

Двумерные кулоновские плазмон-экситоны: релаксация возбуждений

© В.А. Кособукин

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

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

Поступила в Редакцию 7 апреля 2021 г.

В окончательной редакции 7 апреля 2021 г.

Принята к публикации 21 апреля 2021 г.

Представлена теория релаксации двумерных нерадиационных (кулоновских) плазмон-экситонов в близко расположенных тонких слоях металла и полупроводника. В рамках классической электродинамики сформулированы уравнения движения для волн поляризации нерадиационных плазмонов и экситонов при наличии их кулоновской связи и внешнего ближнеполюсового источника поляризации. В модели связанных гармонических осцилляторов, представленных полями поляризации возбуждений, решена задача о затухании кулоновских плазмонов, экситонов и плазмон-экситонов. Показано, что дисперсионные ветви нормальных плазмон-экситонных мод испытывают антипересечение (отталкиваются) при резонансе между плазмоном и экситоном. С учетом диссипативного затухания возбуждений и энергообмена между ними исследован процесс релаксации плазмон-экситонов в зависимости от времени. Теория выявляет важные аналогии динамики плазмон-экситонов и других объектов линейной теории колебаний, таких как механические осцилляторы, резонансные электрические контуры и др.

Ключевые слова: плазмоны, экситоны, кулоновская связь, плазмон-экситоны, волны поляризации, процессы релаксации.

DOI: 10.21883/FTT.2021.08.51171.078

1. Введение

Коллективные электронные возбуждения в конденсированных средах обусловлены дальнедействием кулоновских сил, которое обеспечивает коррелированное движение огромного числа заряженных частиц. С коллективными возбуждениями (колебаниями) электронов связаны волны диэлектрической поляризации, плазмонной в металлах и экситонной в полупроводниках (диэлектриках). В наноструктурах и метаматериалах металл-полупроводник плазмоны и экситоны могут сосуществовать и влиять друг на друга посредством кулоновских сил [1–5]. В низкоразмерных системах эффекты резонансного взаимодействия поляризационных возбуждений проявляются особенно ярко, поскольку при понижении размерности качественно меняются как квантовые состояния электронов, так и характер кулоновских сил [6,7]. По этой причине неизменно растет научный и практический интерес к низкоразмерным коллективным возбуждениям, а в последние годы — и к их смешанным модам.

Для электронных возбуждений в твердых телах особое значение имеют смешанные моды резонансной поляризации и электромагнитного поля, известные как плазмонные и экситонные поляритоны. Поляритоны возбуждаются светом, что позволяет изучать радиационные плазмоны и экситоны оптическими методами [6,7]. Однако кроме поляритонных возбуждений чрезвычайно важны и интересны с физической точки зрения их нерадиационные (кулоновские) аналоги, для которых

электромагнитное запаздывание оказывается несущественным [8,9]. Кулоновские возбуждения могут играть важную роль в безызлучательном переносе электронных возбуждений, в люминесценции и рассеянии света, в оптике ближнего поля и т.п. К тому же, доля нерадиационных мод в плотности электромагнитных состояний существенно больше, чем доля радиационных мод.

Концепция кулоновских плазмон-экситонов сравнительно проста для систем, включающих ансамбли слоистых субволновых частиц полупроводник-металл, дипольные моды которых безусловно оптически активны [2–4,9]. В планарных наноструктурах непосредственное взаимодействие со светом поляризационных возбуждений, даже поляритонных, сильно затруднено из-за наличия строгих законов сохранения энергии и импульса [7]. Во взаимодействии со светом кулоновские возбуждения могут проявиться в случаях, когда законы сохранения нарушены. В работе [10] кратко обсуждались некоторые особенности кулоновских плазмон-экситонов, в частности, применительно к планарным наноструктурам. К этому лишь добавим, что структуры, поддерживающие низкоразмерные плазмон-экситоны, многовариантны из-за разнообразия состава и геометрии их металлической и полупроводниковой компонент. Для большинства работ, посвященных плазмон-экситонам, характерна констатация общих положений, касающихся взаимодействия плазмонов и экситонов, образования связанных мод, расщепления Раби в их спектре и т.п. (например, [2–5,11–13]). При этом технологически обусловленное различие исследуемых структур, как прави-

ло, привносит в дискуссию детали. Значительно меньше внимания уделялось изучению процессов плазмон-экситонного энергопереноса и релаксации возбуждений (сравни с [14]), хотя эти явления имеют фундаментальное значение [15]. Исследованию релаксации связанных плазмонов и экситонов посвящена настоящая статья.

Цель этой работы — построение теории зависящих от времени процессов релаксации двумерных кулоновских плазмон-экситонов. Рассмотрение относится к модели близко расположенных тонких слоев металла и полупроводника, поддерживающих двумерные плазмоны и экситоны. С учетом бозонного характера возбуждений свойства плазмон-экситонов обсуждаются на основе представлений классической электродинамики, как делается в кристаллооптике [8]. Задача решается на основе уравнений движения гармонических осцилляторов, которые сформулированы для кулоновски связанных волн поляризации двумерных плазмонов и экситонов при наличии вынуждающей силы. Содержание работы заключается в следующем. Модель и постановка задачи представлены в разделе 2, общее решение задачи и анализ спектра даны в разделе 3. В разделе 4 для плазмон-экситонов обсуждаются процессы релаксации, результаты численно анализируются в разделе 5.

2. Модель и основные уравнения

В качестве структурной модели для изучения плазмон-экситонов рассматриваем расположенные рядом слои металла и полупроводника, поддерживающие двумерные (2D) плазмоны и экситоны соответственно. Такая модель может относиться к наноструктурам металл-полупроводник с узкими квантовыми ямами и к актуальным структурам с атомарно-тонкими слоями металла и полупроводника. Предметом нашего изучения служат процессы релаксации кулоновских 2D-плазмон-экситонов в зависимости от времени.

Предполагаем, что в тонких слоях металла и полупроводника могут возбуждаться двумерные плазменная $\mathbf{P}^{(1)}$ и экситонная $\mathbf{P}^{(2)}$ поляризации, которые отмечаются далее верхними индексами 1 и 2 соответственно. Поля поляризации $\mathbf{P}^{(1)}$ и $\mathbf{P}^{(2)}$, имеющие резонансные частоты в оптическом диапазоне, взаимодействуют друг с другом по закону Кулона. Фоновая (при $\mathbf{P}^{(1)} = \mathbf{P}^{(2)} = 0$) диэлектрическая постоянная среды ϵ_b однородна и изотропна во всем пространстве. Уравнения колебаний кулоновски связанных гармонических осцилляторов, роль которых играют волны поляризации $\mathbf{P}^{(1)}$ и $\mathbf{P}^{(2)}$, формулируются далее в рамках классической электродинамики.

