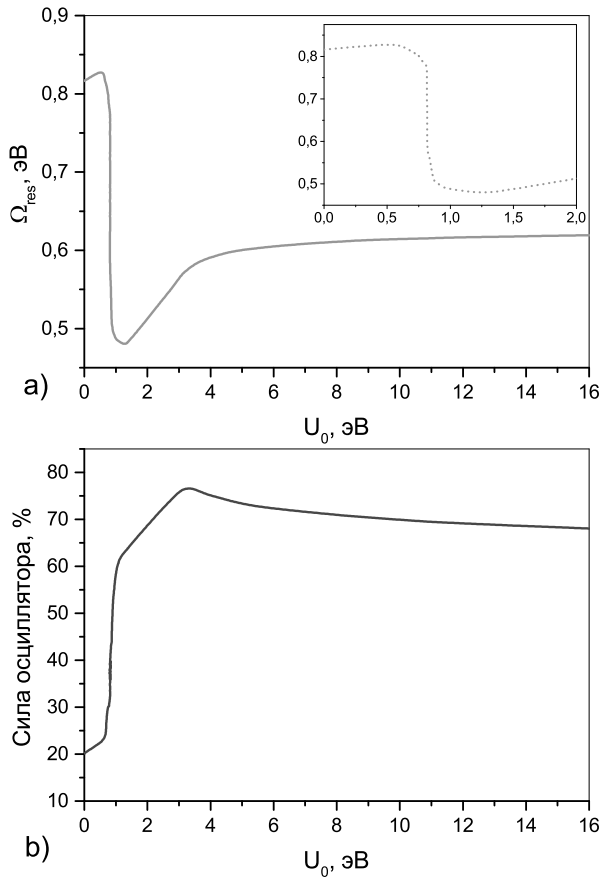
Перестройка структуры электрон-дырочного комплекса при изменении высоты барьера между ядром и оболочкой наноразмерной квантовой точки в свою очередь приводит к изменению всего спектра возбужденных состояний системы, в особенности положения доминирующей линии плазмонного резонанса. На рис. 5 приведены распределения сил осцилляторов, рассчитанные в рамках ПСФО для трех значений высоты потенциального барьера в интервале от 0.82 до 0.87 эВ, в котором наблюдалось наиболее значительное уменьшение перекрытия плотностей заряда электронной и дырочной подсистем и указывало на качественное изменение структуры всего комплекса. Как и в

ситуации с  $U_0 = 0$ , на графиках также были построены сечения фотопоглощения при помощи лоренцевых профилей, ширина которых в данном случае была выбрана как  $\Gamma_k = 0.05\Omega_k$ , а также показаны положения основных линий одночастичных переходов.

Из графиков рис. 5 a-c видно, что во всех случаях в сечениях фотопоглощения, показанных тонкими сплошными линиями присутствует доминирующий плазмонный пик, частота которого на рисунках отмечена как  $\Omega_{res}$ . При этом, как следует из рис. 5 a, b, увеличение высоты барьера всего на 10 мэВ приводит к смещению резонансной линии с 0.77 до 0.58 эВ, то есть практически на 25 %. Также наблюдается заметное перераспределение спутных линий в спектре, которые, как и в случае  $U_0 = 0$ , мы не причисляем к возбуждениям плазмонного типа, несмотря на то, что на их долю по-прежнему приходится заметная часть сил осцилляторов.

