

На правах рукописи

Иванов Константин Александрович

**ИССЛЕДОВАНИЕ СПОНТАННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В
ПЕРИОДИЧЕСКИХ НАНОСТРУКТУРАХ**

Специальность: 01.04.07 - «Физика конденсированного состояния»

Автореферат

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург — 2019

Работа выполнена в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики» (Университет ИТМО) Министерства науки и высшего образования Российской Федерации

Научный
руководитель:

Калитеевский Михаил Алексеевич

Доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник лаборатории наноэлектроники федерального государственного бюджетного учреждения высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук».

Официальные
оппоненты:

Мерзликин Александр Михайлович

Доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории №1 – теоретической электродинамики конденсированного состояния федерального государственного бюджетного учреждения науки «Институт теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук».

Барышев Александр Валерьевич

Доктор физико-математических наук, начальник оптической лаборатории федерального государственного унитарного предприятия «Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова» (ФГУП «ВНИИА»).

Ведущая
организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Научно технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур Российской академии наук, г. Санкт-Петербург (НТИЦ микроэлектроники РАН)

Защита состоится «28» ноября 2019 года в 16:00 на заседании Диссертационного совета Д 002.269.01 при федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук».

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Академического университета и на сайте <http://www.spbau.ru> в разделе «Диссертационный совет».

Автореферат разослан « » ____ 2019 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 002.269.01,

доктор физико-математических наук



Максимов М. В.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Периодическая модуляция свойств материалов (например, потенциальной энергии или диэлектрической проницаемости), является фактором, определяющим свойства многих естественных и искусственных объектов. Зонная структура и дифракция рентгеновских лучей являются следствием периодического расположения атомов в кристаллах [1, 2]. Развитие технологий позволило создавать искусственные объекты, период которых имеет порядок длины волны Де-Бройля для электронов (например, сверхрешётки полупроводниковых материалов [3]) или длины волны света (брэгговские отражатели [4]). Оба типа объектов активно используются в современных технологиях для создания оптоэлектронных устройств: вертикальные лазеры [5], сверхрешётки в лазерах [6], квантово-каскадные лазеры [7].

Концепция полупроводниковых сверхрешёток была изначально предложена для создания генераторов высокочастотного излучения на основе блоховских осцилляций около полувека назад [8, 9]). Позже в экспериментальных работах публиковались сведения о наблюдении излучения на блоховской частоте [10], а также о модуляции электромагнитного излучения и отрицательной дифференциальной проводимости в сверхрешётках AlAs/GaAs [11, 12]. Кроме того, экспериментальные исследования естественных полупроводниковых сверхрешёток на основе политипов карбида кремния продемонстрировали линию люминесценции в электрическом поле, частота которой линейно растёт с ростом электрического поля [13], что свидетельствует об излучении электромагнитной волны вследствие блоховских осцилляций. При этом в экспериментах наблюдалось появление дополнительных линий, в то время как теория блоховских осцилляций предполагает излучение только на одной частоте. Это явление требует дополнительного теоретического исследования.

Брэгговские отражатели, представляющие собой периодические последовательности пар диэлектрических слоёв, уже около века используются в качестве компонентов оптических схем [4]. В последние десятилетия, брэгговские структуры активно используются для создания лазеров разных типов: вертикально-излучающих лазеров [14], лазеров с распределённой обратной связью [15, 16], волоконных лазеров с брэгговской решёткой [17]. Около 30 лет назад Ивченко и др. [18] предположили, что взаимодействие света с экситонами в квантовых ямах может быть усилено в случае брэгговского упорядочения квантовых ям, когда расстояние между ямами соответствует половине длины волны света, излучаемого экситоном. Успехи в развитии технологии молекулярно-пучковой эпитаксии позволили создавать структуры, в которых стабильная скорость роста поддерживается на протяжении промежутка времени, позволяющего вырастить брэгговскую структуру квантовых ям с сохранением периода, что позволило экспериментально пронаблюдать увеличение

коэффициента экситонного отражения свыше 50% [19] и подавление спонтанной эмиссии вследствие формирования экситонной запрещённой зоны [20]. Представляется важным провести детальный количественный анализ эффекта Парселла [21] для системы брэгговских квантовых ям и рассчитать вероятность спонтанной эмиссии от частоты света и направления эмиссии.

Бурное развитие плазмоники [22, 23] привлекло внимание к свойствам периодических металлодиэлектрических структур. В некоторых работах высказываются предположения о гигантском увеличении вероятности спонтанной эмиссии в периодических металлодиэлектрических слоистых структурах [24], в других работах высказываются сомнения относительно достижимости такого увеличения вследствие поглощения света в металле [25]. Таким образом, представляется важным провести систематический анализ эффекта Парселла в периодических металлодиэлектрических структурах проанализировать вероятность спонтанного излучения из таких структур как внутри светового конуса, так и вне его.

Основной целью работы является теоретическое исследование спонтанной эмиссии излучения в различных периодических средах: эмиссии света вследствие блоховских осцилляций в сверхрешётках полупроводниковых материалов и эффекта Парселла в брэгговских квантовых ямах и периодических металлодиэлектрических структурах.

Цель достигается решением следующих **задач**:

- 1) Исследование вероятностей переходов для электронов и дырок между штатковскими состояниями в смещённых сверхрешётках, в том числе и в сверхрешётках со сложной минизонной структурой.
- 2) Исследование зависимости вероятности спонтанной эмиссии излучения от частоты и направления эмиссии для конечной и бесконечной брэгговской структуры квантовых ям, сравнение теоретических результатов с экспериментальными.
- 3) Исследование зависимости вероятности спонтанной эмиссии излучения от частоты и направления эмиссии для конечных и бесконечных периодических металлодиэлектрических структур как внутри светового конуса, так и вне его, сопоставлением экспериментально измеренных времён затухания люминесценции с теоретически рассчитанным коэффициентом Парселла.

Научная новизна работы состоит в том, что в ней:

- 1) Исследованы блоховские осцилляции в сверхрешётках со сложной минизонной структурой (при наличии щели в минизоне), проанализирован спектр излучения в таких системах. Исследована возможность переходов не только между ближайшими штатковскими состояниями, но и переходы через одно, через два и более штатковских состояния (ангармонические блоховские осцилляции), проанализирован спектр излучения в таких системах.

2) Проведены теоретические и экспериментальные исследования люминесценции системы брэгговских квантовых ям на основе монослоёв арсенида индия в арсениде галлия, исследована зависимость вероятности спонтанной эмиссии от частоты и угла, исследована динамика люминесценции.

3) Экспериментально и теоретически исследована зависимость динамики фотолюминесценции и вероятности спонтанной эмиссии в периодических металлодиэлектрических структурах, образованных слоями серебра и органического светоизлучающего материала, проанализировано влияние поглощения света в металле на вероятность спонтанной эмиссии.

Практическая значимость работы заключается в том, что:

во-первых, теоретически показано, что переходы между штарковскими состояниями в сверхрешётках в электрическом поле возможны не только между соседними состояниями, но и через одно, через два и более штарковских состояний. При этом в спектре излучения могут появляться линии с частотами, кратными блоховской частоте. В сверхрешётках со сложной минизонной структурой, например, при наличии щели в минизоне, встречающейся в некоторых политипах карбида кремния, возможно появление нескольких линий излучения, обусловленных блоховскими осцилляциями, при этом их частоты не кратны друг другу;

во-вторых, теоретически показана и экспериментально продемонстрирована возможность усиления спонтанной эмиссии системой брэгговских квантовых ям;

в-третьих, теоретически и экспериментально исследована вероятность спонтанной эмиссии в периодических металлодиэлектрических структурах с органическим светоизлучающим материалом и установлено, что экспериментально достижимая величина коэффициента Парселла в таких структурах ограничена поглощением света в металле.