В плоской геометрии двумерное коллективное возбуждение с волновым вектором $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ можно представить волной диэлектрической поляризации вида

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \bar{\mathbf{P}}(\mathbf{k}, \omega) \delta(z) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - i\omega t}. \quad (1)$$

Такая волна распространяется с вектором \mathbf{k} в направлениях трансляционной симметрии с $\boldsymbol{\rho} = (x, y)$

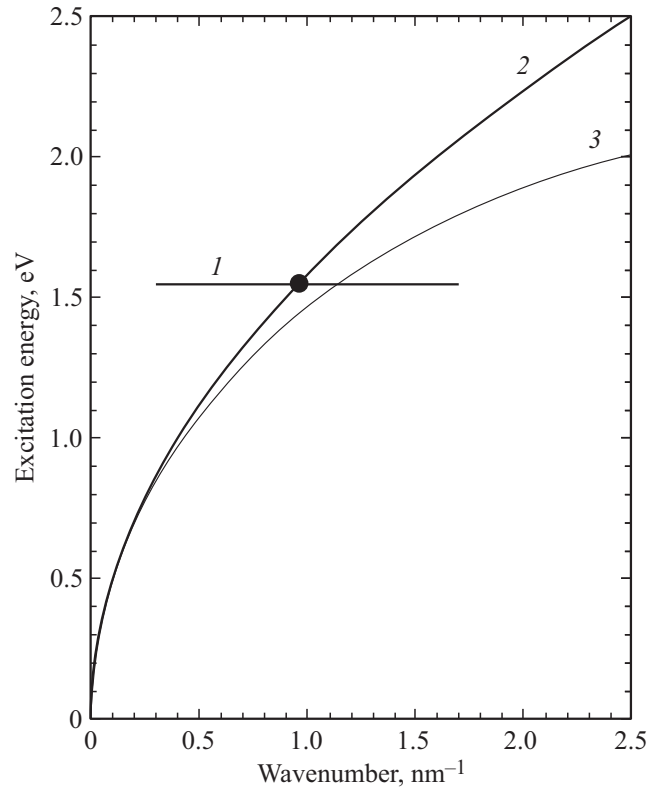


Рис. 1. Законы дисперсии 2D-экситонов $\hbar\omega_0$ (1) и плазмонов $\hbar\omega_{2D}$ (2) в зависимости от волнового числа k . Точка пересечения экситонной и плазмонной дисперсионных ветвей соответствует условию $\omega_0 = \omega_{2D}(k)$ плазмон-экситонного резонанса. Вычислено с параметрами, соответствующими слою металла в среде с $\epsilon_b = 12.5$ и слою полупроводника с $\hbar\omega_0 = 1.55$ eV. Кривая 3 изображает закон дисперсии квазипродольных плазмонов в тонкой ($L = 0.7$ nm) пленке Ag, находящейся в GaAs, сравни с [10].

и локализована вблизи плоскости $z = 0$ в направлении ограничения движения z . Для волн вида (1) закон дисперсии предполагается изотропным по направлениям \mathbf{k} в плоскости xu , при этом для кулоновских (квазистатических) мод $|\mathbf{k}| \gg k_0 = \omega/c$, где ω — частота, c — скорость света. С поляризацией (1) связана волна плотности электрического заряда $-\rho(\mathbf{r}) = \text{div } \mathbf{P}(\mathbf{r}) \sim [\bar{P}_x i k \delta(z) + \bar{P}_z \delta'(z)] e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$. Собственное электрическое поле $\mathbf{E}(z, k)$ волны поляризации (1) с $\mathbf{k} = k\mathbf{e}_x$ имеет компоненты x и z , затухающие по закону $E(z, k) \sim e^{-k|z|}$ при увеличении расстояния $|z|$.

В двумерном электронном газе существуют продольные плазмоны с законом дисперсии $\omega_{2D}(k) \sim \sqrt{k}$ [16]. Дисперсионная ветвь $\omega_{2D}(k)$, представленная кривой 1 на рис. 1, показывает, что 2D-плазмоны имеют бесцелевой спектр с нулевой частотой при $k = 0$, а их дисперсия определяется кулоновскими силами во всем диапазоне собственных частот. Плазмонная ветвь не пересекается со световыми прямыми $ck/\sqrt{\epsilon_b} > \omega_{2D}(k)$, т.е. 2D-плазмоны не возбуждаются светом непосред-

ственно. Однако двумерные плазмоны можно возбудить с помощью зонда, имеющего в плоскости $xу$ широкий пространственный спектр с $|\mathbf{k}| \gg k_0$. Это может быть пучок заряженных частиц, в том числе и токовый, ближнеполевой зонд, атомные агрегаты, нанонеоднородности и т. п., но эффективность возбуждения плазмонов или/и экситонов разными способами может сильно различаться. Подчеркнем, что дальнейшее обсуждение относится к плазме металлов, а 2D-плазмоны полупроводниковых квантовых ям, имеющие инфракрасный спектр, из рассмотрения исключаются. В отличие от 2D-плазмонов, квази 2D-экситоны имеют спектр, который определяется частотой оптического перехода ω_0 при $\kappa = 0$.

Кулоновские экситоны с $\kappa \gg k_0$ могут образовать связанные состояния с 2D-плазмонами. Для этого законы дисперсии парциальных мод (плазмона и экситона) должны удовлетворять условию резонанса $\omega_{\text{plasma}}(\mathbf{\kappa}) = \omega_{\text{exciton}}(\mathbf{\kappa})$, которому на рис. 1 соответствует пересечение дисперсионных ветвей 1 и 2. В случае нерadiационных парциальных возбуждений смешанные плазмон-экситонные моды тоже являются кулоновскими, и для их возбуждения требуются упомянутые выше источники поля с широким пространственным спектром ($\kappa \gg k_0$).

Рассмотрим вначале плазмоны в ультратонком слое металла с однородной двумерной плотностью n_{2D} электронного газа. В этой плазме для амплитуды волны поляризации $\mathbf{P}^{(1)}$ с вектором $\mathbf{\kappa}$ в плоскости $z = 0$ локальное уравнение линейного отклика на полное поле \mathbf{E} имеет вид (сравни с [10]):

$$-(\omega^2 + i\omega\Gamma_1)\mathbf{P}^{(1)}(z, \mathbf{\kappa}, \omega) = \frac{\omega_p^2 L}{4\pi} \delta(z)\mathbf{E}(z, \mathbf{\kappa}, \omega). \quad (2)$$

Здесь $\omega_p^2 = 4\pi e^2 n_{2D}/m$ — плазменная частота электронов в металле, L — эффективная толщина слоя плазмы с $n_{2D} = n_{3D}L$, а e , m и Γ_1 обозначают абсолютный заряд, эффективную массу и обратное время релаксации электронов. Представление отклика вырожденного электронного газа в форме (2) с дельта-функцией в правой части для 2D-плазмонов известно в литературе [16,17]. Соотношение (2) можно получить при $\kappa L \ll 1$ в феноменологической теории отклика квазипродольных поверхностных плазмонов пленки металла толщиной L [10], их закон дисперсии 3 показан на рис. 1. Переход к 2D-плазмонам в пленке при уменьшении толщины L , составляющей небольшое число монокристаллических слоев, обсуждался также в микроскопической теории [18]. Для кулоновских плазмонов модель должна удовлетворять следующим физическим ограничениям: $k_0 \ll \kappa \ll k_F$, где k_F — волновое число Ферми.