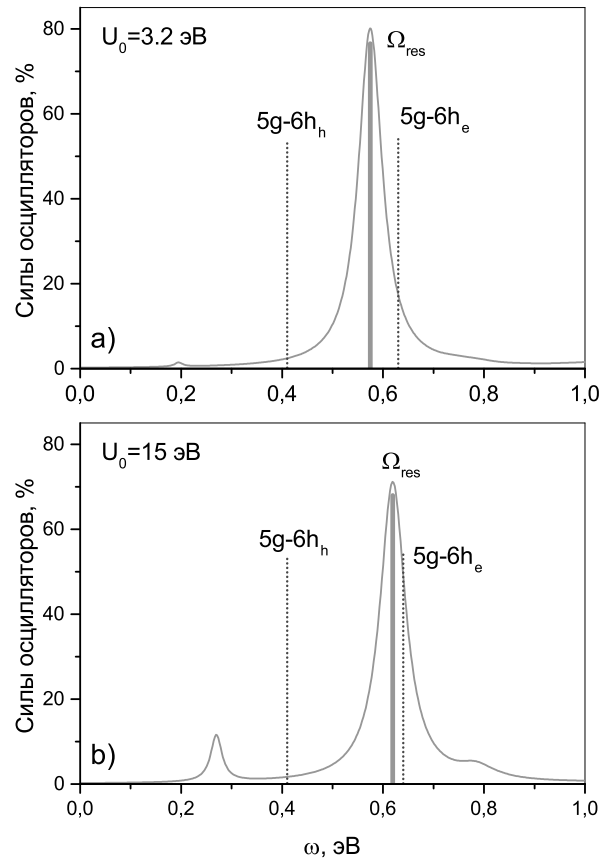
Как видно из рис. 6 a, на котором представлена зависимость частоты плазмонного пика от высоты потенциального барьера в широком диапазоне изменения  $U_0$ , именно на интервал 0.6 до 0.9 эВ, в котором наблюдалось наиболее существенное уменьшение перекрытия плотностей электронов и дырок, приходится и область наиболее быстрого изменения плазмонной частоты, вызванного включением вращательных степеней свободы в коллективном движении частиц. При дальнейшем повышении барьера происходит постепенный переход резонансной моды от дипольного плазмона трансляционного типа к вращательному поверхностному плазмону в пределе высоких значений  $U_0$ , при которых электроны и дырки пространственно разделены барьером, как это видно на рис. 4 a, b. Этот факт также подтверждается приведенной на рис. 6 b соответствующей зависимостью силы осциллятора плазмонной моды, которая сперва быстро возрастает по мере включения вращательных колебаний и достигает своего максимума при  $U_0 \sim 3.2$  эВ, когда в движении участвуют одновременно и угловые и радиальные степени свободы, а затем при постепенном замораживании последних стремится к асимптотическому пределу  $\sim 66\%$ , как у поверхностного плазмона чисто вращательного типа [33, 34].

На рис. 7 в качестве примера приведены спектры возбужденных состояний электронно-дырочного комплекса при  $U_0 = 3.2$  эВ (a) и 15 эВ (b). В обоих случаях в сечении фотопоглощения доминирует один основной плазмонный пик, частота и сила осциллятора которого определяется



**Рис. 6.** *a* — Зависимость частоты плазмонного резонанса  $\Omega_{\text{res}}$  от высоты потенциального барьера  $U_0$  в приближении ПСФО. На вставке отдельно показана эта же зависимость в области наиболее существенного ее изменения. *b* — Зависимость силы осциллятора плазмонной моды (в % от правила сумм) от высоты потенциального барьера

согласно зависимости из рис. 6. При этом при  $U_0 = 3.2$  эВ плазменная мода включает в себя 80% сил осцилляторов, в то время, как спутниковые линии, соответствующие одночастичным переходам практически отсутствуют. При  $U_0 = 15$  эВ сила осциллятора поверхностного плазмона составляет 67% правила сумм, что соответствует чисто вращательному типу возбуждения. Важно также отметить, что отношение резонансных частот главных плазмонных линий при  $U_0 = 15$  эВ и в предельном случае  $U_0 = 0$  эВ оказалось равным 0.83, что очень близко к отношению плазмонных частот в тонком сферическом слое и равномерно заряженном шаре, равному  $\sqrt{2/3}$ , что также косвенно подтверждает трансформацию плазмонной моды из трансляционной во вращательную при изменении высоты барьера между ядром и оболочкой двух-



