

Двумерные нерадикационные плазмон-экситоны, их ближнеполевое импульсное возбуждение и релаксация

© В.А. Кособукин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
94021 Санкт-Петербург, Россия

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

Поступила в Редакцию 30 апреля 2024 г.
В окончательной редакции 26 июня 2024 г.
Принята к публикации 30 октября 2024 г.

Представлена теория нерадикационных плазмон-экситонов в модели атомарно-тонких слоев металла и полупроводника, расположенных рядом. Для волн диэлектрической поляризации двумерных плазмон-экситонов получены уравнения движения, характерные для затухающих связанных осцилляторов, возбуждаемых внешним диполем. Найденные законы дисперсии и оптические спектры показывают наличие значительного эффекта антипересечения в области плазмон-экситонного резонанса. Переходные процессы при ближнеполевом импульсном возбуждении плазмон-экситонов и их релаксации обсуждаются в терминах вынужденных и затухающих собственных колебаний, испытывающих биения.

Ключевые слова: плазмон-экситоны, волны поляризации, ближнеполевая оптика, импульсное возбуждение, релаксация.

DOI: 10.61011/FTP.2024.10.59380.6474A

1. Введение

Наноструктуры с плазмон-экситонным взаимодействием имеют характерный спектр, обусловленный легкой перестройкой резонансных состояний. Оптической спектроскопии радиационных плазмон-экситонов (ПЭ) и связанных с ними поляритонов посвящено много работ [1]. Однако свойства нерадикационных ПЭ, не возбуждающихся фотонами, остаются малоизученными [2,3].

В данной работе развита теория двумерных (2D) связанных ПЭ, распространяющихся в близких слоях полупроводника и металла. Свойства 2D ПЭ изучаются с помощью уравнений движения связанных гармонических осцилляторов, полученных на основе материальных уравнений для полей поляризации 2D плазмонов и экситонов с учетом их кулоновского взаимодействия. Интересующие нас 2D ПЭ не возбуждаются световыми волнами, но могут возбуждаться ближним полем субволнового зонда. Применительно к ближнеполевой оптике в этой работе теоретически исследуются процессы импульсного возбуждения 2D ПЭ и их релаксации.

2. Модель и постановка задачи

Рассмотрим волны диэлектрической поляризации $\mathbf{P}^{(\nu)}$ 2D плазмонов ($\nu = 1$) и экситонов ($\nu = 2$), связанных кулоновским взаимодействием. Для фурье-компонент $\mathbf{P}^{(\nu)}(z, \mathbf{k}, t)$ 2D ПЭ с волновым вектором $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ используем классические уравнения движения, построенные в работах [2,3] на основе материальных уравнений связи 2D поляризации $\mathbf{P}^{(\nu)}(\mathbf{k}, \omega)$ с электрическим полем $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega)$. При $\mathbf{k} = \kappa \mathbf{e}_x$ зависящие от времени t уравнения

движения имеют вид [3]

$$\left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_\nu \frac{d}{dt} + \omega_{\nu\nu}^2(\kappa) \right) P_\alpha^{(\nu)}(z, \kappa, t) = \Omega_\nu^2 l_\nu \delta(z - z_\nu) \sum_{\nu' (\neq \nu)} E_\alpha^{(\nu')} (z, \kappa, t), \quad (1)$$

$$E_\alpha^{(\nu')} (z, \kappa, t) = \sum_\beta \int g_{\alpha\beta}(z - z', \kappa) P_\beta^{(\nu')} (z', \kappa, t) dz'. \quad (2)$$

Здесь $\omega_{\nu\nu}(\kappa)$ — частоты 2D плазмонов ($\nu = 1$) и экситонов ($\nu = 2$), Γ_ν — параметры их затухания, $\Gamma_\nu \ll \omega_{\nu\nu}$, l_ν — эффективная ширина области ограничения поляризации вблизи плоскости $z = z_\nu$, $l_\nu \ll 1/k_0 = c/\omega$, c — скорость света. Поле (2), создаваемое поляризацией $\mathbf{P}^{(\nu)}$ в изотропной среде, описывается квазистатической ($c \rightarrow \infty$) тензорной функцией Грина с компонентами $g_{\alpha\beta}(z, \kappa)$. Параметры Ω_ν , определяющие эффективность возбуждения 2D поляризации $\mathbf{P}^{(\nu)}$ электрическим полем, обсудим далее.