Для волны экситонной поляризации с вектором $\mathbf{\kappa}$ в тонком слое полупроводника материальное соотношение представим в форме

$$(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_2)\mathbf{P}^{(2)}(z, \mathbf{\kappa}, \omega) = \Omega^2 l \delta(z - h)\mathbf{E}(z, \mathbf{\kappa}, \omega). \quad (3)$$

Здесь ω_0 — частота 2D-экситона, Γ_2 — параметр его нерadiационного затухания. Экситонный отклик (3) на полное электрическое поле определяется константой Ω^2 , а l — характерная толщина экситонного слоя с центральной плоскостью $z = h$, где h — расстояние между плазмонным и экситонным слоями. Такой подход применим для экситонов в квантоворазмерных структурах и в актуальных структурах с ультратонкими слоями металла и полупроводника. Чтобы применить теорию к квази 2D-экситонам Ванье в полупроводниках со структурой ZnS, можно положить $\Omega^2 = \omega_0 \omega_{LT} \epsilon_b / (2\pi)$, где ω_0 — частота экситона, а ω_{LT} выражается через межзонный матричный элемент оператора импульса [6,10].

Согласно (2) и (3) распределение 2D-поляризации парциальных возбуждений обоих типов по нормали к слою формально описывается дельта-функцией: $P^{(n)}(z) \sim \bar{L}_n \delta(z - z_n)$, где \bar{L}_n — характерная длина локализации возбуждения. Переход к дельта-функции в материальных уравнениях оправдан, если электрическое поле, связанное с поляризацией (2) или (3), рассматривается вне области реальной поляризации. Для квази 2D-экситонов переход к форме (3), аналогичной (2), является результатом отказа [19] от нелокального описания отклика $\mathbf{P}^{(2)}$ [6,20] и замены $\psi(z) \rightarrow \sqrt{l} \delta(z)$ огибающей волновой функции 2D-экситона. Обоснованием такого подхода может служить, в частности, факт, что наблюдаемые оптические величины, например, коэффициент отражения, выражаются через интегралы от дипольной поляризации (от функции ψ) [6,10]. С теоретической точки зрения такой интеграл малочувствителен к деталям в распределении ψ поля поляризации, а на практике он входит в качестве константы в некоторый подгоночный параметр, определяемый из данных эксперимента (сравни с теорией [21]).

Сформулируем на основе соотношений (2) и (3) зависящие от времени уравнения движения для полей поляризации. Для этого в соотношениях сделаем замены $(-i\omega)^s \rightarrow d^s/dt^s$ ($s = 1, 2$), соответствующие преобразованию Фурье по времени функций $P_\alpha^{(n)}(z, \mathbf{\kappa}, t)$. Далее учитываем, что поляризация $\mathbf{P}^{(n)}(z', \mathbf{\kappa}, t)$ плазмонов ($n = 1$), экситонов ($n = 2$) или внешнего источника ($n = 0$) порождает в плоскости с координатой z фоновой среды электрическое поле [10]:

$$E_\alpha^{(n)}(z, \mathbf{\kappa}, t) = \sum_\beta \int dz' g_{\alpha\beta}(z - z', \mathbf{\kappa}) P_\beta^{(n)}(z', \mathbf{\kappa}, t). \quad (4)$$

В формуле (4) $g_{\alpha\beta}(z - z', \mathbf{\kappa})$ — тензорные компоненты функции Грина в $(z, \mathbf{\kappa})$ -представлении, вычисленные при $\mathbf{P}^{(n)} = 0$ в квазистатическом приближении (при неучете электромагнитного запаздывания) для однородной фоновой среды с проницаемостью ϵ_b [10]. Полное поле \mathbf{E} , стоящее в правых частях соотношений (2) и (3), является суперпозицией полей $\mathbf{E}^{(n)}$ вида (4).

С учетом формул (4) из уравнения (2) для поляризации плазмонов с волновым вектором $\mathbf{k} = \kappa \mathbf{e}_x$ находим

$$\left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_1 \frac{d}{dt} + \omega_{11}^2(\kappa) \right) P_\alpha^{(1)}(z, t) = \frac{\omega_p^2 L}{4\pi} \delta(z) \times \sum_{n=0,2} \sum_{\beta} \int dz' g_{\alpha\beta}(z - z') P_\beta^{(n)}(z', t). \quad (5)$$

Частота ω_{11} — это закон дисперсии продольных 2D-плазмонов

$$\omega_{2D}(\kappa) = \left(\frac{2\pi e^2 n_{2D}}{m \varepsilon_b} \kappa \right)^{1/2}, \quad (6)$$

полученный при учете по формуле (4) собственного продольного электрического поля плазмонов в слое электронного газа с 2D-плотностью n_{2D} . Слагаемые с $n = 0$ и 2 в правой части (5) выражают электрические поля внешнего источника и экситонов, действующие на плазмон.

Аналогично из соотношения (3) с учетом (4) для экситонной поляризации с $\mathbf{k} = \kappa \mathbf{e}_x$ находим

$$\left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_2 \frac{d}{dt} + \omega_{22}^2(\kappa) \right) P_\alpha^{(2)}(z, t) = \Omega^2 l \delta(z - h) \times \sum_{n=0,1} \sum_{\beta} \int dz' g_{\alpha\beta}(z - z') P_\beta^{(n)}(z', t). \quad (7)$$

Здесь частота $\omega_{22} \approx \omega_0$ в дополнение к ω_0 из (3) учитывает эффект собственного электрического поля (4) экситона [10].

Перенесем в левую часть уравнения (5) члены, связанные с поляризацией $\mathbf{P}^{(2)}$, а в левую часть уравнения (7) — члены, связанные с поляризацией $\mathbf{P}^{(1)}$. При наличии поляризации $\mathbf{P}^{(0)}$ внешнего источника это дает систему двух неоднородных интегральных по z и дифференциальных по t уравнений движения для взаимодействующих мод поляризации 2D кулоновских плазмонов и экситонов.