**Рис. 7.** Распределения сил осцилляторов (17) при (*a*)  $U_0 = 3.2$  эВ (*b*)  $U_0 = 15$  эВ. Огибающие соответствующих сечений фотопоглощения показаны тонкими сплошными линиями. Тонкими пунктирными линиями отмечены частоты двух основных одночастичных переходов  $5g - 6h$  для электронной и дырочной подсистем

компонентной квантовой точки с гетеропереходом второго рода.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В представленной работе теоретически исследованы оптические свойства сферически-симметричных наноразмерных квантовых точек типа «ядро-оболочка» с гетеропереходом второго рода, содержащих  $N = 50$  пар электронов и дырок. Потенциальный барьер, разделяющий между собой внутреннюю и наружную части системы, был описан в рамках модели ступенчатого потенциала. Для описания процессов взаимодействия носителей заряда между собой и с внешним электромагнитным полем был использован теоретический подход, основанный на приближении Хартри-Фока и приближении случайных фаз с обменом. Оказалось, что

по мере повышения высоты барьера кардинальным образом меняется распределение плотностей заряда электронов и дырок, что наглядно проявилось в резком уменьшении их перекрытия при достижении некоторого порогового значения потенциала.

Важно отметить, что перестройка структуры комплекса происходит в сравнительно узком диапазоне значений высоты барьера.

Дальнейшее увеличение его высоты обеспечивает эффективное пространственное разделение положительных и отрицательных зарядов, формируя двухкомпонентную систему в виде двойного заряженного слоя вблизи границы раздела.

В приближении случайных фаз с обменом был исследован спектр возбужденных состояний двухкомпонентной системы при различных значениях высоты потенциально барьера, разделяющего внутреннюю и наружную части системы. Было продемонстрировано, что свойства оптических спектров определяются наличием в них гигантского дипольного резонанса, связанного с возбуждением коллективных плазмонных колебаний. При этом оказалось, что характер колебательного движения частиц при плазмонном резонансе принципиально меняется при увеличении высоты барьера в сравнительно узком диапазоне его значений с радиального (трансляционного) на вращательное, что сопровождается резким изменением резонансной частоты, сохраняя гармонический характер колебаний носителей заряда. Важно отметить, что высота барьера, при которой происходит «переключение» плазмонных колебаний с радиальных на вращательные определяется только пространственным распределением плотности носителей заряда и их концентрацией, что характерно для гармонических коллективных мод в коррелированных многочастичных ансамблях.

## ЛИТЕРАТУРА

1. В.В.Климов, *Наноплазмоника*, Москва, Физматлит (2009).
2. *Quantum Plasmonics*, ed. by S. I. Bozhevolniy et al., Springer International Publishing, Switzerland (2016).
3. *Plasmonics. From Basics to Advanced Topics*, ed. by S. Enoch, N. Bonod, Springer Series in Optical Sciences **167**, Berlin, Springer Verlag (2012).
4. M. S. Tame, K. R. McEnery, S. K. Ozdemir et al., *Nature Physics* **9**, 329 (2013).
5. J. A. Scholl, A. L. Koh, and J. A. Dionne, *Nature* **483**, 421 (2012).
6. M. Brack, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 667 (1993).
7. M. Harb, F. Rabilloud, D. Simon et al., *J. Chem. Phys.* **129**, 194108 (2008).
8. F. Xuan and C. Guet, *Phys. Rev. A* **94**, 043415 (2016).
9. U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metallic Clusters*, Springer Series in Materials Science **65**, Berlin, Springer Verlag (1995).
10. U. Kreibig and P. Zacharias, *Z. Physic* **231**, 128 (1970).
11. I. Kriegel, F. Scotognella, and L. Manna, *Physics Reports* **674**, 1 (2017).
12. *Nanocrystal Quantum Dots*, ed. by V. I. Klimov, CRC press (2010).
13. R. C. Monreal, T. J. Antosiewicz, and S. P. Appel, *New J. of Physics* **15**, 083044 (2013).
14. F. Scotognella, G. Della Valle, A. R. S. Kandada et al., *Eur. Phys. J. B* **86**, 154 (2013).
15. Y. Xie, L. Carbone, C. Nobile et al., *ACS Nano* **7**, 7352 (2013).
16. A. L. Routzahn, S. L. White, L.-K. Fong et al., *Isr. J. Chem.* **52**, 983 (2012).
17. J. M. Luther, P. K. Jain, and T. Ewers et al., *Nature Materials* **10**, 361 (2011).
18. J. A. Faucheaux, A. L. D. Stanton, and P. K. Jain, *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 976 (2014).
19. S. D. Lounis, E. L. Runnerstrom, A. Bergerud et al., *J. Am. Chem. Soc.* **136**, 7110 (2014).
20. T. O. Cheche, V. Barna, and I. Stamatina, *J. of Optoelectronics and Advanced Materials* **15**, 615 (2013).
21. M. A. El-Sayed, *Acc. Chem. Res.* **37**, 326 (2004).
22. S.-W. Hsu, K. On, and A. T. Rao, *J. Amer. Chem. Soc.* **133**, 19072 (2011).
23. X. Liu and M. T. Swihart, *Chem. Soc. Rev.* **43**, 3908 (2014).
24. G. Garcia, R. Buonsanti, E. L. Runnerstrom et al., *Nano Lett.* **11**, 4415 (2011).