В уравнениях (1) $\nu' (\neq \nu)$ означает отсутствие в суммах вклада с номером ν' , равным номеру уравнения ν . Эти суммы включают поле (2) внешней поляризации $\mathbf{P}^{(0)}$ с $\nu' = 0$, возбуждающей 2D ПЭ с $|\mathbf{k}| \gg k_0$. Считаем, что $\mathbf{P}^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \boldsymbol{\mu} f(t) \delta(z - z_0) \Phi(\boldsymbol{\rho})$ создается дипольным моментом $\boldsymbol{\mu} f(t)$, имеющим распределение $\Phi(\boldsymbol{\rho})$ в нанобласти плоскости $z = z_0$. В этом случае в уравнениях (1)–(2) входят фурье-компоненты

$$\mathbf{P}^{(0)}(z, \kappa, t) = \boldsymbol{\mu} f(t) \delta(z - z_0) \tilde{\Phi}(\kappa). \quad (3)$$

В них $\tilde{\Phi} = 1$ для $\Phi = \delta(\boldsymbol{\rho})$ или $\tilde{\Phi} = 2J_1(\kappa R)/(\kappa R) \approx 1$ для $\Phi = 1/(\pi R^2)$ в круге радиуса $R \sim 1/\kappa$.

В модели (1)–(3) с фоновой диэлектрической постоянной ε_b далее рассматриваем продольные волны поляризации $\mathbf{P}^{(v)} \parallel \boldsymbol{\kappa}$ с $P_\alpha^{(v)} = \delta_{\alpha x} P^{(v)}(z, \kappa, t)$. Индуцированное ими поле (2) поляризовано в плоскости xz , его компоненты $E_x^{(v)}, E_z^{(v)}$, как и

$$g_{x\beta}(z, \kappa) = -(2\pi\kappa/\varepsilon_b) \exp(-\kappa|z|) [\delta_{\beta x} + i\delta_{\beta z} \operatorname{sgn}(z)],$$

имеют нулевой порядок величины по $k_0/\kappa \ll 1$.

Подставив (2) в (1), решение интегро-дифференциальных уравнений ищем в форме

$$P^{(v)}(z, \kappa, t) = w_v(\kappa, t) l_v \delta(z - z_v). \quad (4)$$

Здесь $w_v(\kappa, t)$ — искомая зависимость от времени поляризации плазмонов ($v = 1$) или экситонов ($v = 2$), образующих 2D ЭП с волновым числом κ , которое служит параметром задачи. Выполнив интегрирование в (1) с учетом (4) и условий $z_1 = 0, z_2 = h, |z_1 - z_2| = h \ll 1/k_0$, получаем систему дифференциальных по t уравнений:

$$\left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_v \frac{d}{dt} + \omega_{vv}^2 \right) w_v(\kappa, t) + \omega_{vv'}^2 w_{v'}(\kappa, t) = C_v f(t), \quad (5)$$

причем $v' \neq v$ в v -м уравнении. Уравнения (5) описывают вынужденные колебания связанных гармонических осцилляторов, роль которых играют волны 2D поляризации (4) с $v = 1, 2$. В левую часть уравнений (5) входит матрица частот с элементами

$$\left. \begin{aligned} \omega_{11}^2(\kappa) &= 2\pi e^2 n_{2D} \kappa / (m\varepsilon_b) \equiv \omega_{2D}^2(\kappa), \\ \omega_{12}^2(\kappa) &= \omega_{2D}^2(l_2/l_1) \exp(-\kappa h), \\ \omega_{21}^2(\kappa) &= \Omega^2(2\pi/\varepsilon_b) \kappa l_1 \exp(-\kappa h), \\ \omega_{22}^2(\kappa) &= \omega_0^2 + \Omega^2(2\pi/\varepsilon_b) \kappa l_2, \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