Основные методы исследования

Используемые в данной работе численные методы включают в себя: моделирование методом матриц переноса для волновых функций носителей заряда и электромагнитного поля; вычисление вероятности спонтанной эмиссии методом S-квантования; моделирование свойств кристаллов методами теории функционала плотности. Экспериментальные методы включали в себя измерения интенсивности фотолюминесценции, в т.ч. с пространственным и временным разрешением.

Основные положения, выносимые на защиту

1) Теоретически установлено, что в сверхрешётках при приложении электрического поля имеют место блоховские осцилляции на частотах, кратных основной блоховской частоте, сопровождающие дипольные переходы через один или несколько энергетических уровней. В сверхрешётках, имеющих щель в

минизоне, возможны блоховские осцилляции на различных частотах, не кратных друг другу.

2) Теоретически и экспериментально установлено, что в системе брэгговских квантовых ям происходит увеличение скорости спонтанной эмиссии излучения. Область максимального усиления сосредоточена вблизи кривой, описывающей брэгговское условие как функцию угла и частоты. При этом в спектре люминесценции для интервалов частот и направлений эмиссии вблизи брэгговской зависимости наблюдается появление линий, характеризующихся сверхлинейной зависимостью интенсивности излучения от накачки.

3) Установлено, что усиление спонтанной эмиссии в металлодиэлектрических структурах в области частот, соответствующих поверхностному плазмону, ограничено поглощением света в металле. Экспериментально и теоретически показано, что периодических металлодиэлектрических структурах на основе серебра и 4,4'-бис(N-карбазолил)-1,1'-бифенила (СВР) величина коэффициента Парселла не превышает 10.

Апробация работы

Результаты работы докладывались на конференциях «Days on Diffraction» (Санкт-Петербург, 2016, 2018), «Nanostructures: Physics and Technology 2016» (Санкт-Петербург), «Nanostructures: Physics and Technology 2017» (Минск), «Quantum Nanophotonics Conference» (Бенаске, Испания, 2017), «Photon16 Conference» (Лидс, Великобритания, 2016), «Saint-Petersburg OPEN 2018» (Санкт-Петербург), «МЕТА 2017» (Сеул, Южная Корея), «ICPS 2018» (Лион, Франция), международном симпозиуме «Нанопизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 2016, 2017, 2018), а также на семинарах в Академическом университете РАН (Санкт-Петербург), ФТИ им. А. Ф. Иоффе РАН (Санкт-Петербург), ИФМ РАН (Нижний Новгород), Университете ИТМО (Санкт-Петербург), Техническом Университете Дрездена (Дрезден, Германия) Университете Клода Бернарда (Лион, Франция), Университете Дарема (Дарем, Англия).

Публикации

По теме диссертации опубликовано 11 печатных работ в рецензируемых научных журналах, из которых 3 — в журналах, входящих в перечень ВАК РФ, 8 — в журналах, индексируемых в системах Scopus или Web of Science.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, 3 глав, заключения, списка используемой литературы и 3 приложений. Она содержит 100 страниц текста, включая 66 формул (с нумерацией) и 36 рисунков. Список использованной литературы включает 127 наименований.

Личный вклад автора. В диссертации изложены результаты, полученные автором лично, либо при его непосредственном участии. Автор самостоятельно развивал теоретические модели и исследовал их численно, занимался проектированием структур для исследования и анализом экспериментальных результатов.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** представлено обоснование актуальности работы, сформулированы цели и научная новизна проведённых исследований, обоснована практическая значимость, перечислены основные положения, выносимые на защиту, а также кратко изложено содержание диссертации. Обзор литературы дан отдельно в каждой главе.

Глава 1 «Ангармонические блоховские осцилляции в сверхрешётках» посвящена изучению возможности излучения на частотах, кратных блоховской частоте ω_B , определяемой выражением

$$\hbar\omega_B = eEd \quad (1)$$

или отличных от неё, в сверхрешётке с периодом d , помещённой в электрическое поле с амплитудой E . Такая задача представляет интерес в связи экспериментально обнаруженным терагерцовым излучением из сверхрешёток карбида кремния (SiC) в электрическом поле [13]. Карбид кремния является естественной сверхрешёткой со сложной зонной структурой, в частности, обладающей щелью в минизоне [26].

В §1.1 приведён обзор литературы по теме главы и даётся квазиклассическое описание блоховских осцилляций на основе представления о наличии в дисперсионной зависимости участков с отрицательной эффективной массой [10], а также более строгое квантово-механическое описание [3]. В рамках данного подхода можно показать, что в электрическом поле минизона преобразуется в совокупность локализованных состояний — «штарковскую лестницу» (рис.1 а,с), причём энергетический интервал между штарковскими состояниями определяется формулой (1).

В §1.2 исследуются блоховские осцилляции в сверхрешётке с простой минизонной [A2]. Пространственно-непрямые переходы между соседними штарковскими состояниями (волновые функции которых показаны на рис. 1с) сопровождаются излучением на блоховской частоте ω_B и протеканием электрического тока в структуре. Вероятность перехода между штарковскими состояниями можно вычислить путём использования «золотого правила Ферми» по формуле

$$P = \alpha |\langle \Psi_i | x | \Psi_j \rangle|^2 \frac{n^2 \omega^3}{\pi c^2} \quad (2)$$

(где α — постоянная тонкой структуры, n — показатель преломления материала) [2].

С учётом оценки величины матричного элемента [27]

$$|\langle \Psi_i | x | \Psi_j \rangle| = \frac{s}{4} \quad (3)$$

где характерный размер штарковского состояния s связан с шириной минизоны V выражением $s = V/eE$, можно получить приближенное выражение для вероятности перехода

$$P \approx \frac{\alpha}{16\pi} \left(\frac{nVd}{c\hbar} \right)^2 \omega \quad (4)$$

До недавнего времени считалось, что переходы возможны только между соседними штарковскими состояниями [27], и излучение, обусловленное блоховскими осцилляциями может иметь только частоту ω_B . В то же время можно видеть, что пространственные профили штарковских состояний представляют собой идентичные функции, сдвинутые друг от друга на период сверхрешетки d (рис. 1с), отличные от волновых функций гармонического осциллятора, и правила отбора, действующие для переходов между уровнями гармонического осциллятора, не обязательно должны выполняться для штарковских состояний.