В качестве иллюстрации внешней поляризации напишем выражение $\mathbf{P}^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \boldsymbol{\mu}(t) \delta(\boldsymbol{\rho}) \delta(z - z_0)$ [10], которое соответствует источнику ближнего поля с дипольным моментом $\boldsymbol{\mu}(t)$, расположенным в точке $\mathbf{r}_0 = (0, 0, z_0)$. Чтобы учесть действие диполя на плазмоны и экситоны, следует подставить в правые части уравнений (5) и (7) Фурье-компоненту

$$\mathbf{P}^{(0)}(z, \kappa, t) = \boldsymbol{\mu}(t) \delta(z - z_0), \quad (8)$$

которая в случае квазиточечного диполя от κ не зависит.

3. Общее решение задачи

3.1. Уравнения движения. Найдем решение полученной выше системы уравнений с неизвестными $\mathbf{P}^{(1)}$ и $\mathbf{P}^{(2)}$ в левой части и с поляризацией $\mathbf{P}^{(0)}$ — в правой. Для

2D-плазмонов и экситонов рассматриваем продольные волны поляризации $P_\alpha^{(n)}(z, \kappa) = \delta_{\alpha x} P_x^{(n)}(z, \kappa)$ с $n = 1$ и 2 в направлении распространения $\mathbf{k} = \kappa \mathbf{e}_x$, при этом $P_z^{(n)}(z, \kappa) = 0$. Преобразуем интегральные по z уравнения (5) и (7), полагая

$$P_x^{(1)}(z, t) = w_1(t) L \delta(z),$$

$$P_x^{(2)}(z, t) = w_2(t) l \xi \delta(z - h), \quad (9)$$

где $h > 0$, а безразмерный множитель ξ определим ниже. В результате получаем систему дифференциальных по t уравнений

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_1 \frac{d}{dt} + \omega_{11}^2 \right) w_1(t) + \omega_{12}^2 \xi w_2(t) &= f_1(t), \\ \omega_{21}^2 w_1(t) + \left(\frac{d^2}{dt^2} + \Gamma_2 \frac{d}{dt} + \omega_{22}^2 \right) \xi w_2(t) &= f_2(t) \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

для неизвестных амплитуд $w_1(t)$ плазмонов и $w_2(t)$ экситонов с заданным κ . В левую часть системы уравнений (10) входят частоты

$$\left. \begin{aligned} \omega_{11}^2(\kappa) &= \frac{2\pi e^2 n_{2D}}{m \varepsilon_b} \kappa = \omega_{2D}^2, \quad \omega_{12}^2(\kappa) = \omega_{2D}^2 \frac{l}{L} e^{-\kappa h}, \\ \omega_{21}^2(\kappa) &= \frac{2\pi}{\varepsilon_b} \Omega^2 \kappa L e^{-\kappa h}, \quad \omega_{22}^2(\kappa) = \omega_0^2 + \frac{2\pi}{\varepsilon_b} \Omega^2 \kappa l. \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Функции $f_n(t)$ в правой части уравнений (10) выражают действие внешнего источника поляризации (8) на плазмон и экситон соответственно.

Для решения системы уравнений движения (10) используем операционный метод [22], основанный на преобразовании Лапласа

$$W_n(p) = \int_0^\infty dt e^{-pt} w_n(t), \quad (12)$$

которое для функции-оригинала $w_n(t)$ дает изображение $W_n(p)$ с комплексным p . Преобразование Лапласа уравнений (10) дает систему алгебраических уравнений

$$\left. \begin{aligned} (p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2(\kappa)) W_1(p) + \Delta \omega^2(\kappa) W_2(p) &= M_1(p) + F_1(p), \\ \Delta \omega^2(\kappa) W_1(p) + (p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2(\kappa)) W_2(p) &= M_2(p) + F_2(p) \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

для изображений $W_n(p)$. В правую часть системы (13) входят выражения

$$M_n(p) = (p + \Gamma_n) w_n^0 + \dot{w}_n^0, \quad (14)$$

которые определяются начальными (при $t = +0$) значениями $w_n^0 \equiv w_n(0)$ и $\dot{w}_n^0 \equiv \dot{w}_n(0)$ функций-оригиналов $w_n(t)$ из (9); точкой сверху отмечаются производные по t . Функциям-оригиналам $f_n(t)$ из (10) для внешней поляризации (8) при $t > 0$ в формулах (13) соответствуют изображения $F_n(p)$. Если $F_n(p) = 0$, то

уравнения (13) определяют вклады $W_n(p)$ плазмонов и экситонов в собственные плазмон-экситонные моды, а при $F_n(p) \neq 0$ уравнения (13) описывают вынужденные колебания.

Заметим, что уравнения (13) получены в результате перехода к симметрической матрице в переменных W_1 и W_2 при использовании в формулах (10) коэффициента $\xi = \omega_{21}/\omega_{12}$, равного $\xi = (\Omega/\omega_{2D})\sqrt{2\pi\kappa l/\epsilon_b(L/l)}$. При этом для недиагональных матричных элементов $\Delta\omega^2 = \omega_{12}\omega_{21}$ в (13) имеем

$$\Delta\omega^2(\kappa) = \omega_{2D}(\kappa)\Omega\sqrt{\frac{2\pi}{\epsilon_b}\kappa l}e^{-\kappa h}. \quad (15)$$

Величина (15) является немонотонной функцией κ с максимумом, положение которого зависит от геометрических параметров модели.

В общем случае решение системы уравнений (13) с $N_n = M_n + F_n$ в правой части имеет вид

$$W_1(p) = \frac{1}{D(p)}\{(p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2)N_1(p) - \Delta\omega^2 N_2(p)\}, \quad (16)$$

$$W_2(p) = \frac{1}{D(p)}\{-\Delta\omega^2 N_1(p) + (p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2)N_2(p)\}. \quad (17)$$

Знаменатель

$$D(p) = (p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2(\kappa)) \cdot (p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2(\kappa)) - \Delta\omega^4 \quad (18)$$

определяет спектр связанных мод, которые образуются при взаимодействии между плазмонами и экситонами. Это взаимодействие определяется значением константы связи $\Delta\omega$ из (15).

