Письма в ЖЭТФ, том 124, вып. 10, с. 840 – 847 © 2026 г. 25 ноября

Ближнепольная электромагнитная связь в наносферах с плазмонным ядром и внешней экситонной оболочкой[1)]

В. С. Лебедев[2)], *С. С. Моритака*

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 апреля 2026 г.
После переработки 29 сентября 2026 г.
Принята к публикации 5 октября 2026 г.

Предложен новый способ определения количественной меры плазмон-экситонной связи в двухслойных наносферах. Получены аналитические формулы для двух констант связи и частот двух экситонных мод оболочки и плазмонной моды металлического ядра. Эти величины выражены через исходные диэлектрические параметры ядра и оболочки, а также геометрические параметры частицы. Преимущество разработанной модели состоит в том, что она корректно описывает эффекты электромагнитной связи дипольного плазмона с двумя расщепленными модами экситонной оболочки и спектры экстинкции гибридной частицы, в отличие от модели двух связанных осцилляторов с одной константой связи. Результаты работы представляют интерес для нанофотоники и оптики гибридных наноструктур.

DOI: 10.7868/S3034576626110202

1. Введение. Одно из интенсивно развиваемых направлений нанофотоники тесно связано с исследованиями в области оптики и спектроскопии гибридных наноструктур “ядро-оболочка”, созданных на основе плазмонной и экситонной подсистем [1, 2] (рис. 1a). Оптические свойства таких структур определяются электромагнитной связью поверхностных плазмон-поляритонов с экситонами в молекулярных системах или в квантоворазмерных полупроводниковых структурах. К настоящему времени разработаны эффективные методы расчета оптических спектров таких систем. Среди них отметим квазистатические модели [3, 4], обобщенную теорию Ми для многослойных сфер [5] и методы численного решения уравнений Максвелла для структур сложной формы.

При изучении эффектов плазмон-экситонного взаимодействия и выяснении их роли в актуальных задачах нанофотоники принципиально важно охарактеризовать его эффективность, определяемую константами связи. Это требуется, в частности, для решения задач оптической сенсорики [6], для нахождения скоростей обмена энергией между плазмонами и экситонами [7] и переноса энергии излучения к активному слою гибридных фоточувствительных устройств [8], для эффективной генерации фотонных пар [9], а также для установления скоростей радиационного и нерадиационного распада экситонов в плазмонных микрорезонаторах [10, 11]. Важно, что каждому из режимов плазмон-экситонной связи (слабой, сильной и ультрасильной), радикально отличающихся друг от друга характером динамики электронных возбуждений и их проявлениями в оптических спектрах, присущи свои типичные значения констант связи [1, 2]. В простейшем варианте теории это следует непосредственно из известной модели двух связанных осцилляторов или из эквивалентного ей метода эффективного двухуровневого гамильтониана с одной константой связи g [1, 2, 6, 12].

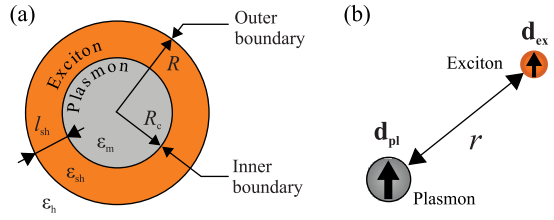

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схематический вид двухслойной плазмон-экситонной наносферы. R_c и R – радиусы ядра и оболочки толщины l_{sh}. ε_m, ε_{sh} и ε_h – диэлектрические проницаемости металлического ядра, экситонной оболочки и окружающей среды. (b) – Система двух точечных частиц с дипольными моментами $\mathbf{d}_{pl}$ и $\mathbf{d}_{ex}$, разделенных расстоянием $\mathbf{r}$, с аксиальной симметрией [2, 12]

Таким образом, знание констант связи необходимо для решения ряда фундаментальных и прикладных задач современной нанофотоники, в том чис-

[1)] См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ru

[2)] e-mail: lebedevvs@lebedev.ru

ле для создания новых материалов с заданными оптическими свойствами. Однако как сами уравнения Максвелла, так и их точные (теория Ми) или приближенные решения не содержат в явном виде констант электромагнитной связи экситонов с плазмонами. Поэтому применительно к изучению эффектов электромагнитного взаимодействия плазмонной и экситонной подсистем гибридных структур фундаментальной задачей нанофотоники является физически обоснованное введение в теорию количественной меры эффективности этого взаимодействия [2, 6]. Ее решение требует в каждом конкретном случае учета реальной геометрии исследуемой системы, надежного описания ее диэлектрических свойств, анализа структуры мод плазмонной и экситонной подсистем, а также гибридных мод всей системы.

Несмотря на актуальность, решение задачи об определении констант связи в гибридных плазмон-экситонных наноструктурах до сих пор ограничивалось использованием известных моделей двух связанных диполей [2, 6, 12]. Однако система двух связанных, разделенных расстоянием r диполей (рис. 1b), обладает аксиальной, а не сферической симметрией (рис. 1a), так что в рамках традиционной модели двух связанных осцилляторов не удается надежно воспроизвести поведение оптических спектров частиц "ядро-оболочка".

Цель работы – разработка подхода, позволяющего корректно определить количественную меру эффективности плазмон-экситонной связи в двухслойных наносферах путем включения в теорию двух констант связи, g_+ и g_-, отражающих сферическую симметрию и оптические свойства плазмонной и экситонной компонент частицы. Появление двух констант связи – следствие расщепления экситонного пика из-за наличия внутренней и внешней границ оболочки частицы с металлическим ядром и окружающей средой (рис. 1a). Подход, разрабатываемый в нашей работе, основан на методе эффективного гамильтониана, который широко используется в квантовой механике, оптике и электродинамике [13, 14].