в которых $\Omega = \Omega_2$. В правой части (5) стоит $f(t)$ из (3) с коэффициентами

$$\left. \begin{aligned} C_1(\kappa) &= -\omega_{2D}^2 l_1^{-1} \exp(-\kappa|z_0|) [\mu_x - i\mu_z \operatorname{sgn}(z_0)] \tilde{\Phi}, \\ C_2(\kappa) &= -\Omega^2(2\pi\kappa/\varepsilon_b) \exp(-\kappa|z_0 - h|) \\ &\quad \times [\mu_x - i\mu_z \operatorname{sgn}(z_0 - h)] \tilde{\Phi}. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Эти коэффициенты определяют эффективность ближне-полевого возбуждения 2D плазмонов и экситонов компонентами диполя $\boldsymbol{\mu}$ из (3), лежащими в плоскости xz .

В уравнениях (1) и (5) диагональные матричные элементы $\omega_{11}(\kappa)$ и $\omega_{22}(\kappa)$ из (6) выражают законы дисперсии 2D плазмонов и экситонов. Вклад в ω_{vv} , явно зависящий от κ , обусловлен собственным электрическим полем (2), индуцированным поляризацией $P^{(v)}$. Так, в (6) закон дисперсии 2D плазмонов $\omega_{11}(\kappa) = \omega_{2D}(\kappa)$ обусловлен коллективным полем электронов, имеющих 2D плотность n_{2D} , эффективную массу m и заряд e . В ω_{22} в дополнение к частоте ω_0 возбуждения экситона

(связанной электронно-дырочной пары) содержится κ -зависимая малая кулоновская поправка $\sim (\Omega/\omega_0)^2 \ll 1$. Параметр Ω для экситонов Ванье выражается через межзонный дипольный матричный элемент [3], а для экситонов Френкеля — через силу осциллятора молекулярного перехода.

Недиагональные элементы ω_{12} и ω_{21} из (6) определяют эффективность возбуждения поляризации плазмона электрическим полем экситона и наоборот. Асимметрия $\omega_{12} \neq \omega_{21}$ означает различие этих взаимных эффектов. В рассматриваемом интервале κ вблизи ПЭ резонанса элементы $\omega_{vv'}$ зависят от κ слабо [3].

3. Решение задачи и обсуждение

Задача о возбуждении и релаксации 2D ПЭ решается методом преобразования Лапласа [4]

$$W_v(p) = \int_0^\infty w_v(t) e^{-pt} dt, \quad (8)$$

которое для функции $w_v(t)$, заданной при $t > 0$, определяет функцию-изображение $W_v(p)$ от комплексной переменной p . Преобразование (8) уравнений (5) при начальных условиях $w_v(0) = w_v'(0) = 0$ дает систему алгебраических уравнений для $W_v(p)$ вида (5), в которых сделаны формальные замены $d/dt \rightarrow p, w_v(t) \rightarrow W_v(p)$ и $f(t) \rightarrow F(p)$.

Предположим, что 2D ПЭ возбуждаются прямоугольным импульсом

$$f(t) = \sin(\omega t) \{ \vartheta(t) - \vartheta(t - \tau) \} \quad (9)$$

длительностью $\tau = \pi m/\omega$ (m — целое число); единичная функция равна $\vartheta(t) = 0$ при $t < 0$ и $\vartheta(t) = 1$ при $t > 0$. Тогда система уравнений, полученная после преобразования (5) по формуле (8), имеет решение

$$\begin{pmatrix} W_1(p) \\ W_2(p) \end{pmatrix} = \frac{\omega [1 - (-1)^m \exp(-p\tau)]}{(p^2 + \omega^2) D(p)} \times \begin{pmatrix} p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2 & -\omega_{12}^2 \\ -\omega_{21}^2 & p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \end{pmatrix}, \quad (10)$$

$$D(p) = (p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2)(p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2) - \omega_{12}^2 \omega_{21}^2. \quad (11)$$

При $\omega_{12}\omega_{21} = 0$ 2D плазмоны и экситоны независимы; их законы дисперсии $\omega_{vv}(\kappa)$ при $\Gamma_v = 0$ показаны кривыми I и II на рис. 1, а. Если $\omega_{12}\omega_{21} \neq 0$, то возможно образование смешанных состояний 2D ПЭ при условии $\omega_{11}(\kappa) = \omega_{22}(\kappa)$, которое выполняется в точке пересечения кривых I и II. На рис. 1, а и b представлены также законы дисперсии $u_j(\kappa)$ и параметры затухания $g_j(\kappa)$ 2D плазмон-экситонов с номерами $j = 1, 2$. На рис. 1, а видно проявление эффекта антипересечения („отталкивания частот“), так что $u_1 < \omega_{11}, \omega_{22} < u_2$.

