

РАССЕЯНИЕ ПОЛЯРИТОНОВ НА ФЛУКТУАЦИЯХ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ

П.И. Арсеев

Исследовано рассеяние поляритонов на флуктуациях диэлектрической проницаемости ϵ , обусловленных перестройкой электронного спектра при малых изменениях толщины пленки. Показано, что в окрестности экситонных линий влияние флуктуаций ϵ важнее, чем непосредственно рассеяние на неровностях границ пленки.

Вопрос о влиянии флуктуаций диэлектрической проницаемости ϵ на распространение поляритонов в пленках, во-первых, имеет самостоятельное значение для неоднородных по составу полупроводниковых пленок, во-вторых, представляет особый интерес в тонких пленках с сильным размерным квантованием, где флуктуации ϵ тесно связаны с неровностью границ. При исследовании рассеяния электромагнитных волн на флуктуациях ϵ удобно построить сначала теорию возмущений для запаздывающей функции Грина электромагнитного поля $D_{\alpha\beta}(\omega, \mathbf{r}, \mathbf{r}')$, которая удовлетворяет уравнению ¹:

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial x_\alpha \partial x_\gamma} - \delta_{\alpha\gamma} \Delta - \delta_{\alpha\gamma} \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\mathbf{r}) \right] D_{\gamma\beta}(\omega, \mathbf{r}, \mathbf{r}') = -4\pi\hbar \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (1)$$

где $x_\alpha = \{x, y, z\}$, Δ – оператор Лапласа, $\epsilon(\mathbf{r})$ принимает значения ϵ_1 и ϵ_2 соответственно в полупространствах $z < 0$ и $z > d$. Так как в дальнейшем, считая $\frac{\omega}{c} d \ll 1$, будем пользоваться усредненными по толщине пленки величинами полей, то диэлектрическую проницаемость пленки, расположенной в области $0 < z < d$, запишем в виде $\epsilon = \epsilon_0 + \delta\epsilon(\rho)$.

Уравнение (1) можно записать в интегральном виде

$$D_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = D_{\alpha\beta}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \frac{1}{4\pi\hbar} \int_0^d dz_1 \int d\vec{\rho}_1 D_{\alpha\gamma}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) \frac{\omega^2}{c^2} \delta\epsilon(\vec{\rho}_1) D_{\gamma\beta}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'), \quad (2)$$

где $D_{\alpha\beta}^0$ соответствует случаю пленки с постоянной ϵ_0 (различные компоненты $D_{\alpha\beta}^0$ приведены в ²). Выражение первого порядка по $\delta\epsilon$ $D_{\alpha\beta}^{(1)}$ получается при подстановке в интег-

рал в правой части уравнения (2) D^0 вместо D . По функции $D^{(1)}$ легко найти эффективный оператор возмущения, соответствующий флуктуациям ϵ , для рассеяния волн различных типов, после чего длина свободного пробега определяется аналогично случаю рассеяния поверхностных плазмонов на неровностях границы металла³. Так, считая, что корреляционная функция флуктуаций имеет вид

$$g(\vec{\rho}) = \langle \delta \epsilon(0) \delta \epsilon(\vec{\rho}) \rangle = (\delta \epsilon)^2 \exp \left[-\frac{\rho^2}{a^2} \right] \quad (3)$$

и при этом рассматриваются поляритоны с волновыми векторами p , удовлетворяющими условиям $\frac{\omega}{c} \ll p \ll 1/d$, получим для длины свободного пробега l поляритонов TM - и TE -типа следующие выражения

$$\frac{1}{l_{\Pi}^{TM}} \approx \frac{\pi}{4} p^5 (\delta \epsilon d a)^2; \quad \frac{1}{l_R^{TM}} \approx p^2 \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 (\delta \epsilon d a)^2, \quad (4)$$

$$\frac{1}{l_{\Pi}^{TE}} \approx \frac{\pi}{16} p \left(\frac{\omega}{c} \right)^4 (\delta \epsilon d a)^2, \quad \frac{1}{l_R^{TE}} \approx \left(\frac{\omega}{c} \right)^5 (\delta \epsilon d a)^2.$$

Здесь для простоты считалось, что $pa \ll 1$, а индексы R и Π отвечают вкладу в затухание поляритонов из-за рассеяния в фотоны или в другие поляритоны соответственно. Рассматриваемые поляритоны TM -типа существуют при условии $1 \ll -\epsilon \ll 1/(\omega/c)d$, а волны TE -типа — при условии $1/(\omega/c)d \ll \epsilon \ll 1/(\omega/c)d^2$. Подробное описание поляритонов в тонких пленках можно найти в⁴.