2. Исходные формулы. Мы исходим из формулы квазистатического приближения для сечения экстинкции наносферы с поляризуемостью $\alpha(\omega)$:

$$\sigma_{\rm ext}(\omega) = \frac{4\pi\omega}{c}\sqrt{\varepsilon_h}\,{\rm Im}\{\alpha(\omega)\}, \qquad (1)$$

где ω – частота падающего света, c – скорость света в вакууме, ε_h – диэлектрическая проницаемость окружающей среды. В отличие от традиционной постановки задачи об эффективности плазмон-экситонной связи в рамках модели двух связанных точечных дипольных осцилляторов (рис. 1b), в нашем рассмотрении α является эффективной поляризуемостью двухслойной сферы (рис. 1a), состоящей из металлического ядра радиусом $R_{\rm c}$ и экситонной оболочки с внешним радиусом R. Полный объем частицы V, объем ядра $V_{\rm c}$ и оболочки $V_{\rm sh}$ имеют вид

$$V = V_{\rm c} + V_{\rm sh}, \quad V_{\rm c} = \frac{4\pi}{3}R_{\rm c}^3, \quad V_{\rm sh} = \frac{4\pi}{3}(R^3 - R_{\rm c}^3). \quad (2)$$

Формула (1) применима к частицам с размером $R \lesssim \lambda\!\!\!^{-}$. Эффекты пространственной дисперсии не оказывают заметного влияния на спектры поглощения исследуемых частиц с радиусом $R_{\rm c} \gtrsim 5$ нм. Эффектами запаздывания можно пренебречь для частиц с радиусами $R_{\rm c} \lesssim 20 - 25$ нм (см. [2]).

Динамическая дипольная поляризуемость, $\alpha(\omega)$, двухслойной наносферы имеет вид [5]

$$\alpha = \frac{(\varepsilon_m - \varepsilon_{\rm sh})(2\varepsilon_{\rm sh} + \varepsilon_h)R_{\rm c}^3 + (\varepsilon_{\rm sh} - \varepsilon_h)(2\varepsilon_{\rm sh} + \varepsilon_m)R^3}{(\varepsilon_{\rm sh} + 2\varepsilon_h)(2\varepsilon_{\rm sh} + \varepsilon_m) + 2(\varepsilon_m - \varepsilon_{\rm sh})(\varepsilon_{\rm sh} - \varepsilon_h)\,(R_{\rm c}/R)^3}, \qquad (3)$$

где ε_m, $\varepsilon_{\rm sh}$ и ε_h – диэлектрические проницаемости ядра, оболочки и окружающей среды. Магнитная проницаемость $\mu = 1$. Диэлектрическая проницаемость металла содержит вклады внутризонных и межзонных переходов, $\varepsilon_m = \varepsilon_{\rm intra} + \varepsilon_{\rm inter}$. Если $\varepsilon_{\rm inter} = {\rm const}$, то в исследуемой области частот применима модифицированная формула Друде

$$\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon_m^{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_{\rm e}}, \quad \widetilde{\alpha}_{\rm pl}(\omega) = \frac{3}{4\pi}\frac{\varepsilon_m(\omega) - \varepsilon_h}{\varepsilon_m(\omega) + 2\varepsilon_h}. \quad (4)$$

Здесь ω_p – плазменная частота электронов; $\gamma_{\rm e}$ – коэффициент затухания с учетом рассеяния электронов на поверхности металлического ядра [2]. Поляризуемость $\widetilde{\alpha}_{\rm pl}$ единицы объема ядра следует из формулы Клаузиуса–Моссотти. Для частоты плазмонного резонанса имеем формулу Фрелиха

$$\omega_{\rm pl} = \frac{\omega_p}{\sqrt{\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h}}, \quad \omega_p = \sqrt{\frac{4\pi e^2 N_e}{m}}, \qquad (5)$$

где N_e – концентрация электронов, e и m – их заряд и масса. Для диэлектрической проницаемости оболочки будем использовать изотропную модель

$$\varepsilon_{\rm sh}(\omega) = \varepsilon_{\rm sh}^{\infty} + \frac{f\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_{\rm ex}}. \qquad (6)$$

Здесь f – сила осциллятора экситонного перехода, ω_0 и $\gamma_{\rm ex}$ – его центральная частота и ширина, $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ – фоновая диэлектрическая проницаемость.

3. Аналитическая модель. При анализе плазмон-экситонной связи в двухслойной наносфере следует иметь в виду, что из-за наличия внешней и внутренней границ оболочки с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_{\rm sh}$ в ее поляризуемости $\widetilde{\alpha}_{\rm sh}$ вместо одного резонанса на частоте ω_0 возникает два расщепленных пика [4, 15] с резонансными частотами $\omega_{\rm ex}^{+}$ и $\omega_{\rm ex}^{-}$. Они соответствуют верхней и нижней экситонным модам, описываемым двумя различными вкладами, $\widetilde{\alpha}_{\rm ex}^{+}$ и $\widetilde{\alpha}_{\rm ex}^{-}$, в поляризуемость $\widetilde{\alpha}_{\rm sh}$:

$$\widetilde{\alpha}_{\rm ex}^{\pm}=\frac{3\left(\varepsilon_{\rm sh}-\varepsilon_h\right)\left(S_{\mp}+4\frac{V_{\rm c}}{V}\right)}{4\pi\left(S_{\mp}-1\right)\left[S_{\mp}(\varepsilon_{\rm sh}+2\varepsilon_h)-4\frac{V_{\rm c}}{V}\left(\varepsilon_{\rm sh}-\varepsilon_h\right)\right]},$$

$$\widetilde{\alpha}_{\rm sh}=\widetilde{\alpha}_{\rm ex}^{+}+\widetilde{\alpha}_{\rm ex}^{-},\quad S_{\pm}=1\pm\sqrt{1+8V_{\rm c}/V}. \qquad (7)$$