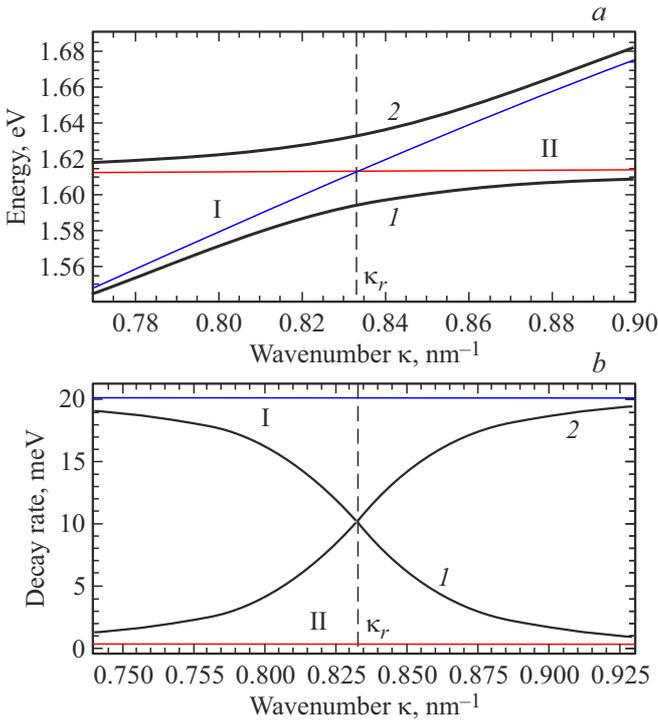


Рис. 1. *a* — законы дисперсии $\hbar\omega_{11}$ 2D плазмонов (I), $\hbar\omega_{22}$ 2D экситонов (II) и $\hbar u_1$ (1), $\hbar u_2$ (2) плазмон-экситонов при $\Gamma_1 = \Gamma_2 = 0$. *b* — параметры затухания $2\hbar g_1$ (1) и $2\hbar g_2$ (2) 2D ПЭ при $\hbar\Gamma_1 = 20$ мэВ (I) и $\hbar\Gamma_2 = 0.3$ мэВ (II). Параметры расчета указаны в тексте.

Здесь и далее используются числовые оценки параметров для пары Ag/CdTe [3]. Для 2D плазмонов принято $n_{2D} = 15 \text{ нм}^{-2}$, $\hbar\Gamma_1 = 20$ мэВ, $l_1 = 0.7 \text{ нм}$, $\hbar\Omega_1 = 2.7$ эВ, для 2D экситонов — $\hbar\omega_0 = 1.6$ эВ, $\hbar\Gamma_2 = 0.3$ мэВ, $l_2 = 2 \text{ нм} = h$, $\hbar\Omega_2 = 200$ мэВ, $\varepsilon_b = 10$.

Обратное преобразование Лапласа функций $W_\nu(p)$ из (10) с помощью теории вычетов [4] дает решения уравнений (5) при $t > 0$:

$$w_\nu(t) = 2 \operatorname{Re} \sum_{p_j} \exp(p_j t) [(p - p_j) W_\nu(p)]_{p=p_j} = \sum_{j=0,1,2} w_\nu^{(j)}(t). \quad (12)$$

Здесь сумма берется по $p_j = -iu_j - g_j$ для трех пар (p_j, p_j^*) с $j = 0, 1, 2$ комплексно-сопряженных полюсов функций (10). В случае импульса (9) из (10)–(12) следует, что

$$w_\nu(t) = \vartheta(t) \sum_{j=0,1,2} w_\nu^{(j)}(t) - (-1)^m \vartheta(t - \tau) \times \sum_{j=0,1,2} w_\nu^{(j)}(t - \tau), \quad (13)$$

где $w_\nu^{(j)}(t)$ — обозначают функции с $j = 0, 1, 2$ из (12), вычисленные при $\tau \rightarrow \infty$.