При сравнении (4) с выражениями для затухания поляритонов из-за рассеяния на неровностях границ пленки, приведенными в работе², оказывается, что, если b — средняя высота неровностей, a — их средняя ширина (та же, что и в (3)), то рассеяние на флуктуациях ϵ является более сильным, когда $\delta \epsilon > \epsilon_0(b/d)$. Если изменение ϵ вызвано изменением толщины d , это условие может быть выполнено, когда частота ω близка к одной из резонансных частот пленки ω_0 , например, к частоте экситонного перехода. Тогда ϵ имеет вид

$$\epsilon = \epsilon_{\text{фон}} + \frac{A}{\omega(\vec{\rho}) - \omega - i\Gamma}, \quad (5)$$

где

$$\omega(\vec{\rho}) = \omega_0 + \Delta\omega(\vec{\rho}),$$

$$\Delta\omega(\vec{\rho}) \approx 4\omega_p \frac{d - d(\vec{\rho})}{d}, \quad \omega_p = \frac{\hbar \pi^2}{d^2 m^*}$$

d — средняя толщина пленки, m^* — эффективная масса экситона, Γ — ширина экситонного уровня. Если выполнены соотношения

$$A/\Gamma \gg 1, \quad \omega_p \gg \Gamma, \quad \Delta\omega_{\text{max}} \gtrsim \Gamma, \quad (6)$$

то из (5) видно, что величина $\epsilon(\omega)$ может значительно флуктуировать, даже при $b/d \ll 1$. Поскольку при этом изменение ϵ для частот вблизи ω_0 порядка самой величины ϵ , то $\delta \epsilon d > \epsilon b$. Рассеяние света и поверхностных поляритонов с такими частотами будет определяться в основном флуктуациями ϵ , а не непосредственным взаимодействием с неровностями. Это означает, что в этом случае границы пленки можно считать плоскими, учитывая лишь изменение ϵ , как это и предполагалось в уравнениях (1) и (2). Тем самым, рассматривая рассеяние поляритонов с волновыми векторами $p \gg \omega/c$ без учета эффектов запаздывания (т. е. не учитывая их рассеяния в фотоны, которое в силу формул (4) много меньше рассеяния поляритонов друг в друга приходим к задаче о двумерной системе со случай-

ным потенциалом. Заметим, что при исследовании локализации продольных поверхностных плазмонов на неровной поверхности металла мы сталкиваемся с существенно трехмерной ситуацией.

Как известно, в двумерной неупорядоченной системе все состояния должны быть локализованы (см., например, ⁵). Однако, пока длина свободного пробега l_{Π} велика по сравнению с длиной волны поляритона λ_{Π} , локализация происходит на длинах, много больших λ_{Π} . Состояния становятся сильно локализованными, если флуктуации ϵ таковы, что $l_{\Pi} \sim \sim \lambda_{\Pi}$. Считая $a \sim \lambda_{\Pi}$, для этого необходимо, чтобы $\delta\epsilon = a/d$. Такие значения $\delta\epsilon$ возможны при выполнении условий (6). Таким образом, поляритоны в тонких пленках с частотами вблизи ω_0 могут локализоваться на длинах порядка исходной длины волны даже при очень малых флуктуациях толщины пленки. Используя выражение для диэлектрической проницаемости в окрестности экситонного перехода ⁴, можно показать, что для пленок с $d = 100 \text{ \AA}$ условия (6) выполняются при $\Gamma < 10^{13} \text{ 1/c} \approx 10^{-2} \omega_0$.

За счет возбуждения таких локализованных состояний падающим светом может значительно возрасти величина локального поля на поверхности пленки, что должно приводить к сильному увеличению эффективных сечений рассеяния света адсорбированными на пленке молекулами, аналогично эффектам усиления на неровных поверхностях металлов и островковых пленках ⁶.

В заключение отметим, что учитывалось только адиабатическое изменение резонансной частоты пленки при изменении ее толщины, что может быть оправдано только для небольших плавных изменений $d(\rho)$ на расстояниях много больших средней толщины. Учет эффектов локализации электронов в пленке из-за неровностей ее границ в случае более резких флуктуаций толщины приводит к более сложному изменению спектра пленки. В этом случае вопрос о флуктуациях ϵ требует отдельного рассмотрения.

Автор выражает благодарность Л.В.Келдышу за полезные обсуждения в ходе работы.

Литература

1. Дзялошинский И.Е., Питаевский Л.П. ЖЭТФ, 1959, 36, 1797.
2. Арсеев П.И. Препринт ФИАН, 1986, № 200.
3. Maradudin A.A., Zierau W. Phys. Rev., 1976, B14, 484.
4. Келдыш Л.В. Письма в ЖЭТФ, 1979, 30, 244.
5. Горьков Л.П., Ларкин А.И., Хмельницкий Д.Е. Письма в ЖЭТФ, 1979. 30, 248.
6. Gersten J.I., Nitzan A. J. Chem. Phys., 1980, 73, 3023.