Выражение (7) следует из (3) после замены ε_m на ε_h и ряда преобразований. Аналог этого эффекта расщепления имеется в оптике тонких кристаллических пленок. При наклонном падении света, поляризованного в плоскости падения, на такую плоскую пленку в ее спектре поглощения дополнительно к пику поперечных оптических фононов возникает пик продольных оптических фононов [16], отсутствующий в объемном кристалле. В нашем случае экситонный слой имеет сферическую форму, так что электрическое поле падающей волны в разных точках оболочки направлено под разными углами к ее нормали. Поэтому свет возбуждает две экситонные моды оболочки независимо от направления поляризации.

Анализ полюсов (7) показывает, что две экситонные моды оболочки имеют одинаковые ширины, равные ширине резонанса $\gamma_{\rm ex}$ в диэлектрической функции (6), и различные резонансные частоты:

$$\omega_{\rm ex}^{\pm}=\omega_0\left[1+\frac{f\left(S_{\mp}-4\frac{V_{\rm c}}{V}\right)}{S_{\mp}\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}+2\varepsilon_h\right)-4\frac{V_{\rm c}}{V}\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}-\varepsilon_h\right)}\right]^{1/2}. \qquad (8)$$

Здесь для верхней моды берется верхний знак, для нижней – нижний. Расщепление $\omega_{\rm ex}^{+}$ и $\omega_{\rm ex}^{-}$ составляет $\sim 100{-}150$ мэВ. Это указывает на необходимость использования двух констант связи, g_+ и g_-, для описания плазмон-экситонного взаимодействия.

Расчет констант плазмон-экситонной связи проводится нами методом эффективного гамильтониана [13, 14], который мы будем использовать в комбинации с выражением (3) классической электродинамики для поляризуемости системы "ядро-оболочка". Ключевым новым моментом в нашей модели является включение в рассмотрение двух расщепленных экситонных мод оболочки, вступающих в электромагнитную связь с дипольным плазмоном ядра. Это приводит к "трехмодовому" виду гамильтониана

$$\hat{H}=\hat{H}_{\rm pl}+\hat{H}_{\rm ex}+\hat{\rm V},\quad \hat{H}_{\rm pl}=\hbar\breve{\omega}_{\rm pl}\left(\hat{a}^{\dagger}\hat{a}+1/2\right),$$
$$\hat{H}_{\rm ex}=\hbar\breve{\omega}_{\rm ex}^{+}\left(\hat{b}_{+}^{\dagger}\hat{b}_{+}+1/2\right)+\hbar\breve{\omega}_{\rm ex}^{-}\left(\hat{b}_{-}^{\dagger}\hat{b}_{-}+1/2\right), \qquad (9)$$
$$\hat{\rm V}=-2\hbar g_{+}\hat{Q}_{\rm pl}\hat{Q}_{\rm ex}^{+}-2\hbar g_{-}\hat{Q}_{\rm pl}\hat{Q}_{\rm ex}^{-}$$
$$=-\hbar g_{+}(\hat{a}^{\dagger}+\hat{a})(\hat{b}_{+}^{\dagger}+\hat{b}_{+})-\hbar g_{-}(\hat{a}^{\dagger}+\hat{a})(\hat{b}_{-}^{\dagger}+\hat{b}_{-}).$$

Здесь $\hat{H}_{\rm pl}$ и $\hat{H}_{\rm ex}$ – гамильтонианы плазмонной и экситонной подсистем, а $\hat{\rm V}$ – оператор их взаимодействия, содержащий две константы плазмон-экситонной связи, g_+ и g_-. $\hat{Q}_{\rm pl}$ и $\hat{Q}_{\rm ex}^{\pm}$ – обобщенные координаты плазмонной и двух экситонных мод; $\hat{a}^{\dagger}$, $\hat{a}$ и $\hat{b}_{\pm}^{\dagger}$, $\hat{b}_{\pm}$ – соответствующие операторы рождения и уничтожения. Частоты $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и $\breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm}$ в (9) сдвинуты относительно своих невозмущенных значений $\omega_{\rm pl}$ (5) и $\omega_{\rm ex}^{\pm}$ (8) из-за наличия нерезонансных составляющих ε_m^{∞} и $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ диэлектрических проницаемостей ядра и оболочки. Частоты $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и $\breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm}$ будут рассчитаны нами одновременно с константами связи g_+ и g_-.