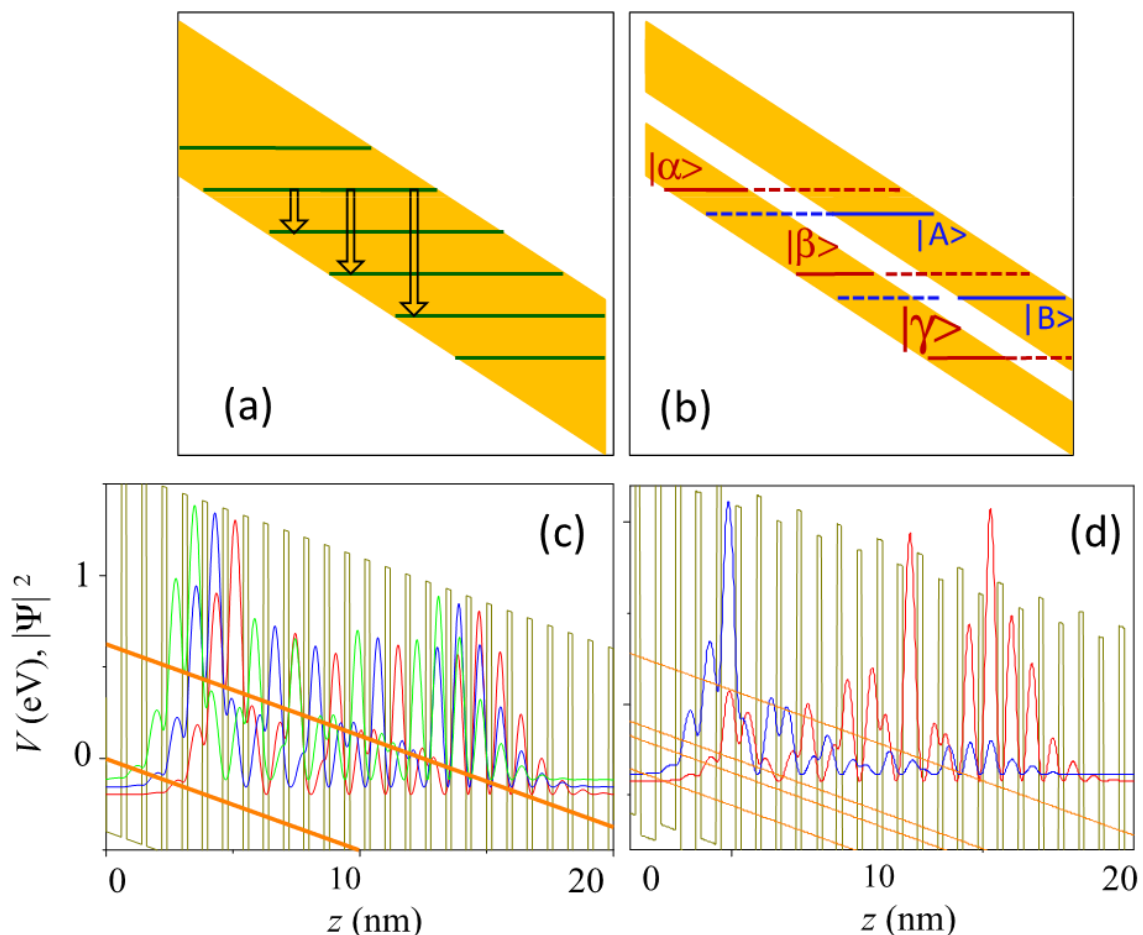


Рисунок 1 – (а) Штарковская лестница электронных уровней в сверхрешётке в электрическом поле. Стрелками обозначены возможные переходы. (б) Штарковская лестница в электрически смещённой сверхрешётке, содержащей щель в минизоне. (с) Квадраты модулей волновых функций для трёх соседних штарковских состояний. (д) Квадраты модулей волновых функций для штарковских состояний типов $|\alpha\rangle$ и $|A\rangle$, показанных на рис. 1б, в сверхрешётке со щелью в минизоне.

На рис. 2а показаны вероятности переходов (рассчитанные путём численного моделирования) между соседними уровнями, а также через один и через два уровня, сопровождаемых излучением на частотах ω_B , $2\omega_B$, и $3\omega_B$, соответственно. Максимальной вероятностью, хорошо описываемой приближенной формулой (4), обладает переход между соседними уровнями. Кроме этого, видно, что вероятность перехода через один уровень и через два уровня также отлична от нуля, хотя и меньше, чем для перехода между соседними уровнями. Излом зависимости $P(f)$ соответствует ситуации, когда размер штарковского состояния s превосходит размер образца, используемого при моделировании. Таким образом, показано, что блоховские осцилляции являются ангармоническими и могут сопровождаться излучением на частотах, кратных блоховской частоте.

В §1.3 рассматривается процесс блоховских осцилляций в сверхрешётках, для которых в минизоне имеется щель в плотности состояний [A1,A2]. Такой тип зонной структуры характерен для естественных сверхрешёток на основе карбида кремния и объясняется сложной структурой плотной упаковки атомных слоёв (например, политип карбида кремния 4H-SiC имеет упаковку слоёв ABCBABCВ, в то время как структура цинковой обманки имеет упаковку ABCABC, а структура вюрцита ABAB).

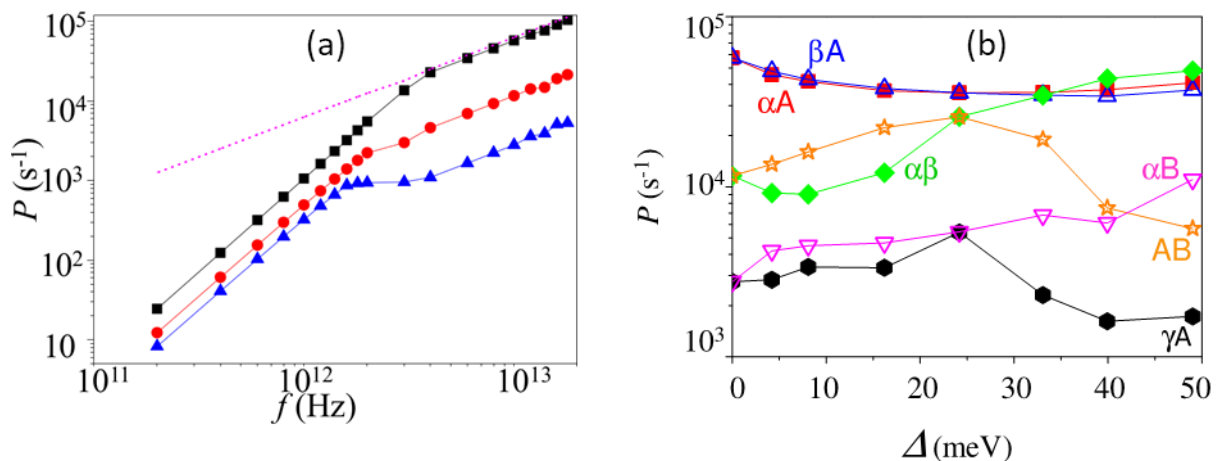


Рисунок 2 – (а) Вероятность перехода между соседними уровнями (квадраты), через один уровень (круги) и через два уровня (треугольники) как функции частоты перехода между соседними уровнями. (б) Зависимости вероятностей переходов между различными уровнями штарковской лестницы (показанными на рис. 1b,d) для сверхрешётки со щелью в минизоне от ширины щели.

Для моделирования такой зонной структуры был использован потенциал, представляющий собой суперпозицию двух потенциалов с кратными периодами (рис. 1d). При помещении такой структуры в электрическое поле в ней возникают два типа штарковских состояний (две «штарковских лестницы»), которые условно можно назвать локализованными в нижней минизоне (состояние $|\alpha\rangle$), и в верхней минизоне (состояние $|A\rangle$), как показано на рис. 1b и 1d. Энергии состояний типа $|\alpha\rangle$ и типа $|A\rangle$ отличны друг от друга, что приводит к большому числу возможных переходов между уровнями, сопровождаемых излучением на

частотах, не кратных брэгговской частоте ω_B . Вероятности таких переходов как функции ширины щели в минизоне показаны на рис. 2b.

В данном случае наибольшей вероятностью, слабо зависящей от ширины минизоны, обладает излучение на частоте, близкой к ω_B . Эта частота соответствует перехода типа αA и αB между соседними по энергии уровнями, принадлежащими разным «штарковским лестницам». В то же время, вероятность перехода через уровень (типа $\alpha\beta$), сопровождаемая излучением на частоте близкой к $2\omega_B$, сильно меняется и при определённом значении ширины щели может приближаться к вероятности излучения на частоте ω_B .

Глава 2 «Эффект Парселла в системе брэгговских квантовых ям» посвящена теоретическому и экспериментальному исследованию спонтанного излучения в брэгговских структурах квантовых ям. Система брэгговских квантовых ям представляет собой периодическую структуру с периодом d , с квантовыми ямами, в которых экситон имеет резонансную частоту ω_{ex} , и для некоторого угла распространения света θ выполняется равенство резонансной частоты экситона и брэгговской частоты ω_0 , зависимость которой от угла определяется выражением

$$\omega_0 = \frac{\pi c}{d\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}} \quad (5)$$

где n - показатель преломления материала, разделяющего квантовые ямы. В §2.1 приведён обзор современной литературы в области брэгговских структур квантовых ям, и описаны методы их моделирования.