При $p_{j=0} = -i\omega - 0$ и $\tau \rightarrow \infty$ по формуле (12) получаем ν -вклады в (13) в виде

$$w_\nu^{(0)}(t) = |Q_\nu(-i\omega)| \sin\{\omega t - \arg Q_\nu(-i\omega)\}. \quad (14)$$

Здесь $Q_\nu(-i\omega) = S_0(\omega) \sum_{\nu'} M_{\nu\nu'}(-i\omega) C_{\nu'}$, $S_0(\omega) = 1/(\Delta_1 \Delta_2)$, $\Delta_j(\omega) = u_j^2 - \omega^2 - 2i\omega g_j$ ($j = 1, 2$) с $u_j(\kappa)$ и $g_j(\kappa)$, показанными на рис. 1, *a* и *b*, $M_{\nu\nu'}(p)$ — элементы 2×2 матрицы из (10). Выражения (14) описывают вынужденные колебания поляризации ν -типа в 2D ПЭ с частотой ω . В зависимости от ω эти колебания резонансно усиливаются вблизи собственных частот $u_j(\kappa)$ обоих 2D ПЭ, как показывают на рис. 2, *a* и *b* кривые 1 для спектральной функции $S_0(\omega)$ из $Q_\nu(-i\omega)$.

При $p_j = -iu_j - g_j$ с $j = 1, 2$ и $\tau \rightarrow \infty$ вклады в (13) выражаются формулами

$$w_\nu^{(j)}(t) = (-1)^j \exp(-g_j t) |S_j(\omega)| \times \sum_{\nu'} |M_{\nu\nu'}(p_j)| |C_{\nu'}| \sin(u_j t - \alpha_{\nu\nu'}^{(j)}). \quad (15)$$

Здесь $S_j(\omega) = \omega / (u_j \Theta_j \tilde{\Delta}_j)$, где $\tilde{\Delta}_j(\omega) = u_j^2 - \omega^2 - 2iu_j g_j$, $\Theta_j = u_2^2 - u_1^2 - 2iu_j(g_2 - g_1)$, $M_{\nu\nu'}(p_j)$ — элементы 2×2 матрицы из (10) и $\alpha_{\nu\nu'}^{(j)} = \arg(S_j(\omega) \times M_{\nu\nu'}(p_j) C_{\nu'})$.