Вклады плазмонов $w_1(t)$ и экситонов $w_2(t)$ в плазмон-экситоны получаются в результате обратного преобразования Лапласа $W_n(p) \rightarrow w_n(t)$ изображений (16) и (17) с учетом (18). При обращении преобразования Лапласа учитывается полюсная структура функций $W_n(p)$ комплексного переменного p . Функции $W_n(p)$ из (16)–(18) имеют простые полюса $p_k = p'_k + ip''_k$ с номерами $k = 1-4$, которые являются корнями уравнения $D(p) = 0$ для полинома (18). Поскольку коэффициенты полинома $D(p)$ положительны, имеются две пары комплексно сопряженных корней

$$p_1 = -g_I - iu_I = p_2^*, \quad p_3 = -g_{II} - iu_{II} = p_4^*, \quad (19)$$

которые являются полюсами функции $D^{-1}(p) = \prod_{k=1}^4 (p-p_k)^{-1}$, входящей в (16) и (17). Оригиналы функций (16) и (17) при $t > 0$ получаются в результате обратного преобразования Лапласа $W_n(p) \rightarrow w_n(t)$, которое при использовании теории вычетов дает [22]:

$$w_n(t) = 2 \operatorname{Re} \sum_{p_k} \lim_{p \rightarrow p_k} e^{pt} (p - p_k) W_n(p). \quad (20)$$

Здесь предполагается суммирование по тем полюсам $p_k = p'_k + ip''_k$ функции $W_n(p)$, которые имеют отрицательные мнимые части, а именно по p_1, p_3 из (19). Найденные в результате вычисления (20) функции $w_n(t)$ определяют согласно (9) зависящие от времени вклады плазмонной и экситонной поляризации в смешанные плазмон-экситонные моды. Заметим, что при учете возбуждения плазмон-экситонов внешним источником функции $F_n(p)$ привносят в (16) и (17) дополнительные к (19) полюса, связанные с частотами колебаний внешней поляризации (8).

3.2. Спектр плазмон-экситонов. В отсутствие внешнего источника поляризации ($F_n = 0$) собственный спектр плазмон-экситонов определяется корнями уравнения $D(-i\omega) = 0$ для полинома (18). Найдем из этого уравнения явные выражения для входящих в (19) частот u_ν и параметров затухания g_ν смешанных плазмон-экситонных мод, которые нумеруем римскими цифрами $\nu = I, II$. Предполагаем, что парциальные плазмоны и экситоны затухают слабо, т.е. $\Gamma_n/\omega_{nn} \ll 1$ в (18). В нулевом приближении ($\Gamma_n = 0$) для двух нормальных мод плазмон-экситонов получаем законы дисперсии

$$u_{I,II}^2(\kappa) = \frac{\omega_{11}^2 + \omega_{22}^2}{2} \mp \sqrt{\frac{(\omega_{11}^2 - \omega_{22}^2)^2}{4} + \Delta\omega^4}. \quad (21)$$

Затем в низшем приближении по малым Γ_n находим параметры затухания

$$g_\nu(\kappa) = \frac{\Gamma_1(\omega_{22}^2 - u_\nu^2) + \Gamma_2(\omega_{11}^2 - u_\nu^2)}{2(\omega_{11}^2 + \omega_{22}^2 - 2u_\nu^2)} \quad (22)$$

для плазмон-экситонов с частотами u_ν . В результате формулах (19) имеем $u_\nu > 0$ из (21) и $g_\nu > 0$ из (22).

Выражения (21) и (22) приводят к следующим общим выводам о спектре плазмон-экситонов. Вблизи резонанса $\omega_{11} = \omega_{22}$ ($\omega_{2D} = \omega_0$ на рис. 1) поведение частот $u_{I,II}(\kappa)$ и параметров затухания $g_{I,II}(\kappa)$ определяется константой связи (15). При $\omega_{11} = \omega_{22}$ дисперсионные ветви $u_{I,II}(\kappa)$ из (21) в зависимости от κ демонстрируют антипересечение (отталкивание) частот $u_{II} - u_I = \Delta\omega^2/\omega_{11}$, при этом $u_I < \omega_{11}, \omega_{22} < u_{II}$ [10]. В области антипересечения параметры затухания (22) плазмон-экситонов с $\nu = I$ и II сближаются, так что $g_I = g_{II} = (\Gamma_1 + \Gamma_2)/4$ для мод с частотами u_I и u_{II} при условии $\omega_{11} = \omega_{22}$.

Далее мы рассмотрим зависящие от времени процессы релаксации плазмон-экситонов, обусловленные диссипативным затуханием парциальных возбуждений.

4. Релаксация плазмон-экситонов

Обсудим теперь применение представленной выше теории к изучению релаксации нерадикационных плазмон-экситонов вследствие затухания плазмонов и экситонов. В уравнениях (16) и (17) полагаем $F_n = 0$, тогда величины $N_n = M_n$ определяются начальными амплитудами плазмонов и экситонов согласно (14). Зависимость от времени амплитуд (20) в плазмон-экситоне

определяется полюсами (19) функции $D^{-1}(p)$, а функции $M_n(p)$ из (14) полюсов не имеют. При этих условиях выражение (20) дает

$$w_n(t) = 2 \operatorname{Re} \sum_{k=1,3} e^{pk t} \Phi_n(p_k) \prod_{\substack{k'=1 \\ (k' \neq k)}}^4 \frac{1}{p_k - p_{k'}} \\ = \sum_{\nu=I,II} e^{-g_\nu t} \operatorname{Re} [e^{-i u_\nu t} U_n(p_\nu)] \quad (23)$$

для плазмонной ($n = 1$) и экситонной ($n = 2$) амплитуд в смешанных модах. Суммирование проводится по парам комплексно сопряженных полюсов из (19), т.е. берется $p_I = p_1$ для моды с $\nu = I$ и $p_{II} = p_3$ для моды с $\nu = II$. В формуле (23)

$$U_n(p_\nu) = 2\Phi_n(p_\nu)H_\nu \equiv U_{n\nu}, \quad (24)$$

$$\left. \begin{aligned} \Phi_1(p) &= (p^2 + p\Gamma_2 + \omega_{22}^2)M_1(p) - \Delta\omega^2 M_2(p), \\ \Phi_2(p) &= -\Delta\omega^2 M_1(p) + (p^2 + p\Gamma_1 + \omega_{11}^2)M_2(p). \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

С учетом выражений (21) и (22) находим

$$H_\nu = \frac{1}{p_\nu - p_\nu^*} \frac{1}{(p_\nu - p_{\nu'}) (p_\nu - p_{\nu'}^*)} \Bigg|_{\substack{\nu'=I,II \\ \nu' \neq \nu}} \\ = \frac{is_\nu}{2u_\nu} \frac{1}{u_{II}^2 - u_I^2 - 2iu_\nu(g_{II} - g_I)}. \quad (26)$$

Здесь $s_I = 1, s_{II} = -1$ и

$$g_{II} - g_I = \frac{\Gamma_2 - \Gamma_1}{2} \frac{\omega_{22}^2 - \omega_{11}^2}{\sqrt{(\omega_{22}^2 - \omega_{11}^2)^2 + 4\Delta\omega^4}}. \quad (27)$$

Из формулы (27) очевиден следующий результат: $g_{II} = g_I$ при $\Gamma_2 = \Gamma_1$ или $\omega_{22} = \omega_{11}$.