В §2.2 приведены результаты теоретического исследования вероятности спонтанной эмиссии в брэгговских квантовых ямах, рассмотрены бесконечные и конечные структуры. Для полноты анализа введено понятие модального коэффициента Парселла, который определяется как отношение вероятности спонтанной эмиссии в элемент телесного угла в заданном направлении для диполя, помещённого в неоднородную структуру, к вероятности для диполя в однородной среде. Интеграл от модального коэффициента Парселла по полному телесному углу есть коэффициент Парселла в общепринятом значении, т.е. отношение обратных радиационных времён жизни для диполя в пространственно-неоднородной структуре и в однородной среде. С помощью теоремы Блоха рассчитаны зависимости модального фактора для бесконечной брэгговской системы квантовых ям (рис. 3) для дизайнов структуры, у которой $\omega_0 < \pi c/nd$, $\omega_0 = \pi c/nd$, $\omega_0 > \pi c/nd$. Показано, что в зонной структуре появляются запрещённые зоны, для которых излучение подавлено, при этом на границах зон вероятность эмиссии может увеличиваться. Уточнены аналитические оценки для положения границ запрещённых зон, положение и форма запрещённых зон определяются взаиморасположением частоты экситона в квантовых ямах ω_{ex} и брэгговской частоты $\omega_0(\theta)$. В конечной брэгговской структуре [A8] в зависимости модального фактора Парселла от частоты и направления эмиссии появляются особенности, которые в целом не меняют общую картину модального

коэффициента Парселла, показанную на рис. 3, в частности, наблюдается усиление эмиссии на границах запрещённых зон.

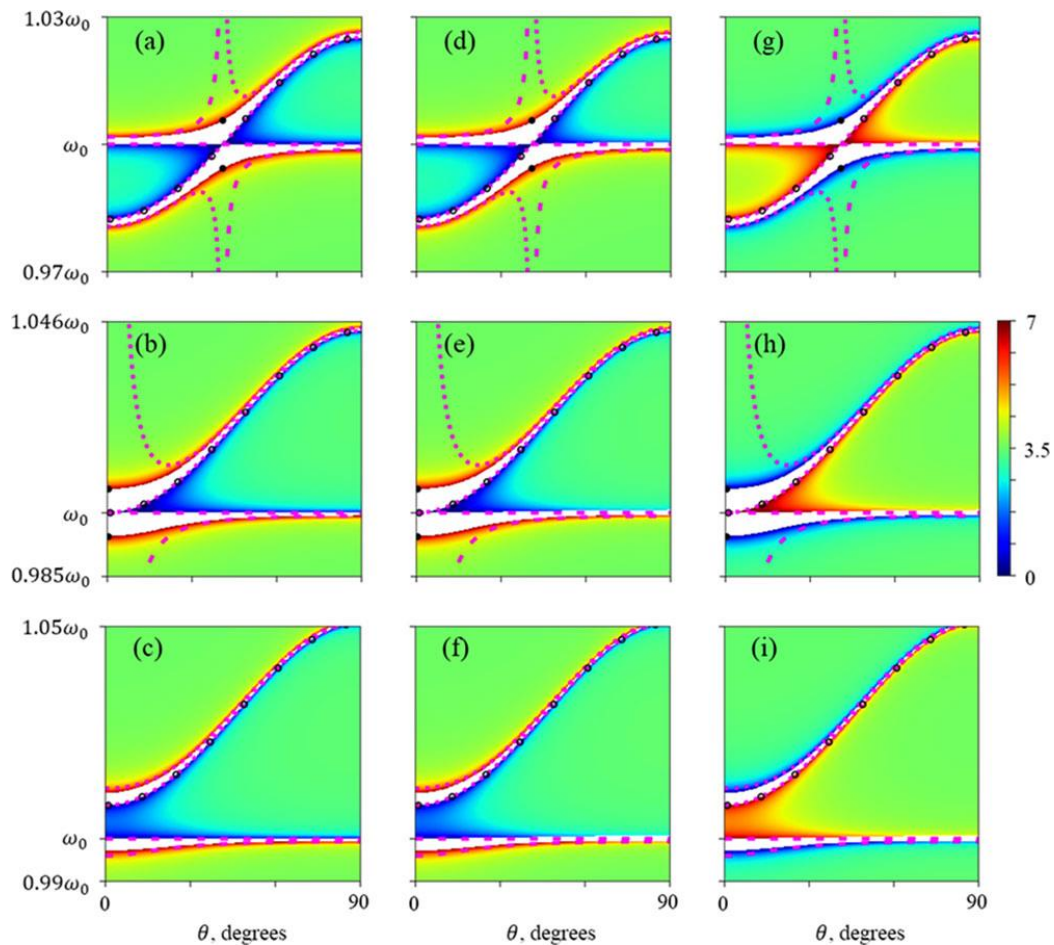


Рисунок 3 – Поляритонные зоны и модальный фактор Парселла для бесконечной системы брэгговских квантовых ям с частотой экситона ω_0 и показателем преломления объёмного материала $n = 3.5$ для различных значений периода структуры d : (a,d,g) $d = 1.018d_0$, (b,e,h) $d = d_0$, (c,f,i) $d = 0.99d_0$, где $d_0 = \pi c/n\omega_0$. Рисунки (a,b,c) соответствуют ТЕ-поляризации, диполь параллелен электрическому полю; рисунки (d,e,f,g,h,i) соответствуют ТМ-поляризации; (d,e,f) диполь параллелен границам раздела сред и лежит в плоскости падения; (g,h,i) диполь перпендикулярен слоям. Чёрные круги обозначают зависимость брэгговской частоты от угла; прерывистые линии — аналитические оценки для границ запрещённой зоны.

В §2.3 приводится описание экспериментального исследования брэгговской структуры с квантовыми ямами в виде строенных монослоёв InAs, разделённых слоями GaAs, состоящей из 60 периодов [А6,А7]. Исследуемая структура была изготовлена методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложке арсенида галлия (GaAs). Каждый период представляет из себя слой GaAs толщиной 140 нм, в котором последовательно расположены три монослоя арсенида индия (InAs) на расстоянии 10 нм друг от друга. Энергии и волновые функции электрона и дырки, локализованных на монослое InAs, были рассчитаны методом теории функционала плотности с помощью программы CASTEP. Электрон и дырка связываются в экситон, при этом энергия экситонного перехода равна примерно 1.47 эВ при температуре 5К. Поскольку три ямы расположены настолько близко

друг от друга, что волновые функции дырок перекрываются, основное экситонное состояние расщепляется в три состояния, энергии которых лежат в диапазоне 1.47 эВ, 1.48 эВ и 1.49 эВ, что подтверждается измеренным спектром отражения и результатами его моделирования.