Еще один ключевой момент теории состоит в корректном учете затухания плазмонного и экситонного осцилляторов. Здесь мы следуем подходу, разработанному в квантовой оптике при расчете вакуумного расщепления Раби в системе многих связанных осцилляторов [17]. Согласно этому подходу, для гамильтониана (9) получаем секулярное уравнение

$$\begin{vmatrix}\breve{\mathcal{L}}_{\rm pl}(\omega) & 2(\breve{\omega}_{\rm pl}\breve{\omega}_{\rm ex}^{+})^{1/2}g_{+} & 2(\breve{\omega}_{\rm pl}\breve{\omega}_{\rm ex}^{-})^{1/2}g_{-}\\ 2(\breve{\omega}_{\rm pl}\breve{\omega}_{\rm ex}^{+})^{1/2}g_{+} & \breve{\mathcal{L}}_{\rm ex}^{+}(\omega) & 0\\ 2(\breve{\omega}_{\rm pl}\breve{\omega}_{\rm ex}^{-})^{1/2}g_{-} & 0 & \breve{\mathcal{L}}_{\rm ex}^{-}(\omega)\end{vmatrix}=0,$$
$$\breve{\mathcal{L}}_{\rm pl}=\breve{\omega}_{\rm pl}^{2}-\omega^{2}-i\omega\gamma_{\rm pl},\quad \breve{\mathcal{L}}_{\rm ex}^{\pm}=(\breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm})^{2}-\omega^{2}-i\omega\gamma_{\rm ex}, \qquad (10)$$

вытекающее из уравнения Линдблада. Здесь учтено, что коэффициенты затухания обоих экситонных резонансов оболочки равны друг другу, $\gamma_{\rm ex}^{+}=\gamma_{\rm ex}^{-}=\gamma_{\rm ex}$ (6), а для плазмонного резонанса $\gamma_{\rm pl}=\gamma_{\rm e}$ (4).

Для физически обоснованного нахождения констант связи g_+ и g_- и сдвинутых частот $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и $\breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm}$ в эффективном гамильтониане (9) необходимо, наряду с "трехмодовой" структурой, учесть конкретные электродинамические (резонансные и нерезонансные) свойства плазмонного ядра и экситонной оболочки. Эта информация заложена в полюсах амплитуды рассеяния, содержащей зависимости от геометрических параметров и оптических констант материалов частицы. Поскольку в квазистатическом приближении амплитуда рассеяния пропорциональна поляризуемости $\alpha(\omega)$ (3) частицы, то величины $g_{\pm}$, $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и $\breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm}$ должны быть найдены из условия точ-

ного совпадения полюсов $\alpha(\omega)$ с решениями секулярного уравнения (10) для гамильтониана (9).

Исходная формула (3) для поляризуемости $\alpha(\omega)$ гибридной частицы записана в терминах диэлектрических проницаемостей ее ядра, ε_m, и оболочки, $\varepsilon_{\rm sh}$. Однако с целью расчета констант плазмон-экситонной связи g_+ и g_- в нее должны быть включены резонансные свойства дипольного плазмона, $\widetilde{\alpha}_{\rm pl}$ (4), и полученные нами выражения (7) для двух составляющих $\widetilde{\alpha}^+_{\rm ex}$ и $\widetilde{\alpha}^-_{\rm ex}$ поляризуемости единицы объема экситонной оболочки, которые соответствуют двум ее расщепленным модам с частотами $\omega^+_{\rm ex}$ и $\omega^-_{\rm ex}$ (8). Тогда с помощью формул (3)–(7), после ряда преобразований поляризуемость $\alpha(\omega)$ гибридной частицы может быть представлена в виде:

$$\alpha=\frac{V_{\rm c}\widetilde{\alpha}_{\rm pl}+V_{\rm sh}\widetilde{\alpha}_{\rm sh}-\frac{8\pi}{3}V_{\rm sh}\left(1+\frac{V_{\rm c}}{V}\right)\left[\widetilde{C}^+_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^+_{\rm ex}+\widetilde{C}^-_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^-_{\rm ex}\right]\widetilde{\alpha}_{\rm pl}}{1-\frac{32\pi^2}{9}\frac{V_{\rm sh}}{V}\left(C^+_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^+_{\rm ex}+C^-_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^-_{\rm ex}\right)\widetilde{\alpha}_{\rm pl}}. \tag{11}$$

Безразмерные коэффициенты $\widetilde{C}^{\pm}_{\rm ex}$ и $C^{\pm}_{\rm ex}$ имеют вид

$$\widetilde{C}^{\pm}_{\rm ex}=1-C^{\pm}_{\rm ex},\quad C^{\pm}_{\rm ex}=\frac{4V_{\rm c}}{V+4V_{\rm c}\mp\sqrt{V^2+8VV_{\rm c}}}. \tag{12}$$

Полюса поляризуемости $\alpha(\omega)$ гибридной частицы задаются уравнением:

$$D(\omega)=1-\frac{32\pi^2}{9}\frac{V_{\rm sh}}{V}\left(C^+_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^+_{\rm ex}+C^-_{\rm ex}\widetilde{\alpha}^-_{\rm ex}\right)\widetilde{\alpha}_{\rm pl}=0, \tag{13}$$

которое играет ключевую роль, поскольку содержит необходимую информацию о геометрических параметрах и диэлектрических свойствах подсистем. Наличие произведений вида $\widetilde{\alpha}^+_{\rm ex}\widetilde{\alpha}_{\rm pl}$ и $\widetilde{\alpha}^-_{\rm ex}\widetilde{\alpha}_{\rm pl}$ в (13) указывает на оправданность выбора структуры гамильтониана (9) для описания плазмон-экситонной связи.