Формула (23) для функций релаксации плазмонов и экситонов, входящих в плазмон-экситонные моды $\nu = I$ и II , принимает вид

$$w_n(t) = \sum_{\nu=I,II} w_n^{(\nu)}(t) \\ = \sum_{\nu=I,II} |U_{n\nu}| e^{-g_\nu t} \cos(u_\nu t - \phi_{n\nu}), \quad (28)$$

где $\phi_{n\nu} = \arctg[\operatorname{Im} U_{n\nu} / \operatorname{Re} U_{n\nu}]$. Таким образом, слагаемые $w_n^{(\nu)}$ с $\nu = I$ или II в сумме (28) выражают вклад плазмонов ($n = 1$) и экситонов ($n = 2$) в ν -ю смешанную моду, которая имеет частоту u_ν и время релаксации по энергии $1/(2g_\nu)$.

Заметим, что если $\Delta\omega = 0$ в уравнениях (13), то (28) переходит в выражения $\tilde{w}(t)$ для невзаимодействующих плазмонов ($n = 1$) и экситонов ($n = 2$). Для них имеем

$$\tilde{w}_n(t) = e^{-\Gamma_n t/2} \left[\tilde{w}_n^0 \cos(\omega_{nn} t) + \left(\tilde{w}_n^0 \frac{\Gamma_n}{2} + \dot{\tilde{w}}_n^0 \right) \frac{\sin(\omega_{nn} t)}{\omega_{nn}} \right]. \quad (29)$$

Формула (29) выражает общее решение задачи о затухающих колебаниях осциллятора с частотой ω_{nn} и параметром затухания Γ_n при начальных условиях $\tilde{w}_n(0) = \tilde{w}_n^0$ и $\dot{\tilde{w}}_n(0) = \dot{\tilde{w}}_n^0$.

5. Обсуждение результатов

Проанализируем численно решение задачи о релаксации плазмонной и экситонной компонент, образующих смешанные плазмон-экситонные моды с $\nu = I$ и II . При вычислении зависимостей (28) от времени используем комплексные частоты мод $u_\nu - ig_\nu$ из (21) и (22) и величины $U_{n\nu}$ из (24)–(27), которые учитывают плазмон-экситонное взаимодействие с помощью константы (15). Параметры 2D-плазмон-экситонов принимаем близкими к тем, что использовались в [10] для квази 2D-возбуждений. Для 2D-плазмонов в слое нанометровой толщины L считаем, что $n_{2D} \approx n_{3D}L$, где n_{3D} — плотность 3D электронного газа металла.

На рис. 2, *a* и 2, *b* представлены вычисленные по формулам (21) и (22) законы дисперсии $u_\nu(\kappa)$ и параметры затухания $g_\nu(\kappa)$ плазмон-экситонов с $\nu = I$ и II . Интерес представляет поведение этих зависимостей для мод, имеющих волновые числа вблизи значения κ , которое соответствует резонансу $\omega_{11}(\kappa) = \omega_{22}(\kappa)$ между плазмонами и экситонами. Вблизи резонанса в отсутствие затухания рис. 2, *a* показывает эффект антипересечения дисперсионных ветвей $u_I(\kappa)$ и $u_{II}(\kappa)$ для нормальных мод плазмон-экситонов. Из рис. 2, *b* видно, что величины параметров затухания g_ν плазмон-экситонов в области антипересечения перераспределяются между плазмоноподобной и экситоноподобной компонентами, причем при резонансе выполняется условие $g_I = g_{II}$ в согласии с формулой (27).

Вдали от резонанса ($\Gamma_n \ll |\omega_{22} - \omega_{11}|$) временные зависимости процессов релаксации невзаимодействующих плазмонов ($n = 1$) или экситонов ($n = 2$) приближенно описываются элементарной формулой (29). В случае экситонов большого радиуса параметры затухания обычно удовлетворяют условию $\Gamma_2 \ll \Gamma_1$, т.е. экситоны релаксируют за время $1/\Gamma_2$ существенно медленнее, чем плазмоны за время $1/\Gamma_1$.

Вблизи резонанса $\omega_{11} = \omega_{22}$ возбуждения и процессы их релаксации модифицируются из-за плазмон-экситонного взаимодействия. Согласно (24)–(27) величины $U_{n\nu}$ зависят от характера начального возбуждения смешанных мод с $\nu = I$ или II , каждая из которых является линейной комбинацией плазмона и экситона. Поэтому следует иметь в виду, что возбуждение любой из парциальных компонент $w_n^{(\nu)}$ с $n = 1$ и 2 на самом деле означает возбуждение ν -й смешанной моды как целого. Различие между компонентами $w_n^{(\nu)}(t)$ определяется величинами $U_{n\nu}$, которые отражают особенности плазмон-экситонного энергообмена в смешанной моде. Формула (28) показывает, что амплитуды $w_n^{(\nu)}(t)$ плазмона ($n = 1$) и экситона ($n = 2$) в смешанной моде с