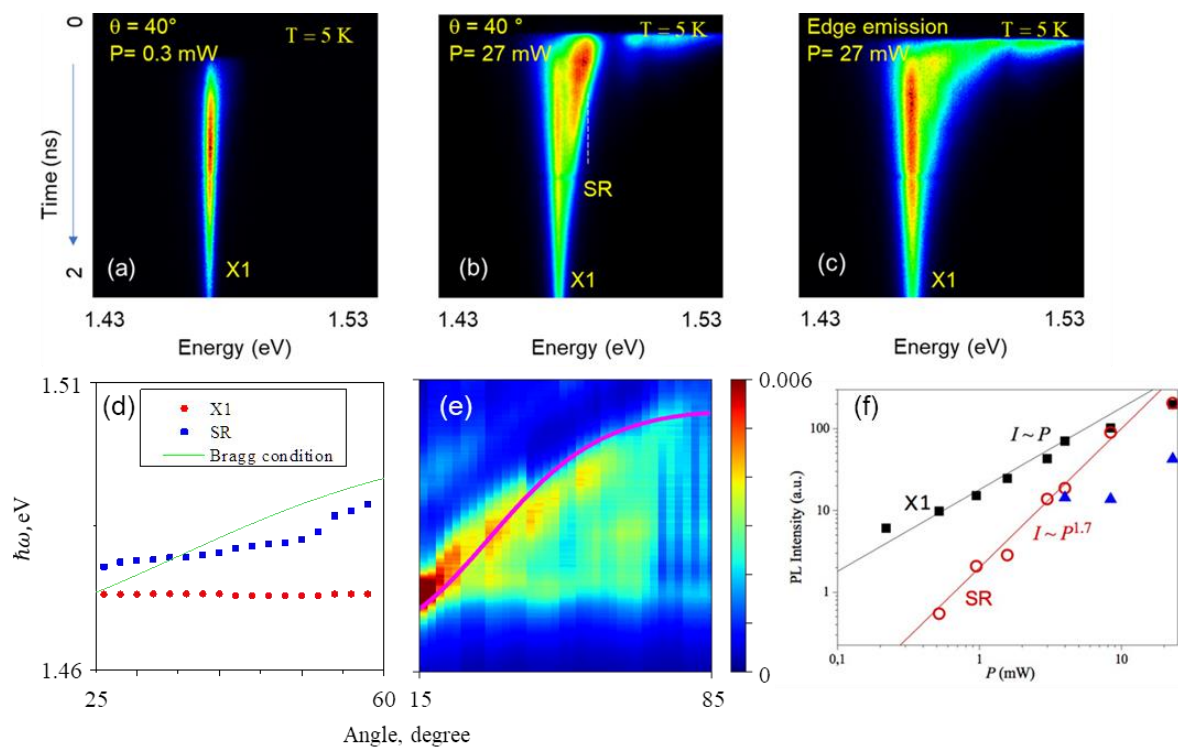


Рисунок 4 – Зависимости интенсивности фотолюминесценции от энергии фотона и времени задержки для излучения с поверхности образца под углом 40 градусов (a,b) и с торца структуры (c). Мощность накачки (a) 0.3 мВт, (b,c) 27 мВт. (d) Положение экситонной (X1) и сверхизлучательной (SR) линий в зависимости от угла. Штриховая линия обозначает зависимость брэгговской частоты от угла. (e) Зависимость отношения интенсивности люминесценции с поверхности образца (под углом 40 градусов) и с торца структуры при мощности накачки 27 мВт. Для сравнения, сплошной фиолетовой линией показано брэгговское условие. (f) Зависимость мощности излучения на экситонной (X1) и сверхизлучательной (SR) линиях от накачки.

Спектры люминесценции с угловым и временным разрешением, содержат линию, соответствующую основному состоянию экситона с энергией 1.47 эВ (рис. 4a), наблюдаемую при любых значениях мощности накачки, и дополнительную линию, наблюдаемую только при больших значениях накачки, энергия которой коррелирует с брэгговской частотой (рис. 4b,d). Дополнительная линия наблюдалась при возбуждении структуры лазером с длиной волны 800 нм которая возбуждает всю брэгговскую структуру; при возбуждении структуры излучением с длиной волны 400 нм, поглощаемой вблизи поверхности структуры, дополнительная линия отсутствует. Максимальная интенсивность дополнительной линии наблюдается для углов эмиссии в воздухе от 40 до 60 градусов. Фотолюминесценция с торца структуры содержит только одну линию, соответствующую основному состоянию экситона (рис. 4c) [A3,A4]. Отношение спектров с поверхности структуры, под углом 40 градусов и с её торца (рис. 4e)

содержит особенности вблизи брэгговской кривой. Для основного состояния экситона зависимость излучения от накачки линейна, для дополнительной линии близка к квадратичной, что соответствует сверхизлучению [28] (рис. 4f). На основании вышеизложенного можно предположить, что наблюдаемая дополнительная линия есть следствие усиления вероятности спонтанной эмиссии из-за брэгговского упорядочения квантовых ям и их коллективного взаимодействия с излучением [A11].

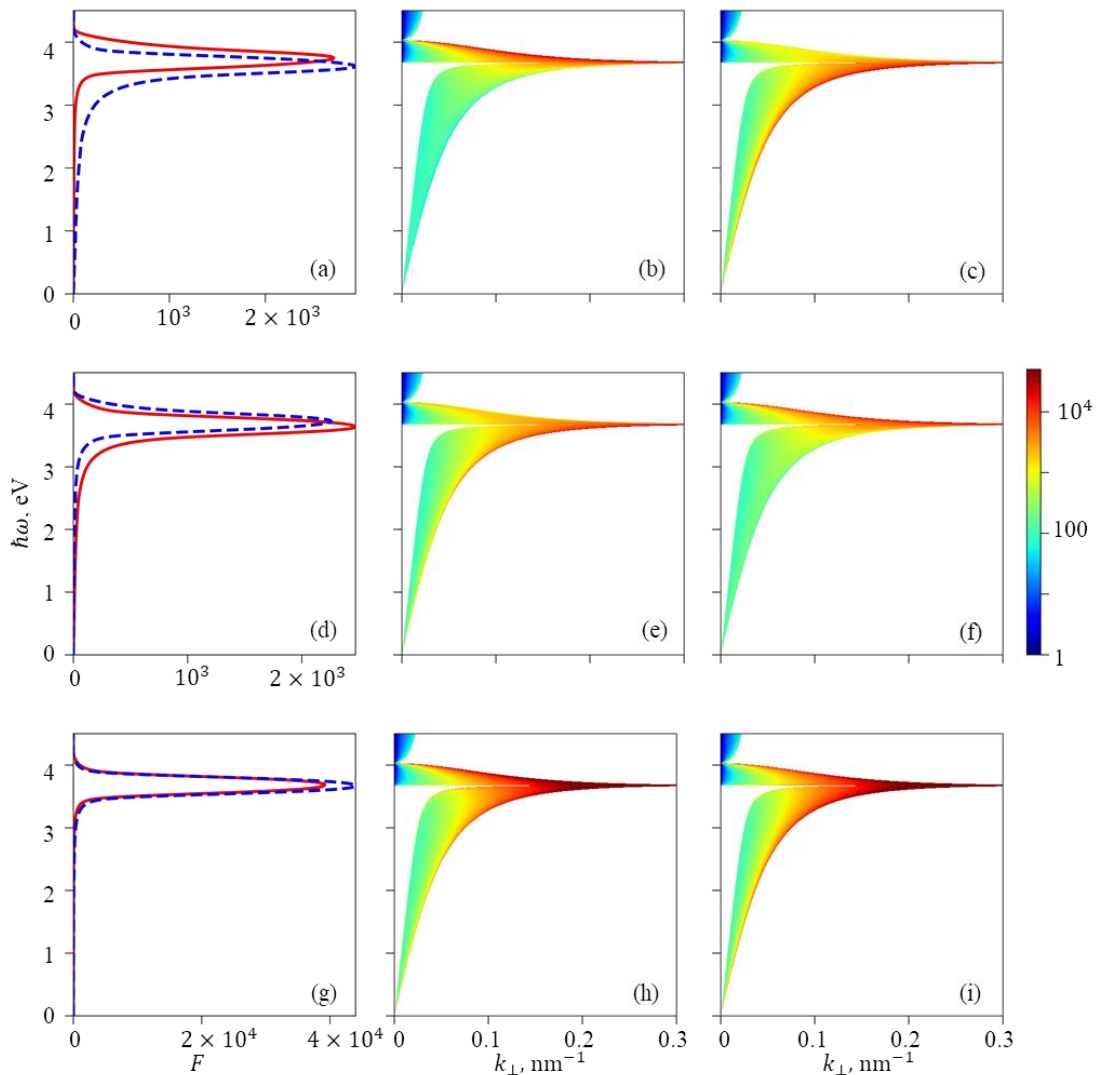


Рисунок 5 – Интегральный (a,d,g) и модальный (b,c,e,f,h,i) факторы Парселла для периодической структуры серебро/вакуум, с толщинами слоёв по 15 нм, полученные с помощью теоремы Блоха. Положение диполя: середина вакуумного слоя (верхний ряд); середина металлического слоя (средний ряд); граница между слоями (нижний ряд). Ориентация диполя: вдоль слоёв (красная кривая и центральный столбец); перпендикулярно слоям (синяя кривая и правый столбец).