Как уравнение (13), так и секулярное уравнение (10) приводятся к полиномиальному виду относительно частоты света ω. Приравнивая их коэффициенты при одинаковых степенях ω^n ($n=0,\ \ldots,\ 6$) с точностью до некоторого общего множителя, мы обеспечиваем эквивалентность (10) и (13) и получаем систему из 7 уравнений относительно констант плазмон-экситонной связи, $g_{\pm}$, и сдвинутых резонансных частот плазмона $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и двух экситонных мод оболочки $\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}$. Одно из этих уравнений снимает неопределенность в общем множителе, а еще одно выражается через другие уравнения. После серии преобразований получаем систему 5 независимых уравнений относительно 5 неизвестных g_+, g_-, $\breve{\omega}_{\rm pl}$, $\breve{\omega}^+_{\rm ex}$ и $\breve{\omega}^-_{\rm ex}$:

$$P^{(1)}_n\breve{\omega}^2_{\rm pl}+P^{(2)}_n(\breve{\omega}^+_{\rm ex})^2+P^{(3)}_n(\breve{\omega}^-_{\rm ex})^2+ \tag{14}$$

$$P^{(4)}_n(\breve{\omega}^+_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl})^2+P^{(5)}_n(\breve{\omega}^-_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl})^2+P^{(6)}_n(\breve{\omega}^+_{\rm ex}\breve{\omega}^-_{\rm ex})^2+$$
$$P^{(7)}_n\breve{\omega}^+_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl}g^2_++P^{(8)}_n\breve{\omega}^-_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl}g^2_-+P^{(9)}_n\left(\breve{\omega}^+_{\rm ex}\breve{\omega}^-_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl}\right)^2+$$
$$P^{(10)}_n(\breve{\omega}^-_{\rm ex})^2\breve{\omega}^+_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl}g^2_++P^{(11)}_n(\breve{\omega}^+_{\rm ex})^2\breve{\omega}^-_{\rm ex}\breve{\omega}_{\rm pl}g^2_-=Q_n,$$

где $n=1,\ \ldots,\ 5$. Явный вид коэффициентов Q_n и $P^{(i)}_n$ ($i=1,\ \ldots,\ 11$) в системе уравнений (14) и детали ее решения приведены в дополнительных материалах. В нашем подходе расчет констант связи $g_{\pm}$ и сдвинутых частот $\breve{\omega}_{\rm pl}$ и $\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}$ проводится единым образом, неотделимо друг от друга. Окончательный результат записывается следующим образом:

$$\left(\frac{\breve{\omega}_{\rm pl}}{\omega_{\rm p}}\right)^2=\frac{3\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}V_{\rm c}+\left(\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h\right)V_{\rm sh}}{3\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}(\varepsilon^{\infty}_m+2\varepsilon_h)V_{\rm c}+(\varepsilon^{\infty}_m+2\varepsilon^{\infty}_{\rm sh})(\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h)V_{\rm sh}}. \tag{15}$$

$$\left(\frac{\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}}{\omega_0}\right)^2=1+\frac{\left(\frac{f}{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h}\right)\left[X\mp\sqrt{X^2+8\frac{V_{\rm c}}{V}}-4\frac{V_{\rm c}}{V}\right]}{X\mp\sqrt{X^2+8\frac{V_{\rm c}}{V}}-4\frac{V_{\rm c}}{V}\left(\frac{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}-\varepsilon_h}{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h}\right)}. \tag{16}$$

$$g^2_{\pm}=\frac{fV_{\rm sh}V\left(\mathcal{A}\pm\mathcal{B}\right)\left(\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h\right)^2\left(\omega^2_0/\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}\right)\left(\omega^2_{\rm p}/\breve{\omega}_{\rm pl}\right)}{4\left[3\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}(\varepsilon^{\infty}_m+2\varepsilon_h)V_{\rm c}+(\varepsilon^{\infty}_m+2\varepsilon^{\infty}_{\rm sh})(\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h)V_{\rm sh}\right]^2}. \tag{17}$$

Безразмерные величины X, $\mathcal{A}$ и $\mathcal{B}$ имеют вид:

$$\mathcal{A}=1+2\frac{V_{\rm c}}{V}\left[\frac{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}-\varepsilon_h}{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h}\right]^2,\ X=1-2\frac{V_{\rm sh}}{V}\left[\frac{\varepsilon^{\infty}_m-\varepsilon_h}{\varepsilon^{\infty}_m+2\varepsilon_h}\right],$$
$$\mathcal{B}=\frac{X\left[1-2\frac{V_{\rm c}}{V}\left(\frac{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}-\varepsilon_h}{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h}\right)^2\right]-8\frac{V_{\rm c}}{V}\left(\frac{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}-\varepsilon_h}{\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}+2\varepsilon_h}\right)}{\sqrt{X^2+8V_{\rm c}/V}}. \tag{18}$$

Константы связи g_+ и g_- выражены через исходные геометрические параметры и параметры диэлектрических проницаемостей металлического ядра (ε^{∞}_m, ω_p), экситонной оболочки ($\varepsilon^{\infty}_{\rm sh}$, ω_0, f) и окружающей среды, ε_h. Согласно (17) квадраты констант связи $g^2_{\pm}$ пропорциональны произведению частоты экситона, ω_0, и плазменной частоты, ω_p (4). В (17) входит также сила осциллятора f перехода (6), объемы ядра, $V_{\rm c}$, оболочки, $V_{\rm sh}$, и полный объем частицы, V. В общем случае формула (17) применима при $V_{\rm c}/V\in(0,1)$.

Принципиально важно, что частота $\breve{\omega}_{\rm pl}$ не зависит от резонансных свойств оболочки (ω_0 и f), а $\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}$ не зависит от резонансных свойств ядра (плазменной частоты ω_p). Сдвиг $\upsilon_{\rm pl}=\breve{\omega}_{\rm pl}-\omega_{\rm pl}$ обусловлен электромагнитной связью ядра с нерезонансной частью поляризуемости оболочки, а сдвиги $\upsilon^{\pm}_{\rm ex}=\breve{\omega}^{\pm}_{\rm ex}-\omega^{\pm}_{\rm ex}$ вызваны связью оболочки с нерезонансной частью поляризуемости ядра. Рассчитанные величины допускают простую физическую интерпретацию: $\breve{\omega}_{\rm pl}$ в точности совпадает с положением плазмонного ре-

зонанса металлического ядра, покрытого пассивной диэлектрической оболочкой с $\varepsilon = \varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$. Аналогично, $\breve{\omega}_{\rm ex}^{+}$ и $\breve{\omega}_{\rm ex}^{-}$ равны частотам экситонных резонансов оболочки, покрывающей пассивное ядро с $\varepsilon = \varepsilon_{m}^{\infty}$.