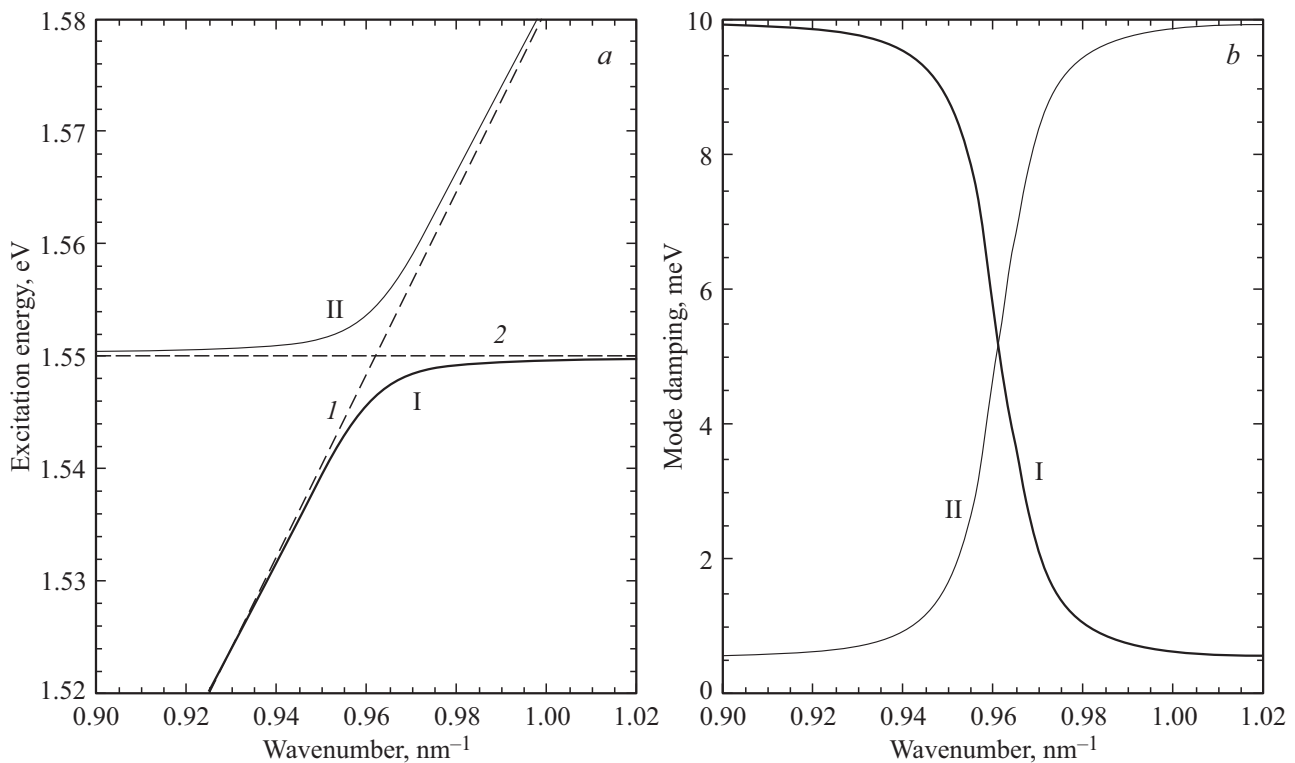


Рис. 2. (а) Законы дисперсии $\hbar\omega_I$ (I) и $\hbar\omega_{II}$ (II) нормальных волн 2D-плазмон-экситонов с волновыми числами κ при $\Gamma_1 = \Gamma_2 = 0$. Пунктиром показаны энергии парциальных 2D-плазмонов $\hbar\omega_{2D}$ (1) и экситонов $\hbar\omega_0$ (2). (б) Параметры затухания $\hbar g_I$ (I) и $\hbar g_{II}$ (II) 2D-плазмон-экситонов с энергиями $\hbar\omega_I$ и $\hbar\omega_{II}$ соответственно. Вычислено с $\hbar\Gamma_1 = 20$ meV, $\hbar\Gamma_2 = 1$ meV, $\hbar\Omega = 30$ meV, $L = 0.7$ nm, $l = h = 1$ nm и теми же другими параметрами, что на рис. 1.

номером ν и частотой ω_ν , экспоненциально затухают за время $1/g_\nu$.

Для примера рассмотрим релаксацию мод поляризации плазмон-экситонов, предполагая, что при $t = 0$ возбуждена волна экситонной поляризации из (9) с вектором κ и амплитудой $w_2^0 \neq 0$. Полагаем также, что $w_1^0 = \dot{w}_1^0 = \dot{w}_2^0 = 0$ при $t = 0$, тогда $M_1(p) = 0$, $M_2(p) = (p + \Gamma_2)w_2^0$ в формулах (14) и (25). Отметим, что по возбуждению 2D-экситонов имеются эксперименты, например [23], где используется ближнеполюсовое возбуждение с участием плазмонных поляритонов.

Зависимости от κ величин $|U_{n\nu}|$, вычисленных по формулам (24)–(27) и нормированных на w_2^0 , показаны на рис. 3 для смешанных мод $\nu = I$ и II, спектры которых представлены на рис. 2. Из рис. 3 видно, что если при $t = 0$ возбужден экситон ($w_2^0 \neq 0$), то в модах с κ вдали от резонанса $\omega_{11}(\kappa) = \omega_{22}(\kappa)$ существенны экситонные компоненты $|U_{2\nu}|$, а плазмонные $|U_{1\nu}|$ подавлены. В непосредственной близости к резонансу величины $|U_{2\nu}|$ перераспределяются между модами $\nu = I$ и II, а величины $|U_{1\nu}|$ для плазмонных составляющих этих мод значительно возрастают. При заданном n функции $|U_{n\nu}|$ от κ для мод с разными ν имеют характерную симметрию относительно значения κ , соответствующего плазмон-экситонному резонансу $\omega_{11}(\kappa) = \omega_{22}(\kappa)$. Возрастание плазмонных составляющих $|U_{1\nu}|$ в области резонанса (антипересечения) означает ускорение релак-

сации плазмон-экситонов через относительно быстро затухающую плазмонную компоненту.

Проявление этих особенностей во временной зависимости релаксации плазмон-экситонов иллюстрирует рис. 4. На нем изображены затухающие при $t > 0$

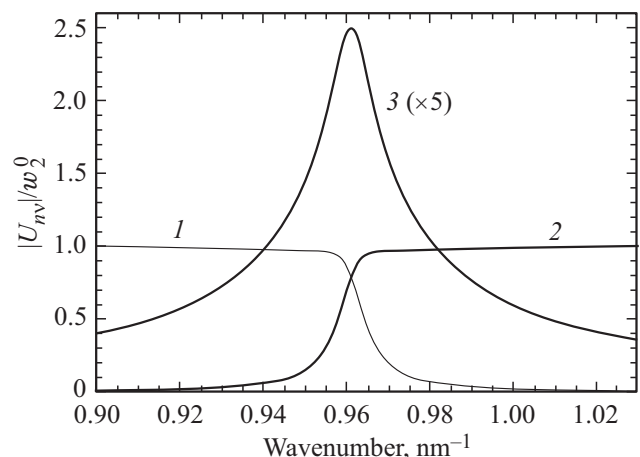


Рис. 3. Зависимости от волнового числа амплитуд $|U_{n\nu}|/w_2^0$ плазмонов ($n = 1$) и экситонов ($n = 2$) в плазмон-экситонных модах с $\nu = I$ и II. Функции $|U_{2,II}|$ (1), $|U_{2,I}|$ (2), $|U_{1,I}|$ и $|U_{1,II}|$ (3, умножено на 5) нормированы на амплитуду экситона w_2^0 , возбужденного при $t = 0$. Вычислено с теми же параметрами, что на рис. 2.