Глава 3 «Эффект Парселла в периодических металлодиэлектрических структурах» посвящена теоретическому и экспериментальному исследованию усиления спонтанного излучения в периодических металлодиэлектрических структурах. В §3.1 приводится обзор литературы по исследованию эффекта Парселла в металлодиэлектрических структурах.

Усиление взаимодействия света с веществом связано с поверхностными плазмонами состояниями электромагнитного поля, локализованными на границе металла и диэлектрика – поверхностными плазмонами. Поверхностный плазмон (ПП) является аналогом волноводной моды, внутри металла поле экспоненциально затухает вследствие отрицательной диэлектрической проницаемости в металле для частот ниже плазменной ω_p

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (6)$$

а в диэлектрике затухание объясняется тем, что для поверхностного плазмона волновой вектор лежит вне светового конуса в диэлектрике [22].

Дисперсионная зависимость для ПП описывается формулой

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_0 \varepsilon_1}{\varepsilon_0 + \varepsilon_1}} \quad (7)$$

где ε_0 и ε_1 — диэлектрические проницаемости диэлектрика и металла, соответственно.

Особенностью дисперсионной зависимости (7) является асимптотика на частоте $\omega_p/\sqrt{\varepsilon_0 + \varepsilon_\infty}$, где групповая скорость стремится к нулю и возникает пик в плотности состояний. Увеличение амплитуды электрического поля на границе металла и диэлектрика, а также приводит к усилению взаимодействия поля с веществом, что используется, в частности, для усиления рамановского рассеяния [29]. В периодической последовательности металлических и диэлектрических слоёв перекрытие поверхностных плазмонов, локализованных на отдельных границах приводит к формированию зон [23, 30].

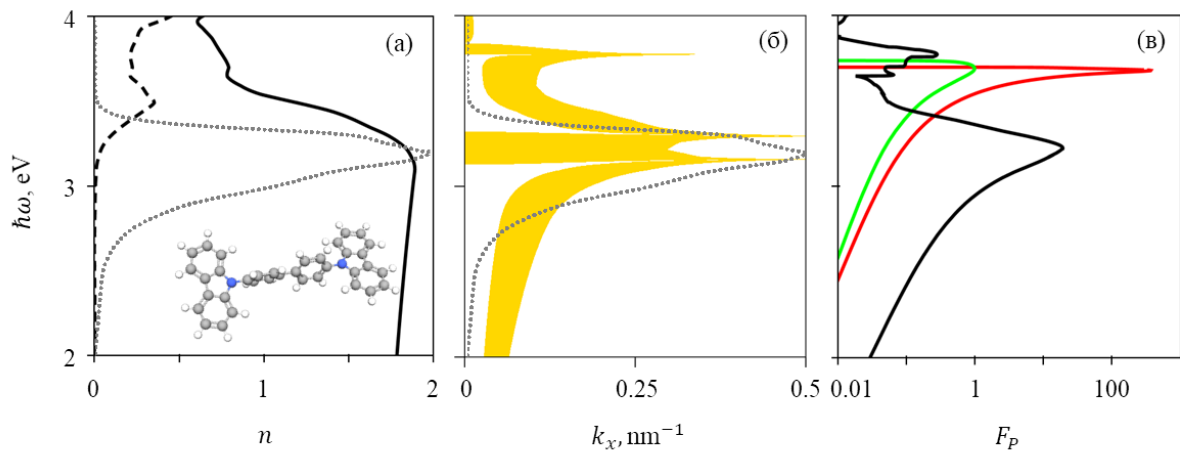


Рисунок 6 – (а) Зависимость действительной (сплошная линия) и мнимой (штриховая линия) частей показателя преломления СВР от энергии фотона. На вставке показана молекула СВР. (б) Зонная структура бесконечной периодической структуры СВР/серебро с толщинами слоёв по 15 нм. (с) Спектральная зависимость коэффициента Парселла для излучателя, расположенного на границе, различных пар материалов: вакуум/серебро в модели Друде (красная линия); вакуум/реальное серебро (зелёная линия); СВР/реальное серебро (чёрная линия). Пунктирной линией показан спектр излучения СВР.

В §3.2 представлено теоретическое исследование спонтанного излучения в модельных бесконечных и конечных периодических структурах металл-диэлектрик. Рассматривалось несколько моделей для диэлектрической проницаемости металла: модель Друде без поглощения в металле (идеальный проводник); модель Друде с поглощением; экспериментально определённая зависимость комплексной диэлектрической проницаемости от частоты.

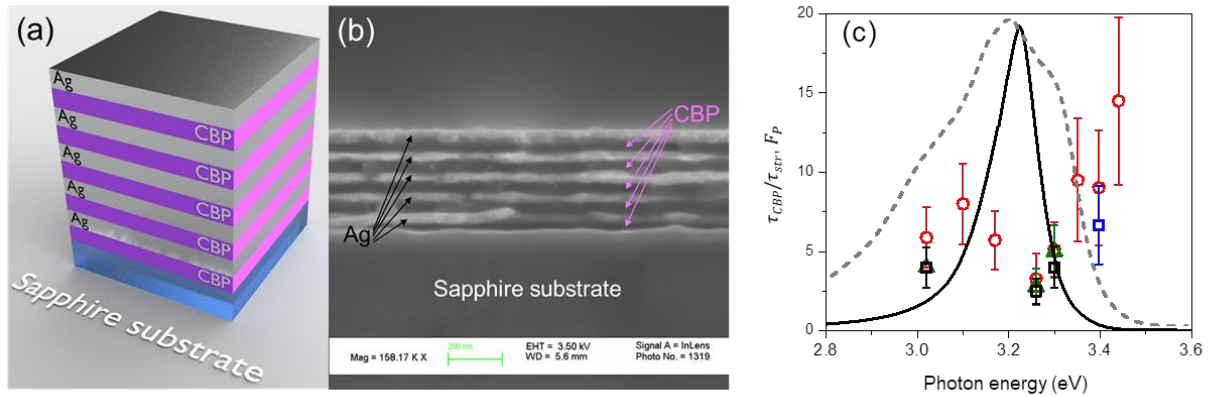


Рисунок 7 – (a) Схема периодической структуры серебро/СВР. (b) СЭМ-изображение выращенной структуры 15 нм СВР / 15 нм серебро. (c) Рассчитанный фактор Парселла для одиночного интерфейса СВР/серебро (сплошная линия) и отношения обратных времён затухания люминесценции структуры, состоящей из 5 пар слоёв СВР и серебра (τ_{str}^{-1}) и слоя СВР (τ_{CBP}^{-1}) для различных значений толщин слоёв в структуре: 10 нм СВР/15 нм Ag (чёрные квадраты); 15 нм СВР/15 нм Ag (красные круги); 20 нм СВР/15 нм Ag (зелёные треугольники); 30 нм СВР/15 нм Ag (синие квадраты). Штриховой линией показан спектр излучения СВР.