25. M. Kanehara, H. Koike, T. Yoshinaga, and T. Teranishi, *J. Am. Chem. Soc.* **131**, 17736 (2009).
26. D. J. Rowe, J. S. Jeong, K. A. Mkhoyan, and U. R. Kortshage, *Nano Lett.* **13**, 1317 (2013).
27. Zh. Sun and B. Zhao, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 221106 (2007).
28. H. Zhang, V. Kulkarni, E. Prodan et al., *J. Phys. Chem. C* **118**, 16035 (2014).
29. A. M. Schimpf, N. Thakkar, C. E. Gunthardt et al., *ACS Nano*, **8**, 1065 (2014).
30. A. M. Schimpf, C. E. Gunthardt, J. D. Rinehart et al., *J. Am. Chem. Soc.* **135**, 16569 (2013).
31. L. G. Gerchikov, C. Guet, and A. N. Ipatov, *Phys. Rev. A* **66**, 053202 (2002).
32. A. N. Ipatov, L. G. Gerchikov, and C. Guet, *J. Comp. Mat. Sci.* **35**, 347 (2006).
33. A. N. Ipatov, L. G. Gerchikov, and C. Guet, *Nanoscale Res. Lett.* **13**, 297 (2018).
34. Л.Г.Герчиков, А.Н.Ипатов, *ЖЭТФ* **159**, 1047 (2021).
35. R. Kostić, and D. Stojanović, *J. of Optoelectronics and Advanced Materials* **6**, 121 (2012).
36. А.В.Федоров, И.Д.Рухленко, А.В.Баранов, С.Ю.Кручинин, *Оптические свойства полупроводниковых квантовых точек*, Наука, Санкт-Петербург (2011).
37. А.И.Гусев, *Наноматериалы, наноструктуры, нанотехнологии*, Физматлит, Москва (2009).
38. S. V. Gaponenko, *Optical properties of semiconductor nanocrystals*, Cambridge University Press, Cambridge (1998).
39. *Core/Shell Quantum Dots. Synthesis, Properties and Devices*, ed. by X. Tong and Z. M. Wand, *Lecture Notes in Nanoscale Science and Technology (book series)* **28**, Springer (2020).
40. V. I. Klimov et al., *Nature* **447**, 441 (2007).
41. D. Vasudevan, R. R. Gaddam, A. Trinchi, and I. Cole, *J. of Alloys and Compounds* **636**, 395 (2015).
42. Q. Q. Dou et al., *Scientific Reports* **5**, 8252 (2015).
43. R. A. Loukanov et al., *Colloids Surf. A.* **245**, 9 (2004).
44. *Nanomaterials for the Life*, Vol.6, *Semiconductor nanomaterials*, ed. by Ch. Kumar, Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim (2010).
45. S. Kim, B. Fisher, H.-J. Eisler, and M. Bawendi, *J. Am. Chem. Soc.* **125**, 11467 (2003).
46. M. Tytus et al., *J. of Physics: Conference Series* **104**, 012011 (2008).
47. F. Iikawa et al., *Brazilian J. of Physics*, **34**, 555 (2004).
48. Y. Shoji, R. Tamaki, and Y. Okada, *AIP Advances* **7**, 065305 (2017).
49. *Clusters of Atoms and Molecules*, ed. by H. Haberland, Vol. I, II, *Springer Series in Chemical Physics*, Vol. **52, 56**, Berlin, Springer (1994).
50. W. A. de Heer, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 611 (1993).
51. C. R. C. Wang, S. Pollack, D. Cameron, and M. M. Kappes, *J. Chem. Phys.* **93**, 3787 (1993).
52. C. Guet and W. R. Johnson, *Phys. Rev. B* **45**, 11283 (1992).
53. B. Palpant, B. Prével, J. Lermé et al., *Phys. Rev. B* **57**, 1963 (1998).
54. А.Н. Ипатов, В.К. Иванов, Р.Г. Полозков *ЖЭТФ* **144**, 727 (2013).
55. А.Н. Ипатов, Л.Г. Герчиков, *ЖЭТФ* **145**, 108 (2014).
56. Ipatov A. N., Ivanov V. K., and Polozkov R. G. *The European Phys. J. D* **68**, 249 (2014).
57. Ipatov A. N. and Gerchikov L. G., *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 185101 (2014).
58. Л.Г. Герчиков, А.Н. Ипатов, *ЖЭТФ* **146**, 1014 (2014).
59. A. Ipatov, L. Gerchikov, and J. Christiano, *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **92**, 7 (2017).
60. D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, John Wiley and Sons (1999).
61. T. Shelawati, M. S. Nurisya, A. Mazliana et al., *Superlattices and Microstructures* **131**, 95 (2019).