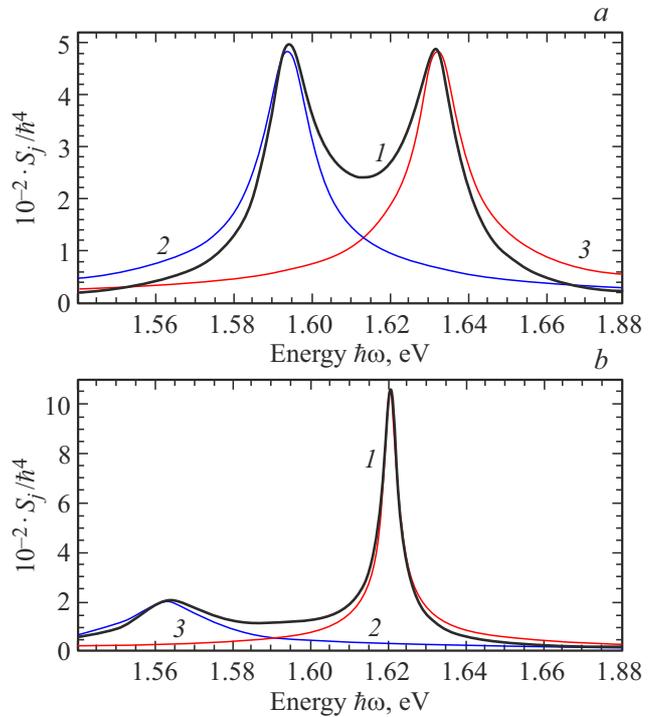


Рис. 2. Спектральные функции $10^{-2} \cdot S_j / \hbar^4$ с $j = 0$ (1) из (14), с $j = 1$ (2) и $j = 2$ (3) из (15) для 2D ПЭ с волновыми числами (а) $\kappa_r = 0.832 \text{ нм}^{-1}$ (при $\omega_{11} = \omega_{22}$) и (б) $\kappa = 0.79 \text{ нм}^{-1}$. Вычислено с теми же параметрами, что на рис. 1.

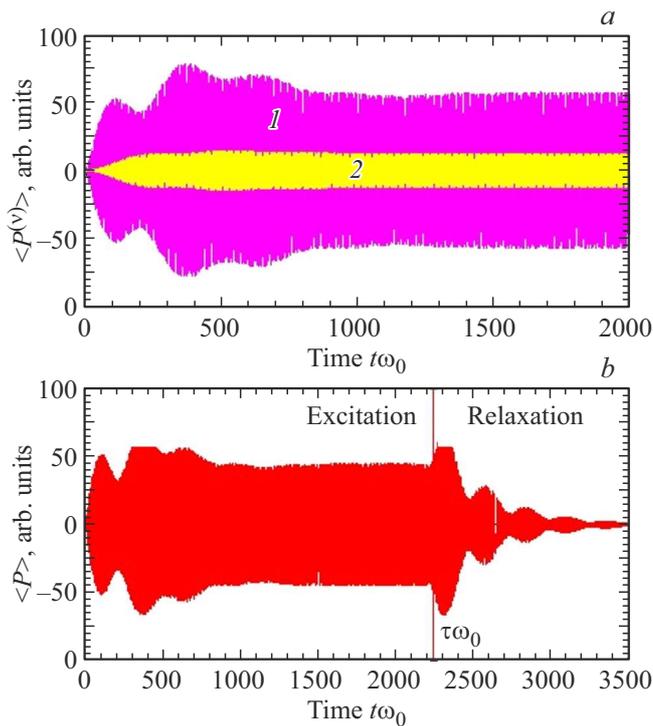


Рис. 3. Зависимости от времени $\omega_0 t$ поляризации 2D PE: (a) $\langle P^{(v)} \rangle$ из (16) и (b) $\langle P \rangle$ из (17) при возбуждении при $t = 0$ импульсом (9) длительностью $\tau = 700\pi/\omega$. Вычислено при частоте возбуждения $\omega = u_{II}(\kappa_r)$, $\kappa_r = 0.832 \text{ nm}^{-1}$, и показано в произвольных единицах, нормированных на $\mu_x \Phi$ при $\mu_z = 0$ в (3).

Из (14) и (15) следует, что поляризация $w_v = \sum w_v^{(j)}$ с заданным κ , вызванная диполем (3), (9), состоит из трех вкладов: вынужденного колебания $w_v^{(0)}$ с возбуждающей частотой ω и двух ($j = 1, 2$) сопровождающих колебаний $w_v^{(j)}$ с собственными частотами $u_j(\kappa)$ 2D ПЭ. Последние затухают за времена $\sim 1/g_j$, поэтому переходные процессы при импульсном возбуждении 2D ПЭ имеют длительность $\sim \max(1/g_j)$. Подставив теперь (14) и (15) вида $w(t) = A \sin(\omega t - \alpha)$ в формулу $p(x, t) = \text{Re}[\exp(ikx)w(t)]$, находим две волны поляризации $p_{\pm}(x, t) = A \sin(\omega t \mp \kappa x - \alpha)/2$ бегущие в разных направлениях оси x .