В случае идеального проводника, в периодической металлдиэлектрической структуре модальный коэффициент Парселла для плазмонной зоны, связанной с асимптотикой дисперсионной зависимости поверхностного плазмона растёт при увеличении волнового вектора плазмона (формально до бесконечности) как показано на рис. 5, однако вследствие конечности концентрации электронов, область верхний предел рассматриваемых значений волнового вектора следует ограничить обратным расстоянием между электронами в плазме. Интегрирование модального коэффициента Парселла по волновому вектору даёт значения коэффициента Парселла порядка 10^3 - 10^4 (рис. 5a,d,g) [A8].

При учёте поглощения в металле существенно меняется вид дисперсионной зависимости для ПП как для одиночных интерфейсов, так и для слоистых структур, максимальное значение волнового вектора падает на порядки по сравнению с обратным расстоянием между электронами в плазме. Кроме этого, падает максимальная амплитуда поля ПП. Это приводит к тому, что для реальных металлов, максимальное значение коэффициента Парселла в металлдиэлектрических структурах на 2-3 порядка ниже, чем было бы в случае идеализированной структуры [25].

Раздел §3.3 посвящён теоретическому и экспериментальному исследованию эффекта Парселла в периодических структурах, образованных слоями серебра и органического светоизлучающего материала 4,4'-бис(N-карбазолил)-1,1'-бифенил (СВР) [А5,А9]. Вследствие сильной дисперсии показателя преломления СВР на границе СВР/серебро (рис. 6а) существует несколько особенностей в зонной структуре, связанных с ПП, совпадающей с полосой излучения СВР (рис. 6б).

На сапфировых подложках методом термического напыления была выращена серия образцов, представляющих собой 5 пар слоёв СВР/серебро (рис. 7а,б). Толщины слоёв в разных образцах составили 10нм СВР/15 нм серебро, 15нм СВР/15 нм серебро, 20нм СВР/15 нм серебро, 30нм СВР/15 нм серебро.

При импульсном возбуждении таких структур фотолюминесценция экспоненциально затухает во времени. Были измерены времена затухания фотолюминесценции таких структур, и было показано, что скорость затухания фотолюминесценции увеличивается в несколько раз (рис. 7с) по сравнению с отдельными слоями СВР (т.е. без периодической структуры с металлическими слоями). С одной стороны, это подтверждает возможность усиления спонтанной эмиссии в периодических металлодиэлектрических структурах, но как следует из сравнения с расчётом, представленном на том же рисунке, фактор Парселла имеет значительно меньшую величину, чем ожидалось. Причина этого заключается в том, что использование металла, помимо усиления спонтанной эмиссии, приводит также и к увеличению нерадиационного затухания фотолюминесценции [А10]. Таким образом показано, что в периодических металлодиэлектрических структурах наблюдается увеличение скорости спонтанной эмиссии излучения, но увеличение существенно ограничено вследствие поглощения в металле.

В заключении приведены основные результаты работы

- 1) Теоретически исследованы переходы через два или более состояния «штарковской лестницы» в сверхрешётках, находящихся в электрическом поле, для электронов и дырок. Показано, что переходы через один и более уровней возможны, однако их вероятность меньше, чем для переходов между соседними уровнями. Такие переходы сопровождаются излучением на частотах, кратных блоховской частоте, а их вероятность падает с увеличением кратности.
- 2) Исследованы блоховские осцилляции в сверхрешётках с расщепленной минизоной. Теоретически показано, что в таких сверхрешётках, помещённых в электрическое поле, возможно излучение света на частотах, отличных от блоховской частоты и не кратных друг другу.
- 3) Рассчитана вероятность спонтанной эмиссии в бесконечных и конечных брэгговских структурах с квантовыми ямами. Продемонстрировано увеличение вероятности спонтанной эмиссии излучения вблизи краёв поляритонных запрещённых зон, образующихся в бесконечной структуре.
- 4) Сконструированы, изготовлены, экспериментально и теоретически исследованы брэгговские квантовые ямы на основе монослоёв арсенида индия в

арсениде галлия. Рассчитаны энергии и волновые функции электронов и дырок, локализованные на монослоях арсенида индия в арсениде галлия. Продemonстрировано усиление эмиссии вблизи брэгговской кривой. Показано, что для линий люминесценции, для которых частота и направление эмиссии связаны брэгговским условием, имеет место сверхлинейный рост зависимости интенсивности излучения от накачки.

5) Рассчитана зонная структура и зависимость вероятности спонтанной эмиссии от частоты и направления эмиссии для периодических слоистых металлодиэлектрических структур. Показано, что для идеального, непоглощающего свет металла коэффициент Парселла в таких структурах может превышать значение 10^3 , однако при учёте поглощения в реальных металлах максимальное значение коэффициента Парселла не превышает нескольких единиц.

6) Сконструированы, изготовлены, экспериментально и теоретически исследованы периодические металлодиэлектрические структуры на основе слоёв серебра и органического светоизлучающего материала 4,4'-бис(N-карбазолил)-1,1'-бифенил (СВР). Теоретически рассчитана частотная зависимость коэффициента Парселла в таких структурах, и измерено время затухания люминесценции. Продemonстрировано, что время затухания люминесценции для периодических слоистых структур на основе серебра и СВР уменьшается в несколько раз по сравнению со свободным СВР.

Список публикаций по теме диссертации

[A1] Ivanov K.A., Petrov A.G., Kaliteevski M.A., Gallant A.J. Anharmonic Bloch Oscillation of Electrons in Biased Superlattices // Письма в ЖЭТФ. – 2015. – Т. 102, № 12. – С. 796-802.

[A2] Иванов К. А., Гиршова Е. И., Калитеевский М. А. Ангармонические блоховские осцилляции электронов в электрически смещенных сверхрешетках // Физика и техника полупроводников. – 2016. – Т. 50, №. 11 – С. 1484-1489.

[A3] Позина Г., Калитеевский М.А., Никитина Е.В., Губайдуллин А.Р., Иванов К.А., Егоров А.Ю. Исследование спонтанной эмиссии в брэгговских монослойных квантовых ямах InAs // Физика и техника полупроводников. – 2018. – Т. 52, №. 7 – С. 736-740.

[A4] Pozina G.R., Kaliteevski M.A., Nikitina E.V., Denisov D.V., Polyakov N.K., Pirogov E.V., Goray L.I., Gubaydullin A.R., Ivanov K.A., Kaliteevskaya N.A., Egorov A.Y., Clark S.J. Super-radiant mode in InAs-monolayer-based Bragg structures // Scientific Reports - 2015, Vol. 5, pp. 14911.

[A5] Gubaydullin A.R., Mazlin V.A., Ivanov K.A., Kaliteevski M.A., Balocco C. Angular and positional dependence of Purcell effect for layered metal-dielectric structures // Applied Physics A: Materials Science and Processing - 2016, Vol. 122, No. 4, pp. 425.