Константы связи имеют наиболее простой вид:

$$g_{\pm}^{2} = \frac{f\omega_p\omega_0 V_{\rm sh}\left(1 \pm \sqrt{\frac{V}{V+8V_{\rm c}}}\right)}{6V\left[12 + 2f\left(3 \pm \sqrt{1+8V_{\rm c}/V}\right)\right]^{1/2}} \qquad (19)$$

в модели Друде (4) с $\varepsilon_m^{\infty} = 1$ при $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} = \varepsilon_h = 1$.

Другим важным пределом является случай частиц с тонкой оболочкой. Из (17) в первом порядке малости по величине отношения $V_{\rm sh}/V$ получаем

$$g_{+}^{2} = \frac{fV_{\rm sh}\omega_0\omega_p}{3V\left(\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)^{3/2}}\left[\frac{\varepsilon_h^{2}}{\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}\right)^{3/2}\left(f + \varepsilon_{\rm sh}^{\infty}\right)^{1/2}}\right], \qquad (20)$$

$$g_{-}^{2} = \frac{fV_{\rm sh}\omega_0\omega_p}{6V\left(\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)^{3/2}}. \qquad (21)$$

Отсюда видно, что для частиц с тонкой оболочкой g_- слабо зависит от $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$, в то время как g_+ существенно зависит от этой величины. Приближенные выражения для сдвигов частот плазмонного и экситонных резонансов в частицах с тонкой оболочкой, $V_{\rm sh} \ll V$, имеют вид

$$\upsilon_{\rm pl} = \breve{\omega}_{\rm pl} - \omega_{\rm pl} = -\frac{V_{\rm sh}\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} - \varepsilon_h\right)\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)}{3V\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}\left(\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)^{3/2}}\omega_p, \qquad (22)$$

$$\upsilon_{\rm ex}^{+} = \breve{\omega}_{\rm ex}^{+} - \omega_{\rm ex}^{+} = -\frac{2fV_{\rm sh}\varepsilon_h\left(\varepsilon_m^{\infty} - \varepsilon_h\right)\omega_0}{9V\left(\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}\right)^{3/2}\left(f + \varepsilon_{\rm sh}^{\infty}\right)^{1/2}\left(\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)}, \qquad (23)$$

$$\upsilon_{\rm ex}^{-} = \breve{\omega}_{\rm ex}^{-} - \omega_{\rm ex}^{-} = -\frac{fV_{\rm sh}\left(\varepsilon_m^{\infty} - \varepsilon_h\right)\omega_0}{9V\varepsilon_h\left(\varepsilon_m^{\infty} + 2\varepsilon_h\right)}. \qquad (24)$$

Приближенные формулы (20)–(24) особенно полезны для частиц металл/J-агрегат, поскольку толщина их оболочки, как правило, много меньше полного радиуса, $l_{\rm sh} \ll R$, что соответствует условию $V_{\rm sh} \ll V$.

4. Результаты и обсуждение. Конкретные результаты мы продемонстрируем на примере гибридной наночастицы с экситонной оболочкой из молекулярных J-агрегатов красителя, поскольку они обладают узким пиком поглощения и большой силой осциллятора перехода в J-полосе [2]. Наночастицы металл/J-агрегат сочетают в себе достоинства как экситонной, так и плазмонной подсистем и обладают уникальными оптическими свойствами [3, 4].

Использованная при построении модели расчета констант связи $g_{\pm}$ и частотных сдвигов $\upsilon_{\rm pl}$ и $\upsilon_{\rm ex}^{\pm}$ формула (11) позволяет совместно с (1) надежно воспроизводить поведение спектров экстинкции в квазистатическом приближении. Это демонстрируют результаты наших расчетов сечений $\sigma_{\rm ext}(\omega)$ для наносфер с золотым ядром, покрытых J-агрегатами красителя TDBC [5,5',6,6'-тетрахлор-1,1'-диэтил-3,3'-ди(4-сульфобутил)-бензимидазоло-карбоцианин] (рис. 2). Видно хорошее совпадение результатов нашей модели (зеленые кривые) с сечениями экстинкции, полученными в рамках обобщенной теории Ми (черные кривые). Для исследуемых частиц квазистатическое приближение дает слабое расхождение с теорией Ми, не превышающее 3 % во всем рассмотренном диапазоне.