Интегрируя по z выражения (4), введем функции

$$\langle P^{(v)}(\kappa, t) \rangle = \sum_{j=0,1,2} \int P_j^{(v)}(z, \kappa, t) dz = l_v \sum_j w_v^{(j)}(\kappa, t). \quad (16)$$

При $t = 0$ имеем $w_v^{(j)}(\kappa, 0) \neq 0$ при всех j , но необходимо нулевому начальному условию удовлетворяет поляризация (16), т.е. $\langle P^{(v)}(\kappa, 0) \rangle = 0$ [2,3]. Это видно из рис. 3, а, где показаны зависимости $\langle P^{(v)}(\kappa, t) \rangle$ от t при возбуждении диполем $\boldsymbol{\mu} = \mu \mathbf{e}_x$ из (3). Для обоих типов поляризации $v = 1, 2$ эти зависимости сходны: $\langle P^{(v)} \rangle$ сначала растёт от нуля, немонотонно из-за биений, а при

$t > 1/g_j$ ($j = 1, 2$) переходит в режим установившегося вынужденного колебания $\langle P_{j=0}^{(v)} \rangle = l_v w_v^{(0)}$.

В заключение обсудим процесс, включающий возбуждение 2D ПЭ импульсом (9) и релаксацию после $t > \tau$. На рис. 3, b показана временная зависимость суперпозиции

$$\langle P(\kappa, t) \rangle = \sum_v \langle P^{(v)}(\kappa, t) \rangle = w_1(\kappa, t)l_1 + w_2(\kappa, t)l_2 \quad (17)$$

при тех же условиях, что на рис. 3, а, и $\tau = 700\pi/\omega$. При $0 < t < \tau$ (17) имеет такие же особенности, что видны для $\langle P^{(v)} \rangle$ на рис. 3, а. При релаксации ($t > \tau$) вынужденные колебания $w_v^{(0)}$ исчезают согласно (13), и затухание поляризации осуществляется колебаниями $w_v^{(j)}$ с $j = 1, 2$. На рис. 3, а и b видны биения, которые обусловлены энергообменом между компонентами 2D ПЭ при условии слабых диссипативных потерь. Существенно, что биения в начальном и конечном переходных процессах, предсказанные в двухосцилляторной модели 2D ПЭ, отсутствуют в одноосцилляторной модели [3].

4. Заключение

В этой работе исследованы два фундаментальных аспекта теории смешанных состояний 2D плазмонов и экситонов. Первый — это свойства безызлучательных связанных 2D ПЭ как таковых, независимо от способа их возбуждения. Вторым аспектом — ближнеполевое оптическое возбуждение 2D ПЭ импульсами произвольной длительности и их релаксация. В модели связанных гармонических колебаний показано, что при действии внешнего осциллирующего диполя возбуждаются 2D ПЭ, которые включают вынужденное и два затухающих собственных колебания. Предсказываются значительный эффект антикроссинга и наличие биений поляризации в переходных процессах, которые обусловлены кулоновским взаимодействием между компонентами 2D ПЭ. Появление биений поляризации в рассмотренной двухосцилляторной модели ПЭ доказывает наличие энергообмена между близкими по частоте компонентами смешанного состояния 2D ПЭ.

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M. Sukharev, A. Nitzan. J. Phys. Condens. Matter, **29**, 443003 (2017). DOI: 10.1088/1361-648X/aa85ef
- [2] V.A. Kosobukin. Solid State Commun., **342**, 114638 (2022). DOI: 10.1016/j.ssc.2021.114638
- [3] V.A. Kosobukin. Physica B: Condens. Matter, **674**, 415541 (2024). DOI: org/10.1016/j.physb.2023.415541
- [4] М.А. Лаврентьев, Б.В. Шабат. *Методы теории функций комплексного переменного* (М., Наука, 1987).

Редактор А.Н. Смирнов

Two-dimensional non-radiative plasmon-excitons, their near-field pulse excitation and relaxation

V.A. Kosobukin

Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract A theory is presented for non-radiative 2D plasmon-excitons propagating in atomically thin metallic and semiconducting layers placed nearby. For the waves of dielectric polarization of plasmon-excitons, the equations of motion are derived in the form characteristic of damped coupled oscillators excited by an external dipole force. The obtained dispersion relations and optical spectra reveal the presence of pronounced anti-crossing effect in the region of plasmon-exciton resonance. The transition regimes of near-field pulse exciting 2D plasmon-excitons and of their relaxation are discussed in terms of forced and damped concomitant oscillations undergone the beats.