62. G. Mie, *Ann. Phys.* **25**, 377 (1908).
63. G. F. Bertsch, R. A. Broglia, *Oscillations in Finite Quantum Systems*, Cambridge University press, UK (1994).
64. *Электронно-дырочные капли в полупроводниках*, под ред. Л.В.Келдыша и К.Д.Джеффриса, Наука, Москва (1988).
65. Ll. Serra, F. Garcias, J. Navarro et al., *Phys. Rev. B* **46**, 9369 (1992).
66. D. A. Varshalovich, A. N. Moscalev, and V. K. Khersonskii, *Quantum Theory of Angular Momentum*, World Scientific, Singapore (1988).
67. M. Ya. Amusia and L. V. Chernysheva, *Computation of Atomic Processes*, IOP Publishing Ltd (1997).
68. R. Dreizler and E. Gross, *Density Functional Theory*, Plenum Press, New York (1995).
69. И.И.Собельман, *Введение в теорию атомных спектров*, Наука, Москва (1977).
70. T. Ihn, *Semiconductor Nanostructures: Quantum States and Electronic Transport*, Oxford University Press (2010).
71. F. Rossi, *Theory of Semiconductor Quantum Devices: Microscopic Modeling and Simulation Strategies*, Springer Science and Business Media, NY (2011).
72. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics*, Pergamon Press (1977).
73. C. de Boor, *A Practical Guide to Splines*, Springer Verlag, New York (1978).
74. J. Sapirstein and W. R. Johnson, *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **29**, 5213 (1996).
75. W. E. Ormand, J. M. Pacheco, S. Sanguinetti et al., *Z. Phys. D* **24** 401 (1992).
76. G. F. Bertsch and D. Tomanek, *Phys. Rev. B* **40**, 2749 (1989).
77. J. M. Pacheco and R. A. Broglia, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 400 (1989).
78. J. M. Pacheco and W. D. Schöne, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4986 (1997).
79. F. Della Salla, R. Rousseau, A. Görling, and D. Marx, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 183401.1 (2004).
80. C. Yannouleas and R. A. Broglia, *Ann. Phys. (NY)* **217**, 105 (1991).