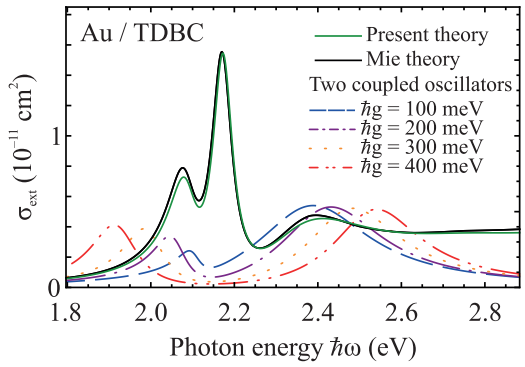

Рис. 2. (Цветной онлайн) Сечения экстинкции наносфер Au/TDBC в воде. Расчеты выполнены по формулам (1) и (11) (зеленый), по теории Ми (черный) и в модели двух связанных осцилляторов при различных значениях константы g (синие, фиолетовые, оранжевые, красные кривые). Радиус ядра $R_{\rm c} = 12$ нм, полный радиус частицы $R = 16$ нм

Одновременно с этим рис. 2 демонстрирует неприменимость модели двух связанных осцилляторов с одной константой связи g для корректного описания сечений экстинкции частиц "ядро–оболочка" даже при варьировании $\hbar g$ в широком диапазоне от 100 до 400 мэВ. Эта модель предсказывает наличие только двух спектральных пиков, провал между которыми имеет минимум вблизи тех энергий фотона $\hbar\omega$, где наша модель и точная теория Ми предсказывают пик третьей гибридной моды ($\hbar\omega \approx 2.15$ эВ). Таким образом, корректное описание эффектов плазмон-экситонной связи в системах "ядро–оболочка" требует использования двух констант связи, g_+ и g_-, отражающих взаимодействие обеих экситонных мод оболочки с дипольным плазмоном в ядре частицы.

Далее обсудим поведение констант плазмон-экситонной связи g_+ и g_- (17) в зависимости от различных параметров гибридной частицы. Рисунок 3a показывает зависимости этих констант от отношения $l_{\rm sh}/R$ толщины оболочки к полному

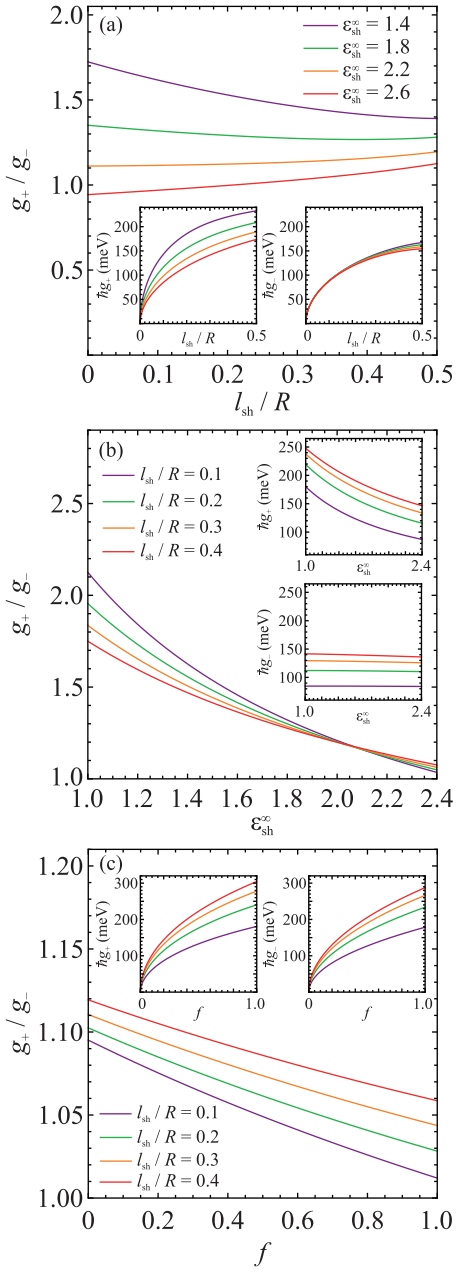

Рис. 3. (Цветной онлайн) Отношение g_+/g_- констант плазмон-экситонной связи в зависимости: (a) – от отношения l_{sh}/R толщины оболочки к полному радиусу частицы Ag/J-агрегат; (b) – от фоновой части $\varepsilon_{sh}^{\infty}$ диэлектрической проницаемости J-агрегата; (c) – от силы осциллятора f перехода в J-полосе красителя. На вставках показаны абсолютные значения $\hbar g_+$ и $\hbar g_-$. Радиус ядра $R_c = 10$ нм. Параметры J-агрегата: (a) и (b) – $\hbar\omega_0 = 2.13$ эВ; $f = 0.22$; (c) – $\varepsilon_{sh}^{\infty} = 2.3$

радиусу частицы Ag/J-агрегат. Расчеты выполнены для радиуса ядра $R_c = 10$ нм и различных значений фоновой части $\varepsilon_{sh}^{\infty}$ диэлектрической проницаемости оболочки: $\varepsilon_{sh}^{\infty} = 1.4$, 1.8, 2.2 и 2.6 (фиолетовые, зеленые, оранжевые и красные кривые, соответственно). Рассмотрены значения l_{sh}/R от 0 до 0.5, поскольку синтез гибридных частиц металл/J-агрегат возможен лишь при малых толщинах оболочки [2]. Расчеты показывают, что величины g_+ и g_- растут с увеличением толщины оболочки, но уменьшаются с ростом $\varepsilon_{sh}^{\infty}$. Как показывает рис. 3b, величина g_+ чувствительна к $\varepsilon_{sh}^{\infty}$ в значительно большей мере, чем g_-. Отношение g_+/g_- сильно зависит от $\varepsilon_{sh}^{\infty}$ и достигает 1.4 – 1.7 при $\varepsilon_{sh}^{\infty} \approx 1.4$. С ростом $\varepsilon_{sh}^{\infty}$ отношение g_+/g_- падает, и при $\varepsilon_{sh}^{\infty} = 2.6$ оно близко к единице. Как видно из рис. 3c, обе константы связи растут с увеличением силы осциллятора f, но их отношение g_+/g_- слабо зависит от f.