- [A6] Pozina G., Kaliteevski M.A., Nikitina E.V., Denisov D.V., Polyakov N.K., Pirogov E.V., Goray L., Gubaydullin A.R., Ivanov K.A., Kaliteevskaya N.A., Egorov A.Y. Nonlinear behavior of the emission in the periodic structure of InAs monolayers embedded in a GaAs matrix // *Physica status solidi (b)* - 2017, Vol. 254, No. 4, pp. 1600402.
- [A7] Pozina G., Girshova E.I., Morozov K.M., Ivanov K.A., Egorov A.Y., Kaliteevski M.A. Purcell Effect and Nonlinear Behavior of the Emission in a Periodic Structure Composed of InAs Monolayers Embedded in a GaAs Matrix // *Annalen der Physik (Berlin)* - 2018, pp. 1800388.
- [A8] Kaliteevski M. A., Ivanov K. A., Gubaydullin A. R. Purcell factor in periodic metal-dielectric structures // 2018 International Conference Laser Optics (ICLO). – IEEE, 2018. – С. 143-143.
- [A9] Morozov K. M., Ivanov K.A., Selenin N., Mikhrin S., de Sa Pereira D., Menelaou C., Monkman A. P., Kaliteevski M.A. Spontaneous Emission Amplification in Silver—Organic Periodic Structures and Tamm Plasmon Structures // *Semiconductors*. – 2018. – Т. 52. – №. 14. – С. 1861-1864.
- [A10] Morozov K. M., Ivanov K. A., de Sa Pereira D., Menelaou C., Monkman A. P., Pozina G., Kaliteevski M. A. Revising of the Purcell effect in periodic metal-dielectric structures: the role of absorption // *Scientific Reports*. – 2019. – Vol. 9, N. 1 – P. 9604.
- [A11] Pozina G., Ivanov K. A., Morozov K. M., Girshova E. I., Egorov A. Yu., Clark S. J., Kaliteevski M. A. Enhancement of light emission in Bragg monolayer-thick quantum well structures // *Scientific Reports*. – 2019. – Vol. 9, N. 1 – P. 10162.

Литература

1. Оптические свойства наноструктур. / Воробьёв Л. Е., Ивченко Е. Л., Фирсов Д. А., Шалыгин В. А. – СПб.: Наука, 2001. – 188 с.
2. Элементарная физика твердого тела: Пер. с англ. / Киттель Ч. – М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1965.
3. Esaki L., Tsu R. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors // *IBM Journal of Research and Development*. – 1970. – Т. 14, № 1. – С. 61-65.
4. Основы оптики. / Борн М., Вольф Э. – М.: Наука, 1973. – 720 с.
5. Jewell J. L., Harbison J., Scherer A., Lee Y.-H., Florez L. Vertical-cavity surface-emitting lasers: design, growth, fabrication, characterization // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 1991. – Т. 27, № 6. – С. 1332-1346.
6. Scamarcio G., Capasso F., Sirtori C., Faist J., Hutchinson A. L., Sivco D. L., Cho A. Y. High-power infrared (8-micrometer wavelength) superlattice lasers // *Science*. – 1997. – Т. 276, № 5313. – С. 773-776.
7. Faist J., Capasso F., Sivco D. L., Sirtori C., Hutchinson A. L., Cho A. Y. Quantum cascade laser // *Science*. – 1994. – Т. 264, № 5158. – С. 553-556.
8. Tsu R., Esaki L. Tunneling in a finite superlattice // *Applied Physics Letters*. – 1973. – Т. 22, № 11. – С. 562-564.
9. Казаринов Р., Сурис Р. О возможности усиления электромагнитных волн в полупроводнике со сверхрешеткой // *ФТП*. – 1971. – Т. 5, № 4. – С. 797.

10. Leo K. Interband optical investigation of Bloch oscillations in semiconductor superlattices // *Semiconductor Science and Technology*. – 1998. – T. 13, № 3. – C. 249.
11. Klappenberger F., Renk K. F., Renk P., Rieder B., Koshurinov Y. I., Pavelev D. G., Ustinov V., Zhukov A., Maleev N., Vasilyev A. Semiconductor–superlattice frequency multiplier for generation of submillimeter waves // *Applied Physics Letters*. – 2004. – T. 84, № 19. – C. 3924-3926.
12. Winnerl S., Schomburg E., Brandl S., Kus O., Renk K. F., Wanke M. C., Allen S. J., Ignatov A. A., Ustinov V., Zhukov A., Kop'ev P. S. Frequency doubling and tripling of terahertz radiation in a GaAs/AlAs superlattice due to frequency modulation of Bloch oscillations // *Applied Physics Letters*. – 2000. – T. 77, № 9. – C. 1259-1261.
13. Sankin V. I., Andrianov A. V., Zakharin A. O., Petrov A. G. Terahertz electroluminescence from 6H-SiC structures with natural superlattice // *Applied Physics Letters*. – 2012. – T. 100, № 11. – C. 111109.
14. VCSELs: fundamentals, technology and applications of vertical-cavity surface-emitting lasers. / Michalzik R. – Springer, 2012.
15. Kogelnik H., Shank C. Coupled-wave theory of distributed feedback lasers // *Journal of applied physics*. – 1972. – T. 43, № 5. – C. 2327-2335.
16. Zhang C., Srinivasan S., Tang Y., Heck M. J., Davenport M. L., Bowers J. E. Low threshold and high speed short cavity distributed feedback hybrid silicon lasers // *Optics express*. – 2014. – T. 22, № 9. – C. 10202-10209.
17. Bonfrate G., Vaninetti F., Negrisolo F. Single-frequency MOPA Er/sup 3+/DBR fiber laser for WDM digital telecommunication systems // *IEEE Photonics Technology Letters*. – 1998. – T. 10, № 8. – C. 1109-1111.
18. Ивченко Е. Л., Несвижский А. И., Йорда С. Брэгговское отражение света от структур с квантовыми ямами // *ФТТ*. – 1994. – Т. 36. – С. 2118.
19. Chaldyshev V. V., Chen Y., Poddubny A. N., Vasil'ev A. P., Liu Z. Resonant optical reflection by a periodic system of the quantum well excitons at the second quantum state // *Applied Physics Letters*. – 2011. – T. 98, № 7. – C. 073112.
20. Hübner M., Prineas J. P., Ell C., Brick P., Lee E. S., Khitrova G., Gibbs H. M., Koch S. W. Optical Lattices Achieved by Excitons in Periodic Quantum Well Structures // *Physical Review Letters*. – 1999. – T. 83, № 14. – C. 2841-2844.
21. Purcell E. M., Torrey H. C., Pound R. V. Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid // *Physical Review*. – 1946. – T. 69, № 1-2. – C. 37-38.
22. Plasmonics: fundamentals and applications. / Maier S. A.: Springer Science & Business Media, 2007.
23. Zayats A. V., Smolyaninov I. I., Maradudin A. A. Nano-optics of surface plasmon polaritons // *Physics Reports*. – 2005. – T. 408, № 3-4. – C. 131-314.
24. Iorsh I., Poddubny A., Orlov A., Belov P., Kivshar Y. S. Spontaneous emission enhancement in metal–dielectric metamaterials // *Physics Letters A*. – 2012. – T. 376, № 3. – C. 185-187.
25. Khurgin J. B. How to deal with the loss in plasmonics and metamaterials // *Nature Nanotechnology*. – 2015. – T. 10, № 1. – C. 2-6.

26. Sankin V., Stolichnov I. Negative differential conduction in the Bloch oscillations regime in the hexagonal silicon carbide polytypes 4H, 6H and 8H // *Superlattices and Microstructures*. – 1998. – T. 23, № 5. – C. 999-1004.
27. Bouchard A. M., Luban M. Bloch oscillations and other dynamical phenomena of electrons in semiconductor superlattices // *Physical Review B*. – 1995. – T. 52, № 7. – C. 5105-5123.
28. Dicke R. H. Coherence in spontaneous radiation processes // *Physical Review*. – 1954. – T. 93, № 1. – C. 99.
29. Fleischmann M., Hendra P. J., McQuillan A. J. Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode // *Chemical Physics Letters*. – 1974. – T. 26, № 2. – C. 163-166.
30. Bogdanov A., Suris R. Theoretical analysis of free carrier absorption in the cavity of a quantum cascade laser // *physica status solidi (b)*. – 2012. – T. 249, № 5. – C. 885-895.