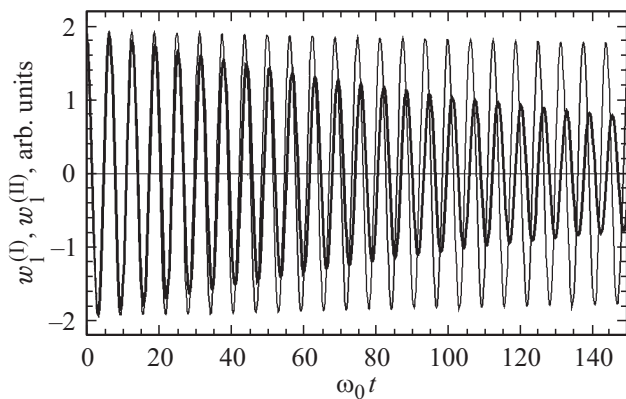


Рис. 4. Зависимость от времени $\omega_0 t$ затухающих амплитуд $w_1^{(I)}$ (жирная линия) и $w_1^{(II)}$ (тонкая линия) плазменной поляризации в плазмон-экситонных модах с $\nu = I$ и II соответственно. Вычислено с теми же параметрами, что на рис. 2, в предположении, что при $t = 0$ был возбужден экситон с $w_2^0 \neq 0$ и $\kappa = 0.95 \text{ nm}^{-1}$.

плазмонные компоненты $w_1^{(\nu)} \sim \exp(-g_\nu t)$ в смешанных модах $\nu = I, II$ при условии, что первоначально был возбужден экситон ($w_2^0 \neq 0$) с $\kappa = 0.95 \text{ nm}^{-1}$. Видно, что амплитуда $w_1^{(I)} \sim \exp(-g_I t)$ моды с $\nu = I$, которая является плазмоноподобной согласно рис. 2, а, затухает значительно быстрее, чем амплитуда $w_1^{(II)} \sim \exp(-g_{II} t)$ экситоноподобной моды с $\nu = II$. Этот вывод находится в согласии с рис. 2, б, из которого следует, что $g_I \gg g_{II}$ при $\kappa = 0.95 \text{ nm}^{-1}$.

6. Заключение

Выше представлена теория двумерных плазмон-экситонов и процессов их релаксации в зависимости от времени. Сформулированы уравнения, описывающие возбуждение и затухание плазмон-экситонных мод в классической модели связанных осцилляторов, роль которых играют волны поляризации двумерных плазмонов и экситонов. Для этих поляризационных возбуждений найдена константа взаимодействия (кулоновской связи), которая обеспечивает образование смешанных плазмон-экситонных мод. Поведение частот нормальных мод плазмон-экситонов при прохождении резонанса между плазмоном и экситоном имеет характерные признаки антипересечения частот. При учете затухания парциальных плазмонов и экситонов предполагалось, что вдали от их резонанса спектр состоит из узкого экситонного и широкого плазмонного уровней энергии. Показано, что при резонансе они трансформируются в два плазмон-экситонных уровня одинаковой ширины, симметричных относительно частоты резонанса.

Представленная теория плазмон-экситонов в модели связанных гармонических осцилляторов делает прозрачной их аналогию с возбуждениями других систем линейной теории колебаний (механические осцилляторы, электрические контуры и др. [24]). В частности, это

важно для обобщения теории низкоразмерных плазмонов, экситонов и плазмон-экситонов на периодические и неупорядоченные структуры металл-полупроводник.

Конфликт интересов

У автора отсутствует конфликт интересов.

Список литературы

- [1] A.A. Toropov, T.V. Shubina. Plasmonic Effects in Metal-Semiconductor Nanostructures. Oxford Univ. Press (2015). 371 p.
- [2] M. Achermann. J. Phys. Chem. Lett. **1**, 2837 (2010).
- [3] B.G. DeLacy, O.D. Miller, C.W. Hsu, Z. Zander, S. Lacey, R. Yagloski, A.W. Fountain, E. Valdes, E. Anquillare, M. Soljacic, S.G. Johnson, J.D. Joannopoulos. Nano Lett. **15**, 2588 (2015).
- [4] A.O. Govorov, G.W. Bryant, W. Zhang, T. Skeini, J. Lee, N.A. Kotov, J.V. Slocik, R.R. Naik. Nano Lett. **6**, 5, 984 (2006).
- [5] V.A. Kosobukin. Solid State Commun. **228**, 43 (2016).
- [6] E.L. Ivchenko. Optical spectroscopy of semiconductor nanostructures. Alpha Science International Ltd. (2005). 427 p.
- [7] Поверхностные поляритоны. Электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред. / Под ред. В.М. Аграновича и Д.Л. Миллса. Наука, М. (1985). 525 с.
- [8] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
- [9] U. Kreibig, M. Vollmer. Optical properties of metal clusters. Springer (1995). 532 p.
- [10] В.А. Кособукин. ФТТ **63**, 4, 527 (2021).
- [11] J. Bellessa, C. Bonnard, J.C. Plenet, J. Mugnier. Phys. Rev. Lett. **93**, 3, 036404 (2004).
- [12] S. Balci. Opt. Lett. **38**, 21, 4498 (2013).
- [13] B.J. Lawrie, K.-W. Kim, D.P. Norton, R.F. Haglund Jr. Nano Lett. **12**, 6152 (2012).
- [14] М.Г. Кучеренко, Т.М. Чмерева. Оптика и спектроскопия **125**, 2, 165 (2018).
- [15] В.М. Агранович, М.Д. Галанин. Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах. Наука, М. (1978). 383 с.
- [16] Т. Андо, Ф. Фаулер, Ф. Стерн. Электронные свойства двумерных систем. Мир, М. (1985). 415 с.
- [17] В.А. Кособукин. ФТТ **28**, 11, 3516 (1986).
- [18] W.G. Teich, G. Mahler. Phys. Status Solidi B **138**, 2, 607 (1986).
- [19] В.А. Кособукин, А.Н. Поддубный. ФТТ **49**, 10, 1883 (2007).
- [20] Е.Л. Ивченко. ФТТ **33**, 8, 2388 (1991).
- [21] E.S. Khrantsov, P.A. Belov, P.S. Grigoryev, I.V. Ignatiev, S.Yu. Verbin, Yu.P. Efimov, S.A. Eliseev, V.A. Lovtcius, V.V. Petrov, S.L. Yakovlev. J. Appl. Phys. **119**, 18, 184301 (2016).
- [22] М.А. Лаврентьев, Б.В. Шабат. Методы теории функций комплексного переменного. Наука, М. (1987). 688 с.
- [23] Y. Zhou, G. Scuri, D.S. Wild, A.A. High, A. Dibos, L.A. Jauregui, C. Shu, K. De Greve, K. Pistunova, A.Y. Joe, T. Taniguchi, K. Watanabe, P. Kim, M.D. Lukin, H. Park. Nat. Nanotechnol. **12**, 856 (2017).
- [24] С.П. Стрелков. Введение в теорию колебаний. Наука, М. (1964). 437 с.

Редактор Ю.Э. Кутаев