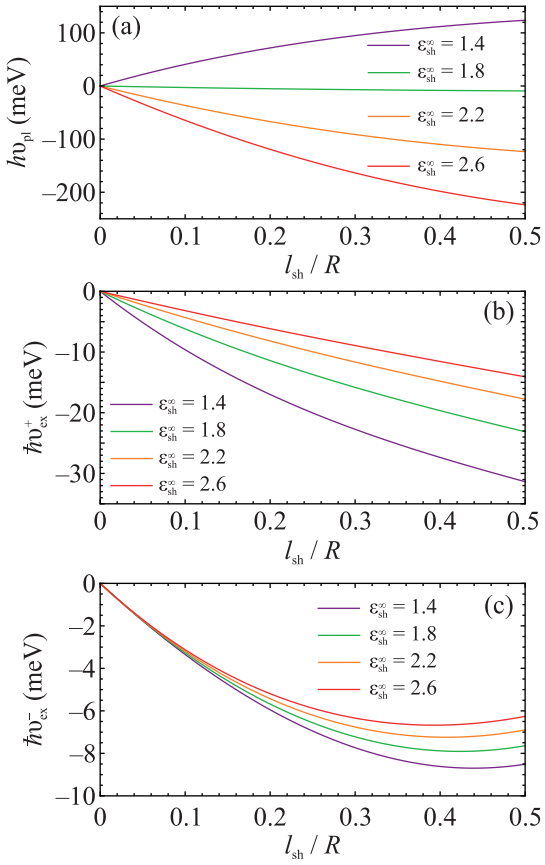

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости сдвигов частоты плазмона, $\upsilon_{pl} = \breve{\omega}_{pl} - \omega_{pl}$ (a), а также верхнего $\upsilon_{ex}^{+} = \breve{\omega}_{ex}^{+} - \omega_{ex}^{+}$ (b) и нижнего $\upsilon_{ex}^{-} = \breve{\omega}_{ex}^{-} - \omega_{ex}^{-}$ (c) экситонных резонансов оболочки от отношения l_{sh}/R толщины оболочки к полному радиусу частицы Ag/J-агрегат в воде. Радиус ядра $R_c = 10$ нм, $\varepsilon_h = 1.78$, параметры J-агрегата $\hbar\omega_0 = 2.13$ эВ, $f = 0.22$

Помимо самих констант плазмон-экситонной связи, характеризующих взаимодействие резонансных составляющих поляризуемостей металлического ядра и органической оболочки частицы, важную роль

играют сдвиги, $\upsilon_{\rm pl} = \breve{\omega}_{\rm pl} - \omega_{\rm pl}$ (15) и $\upsilon_{\rm ex}^{\pm} = \breve{\omega}_{\rm ex}^{\pm} - \omega_{\rm ex}^{\pm}$ (16), обусловленные влиянием фоновой части поляризуемости оболочки на плазмонный резонанс и наоборот, влиянием фоновой части поляризуемости ядра на экситонные моды оболочки. Результаты расчетов этих сдвигов $\upsilon_{\rm pl}$ и $\upsilon_{\rm ex}^{\pm}$ в зависимости от отношения $l_{\rm sh}/R$ приведены на рис. 4. Видно, что сдвиг частоты плазмона $\upsilon_{\rm pl}$ растет по абсолютной величине с ростом $l_{\rm sh}/R$, достигая сотен мэВ при $l_{\rm sh}/R = 0.5$. Поэтому при большом контрасте $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ и ε_h и малой силе осциллятора f этот сдвиг оказывает существенное влияние на спектр гибридной частицы. Знак $\upsilon_{\rm pl}$ зависит от соотношения $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ и ε_h: $\upsilon_{\rm pl} > 0$ при $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} < \varepsilon_h$; $\upsilon_{\rm pl} < 0$ при $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} > \varepsilon_h$; $\upsilon_{\rm pl} \approx 0$ при $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty} \approx \varepsilon_h$. Сдвиги частот экситонных резонансов оболочки $\upsilon_{\rm ex}^{+}$ (рис. 4b) и $\upsilon_{\rm ex}^{-}$ (рис. 4c) отрицательны при всех выбранных $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ и значительно уступают по величине сдвигам $\upsilon_{\rm pl}$.

5. Заключение. В работе показано, что использование традиционной модели двух связанных осцилляторов с одной константой связи g [1, 2] является чрезмерно упрощенным способом описания плазмон-экситонного взаимодействия в гибридных наносистемах "ядро–оболочка". Предложена и разработана модель и получены аналитические формулы для корректного определения эффективности связи в таких системах. Показано, что в квазистатическом приближении в нашей модели естественным образом возникают две константы связи, g_+ и g_-, обусловленные электромагнитным взаимодействием дипольного плазмон-поляритона с двумя расщепленными экситонными модами оболочки. На примере молекулярных агрегатов в качестве экситонной оболочки наночастицы установлены зависимости этих констант от отношения толщины оболочки к полному радиусу частицы, силы осциллятора экситонного перехода красителя f и значения фоновой составляющей $\varepsilon_{\rm sh}^{\infty}$ его диэлектрической функции. Результаты работы способствуют более ясному пониманию механизмов формирования плазмон-экситонной связи в гибридных наноструктурах.

Финансирование работы. Работа финансировалась за счет средств бюджета института в рамках темы Государственного задания Физического института им. П. Н. Лебедева РАН FFMR-2024-0020. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. P. Vasa, "Exciton-surface plasmon polariton interactions", Adv. Phys. X **5**, 1749884 (2020).
2. В. С. Лебедев, А. Д. Кондорский, "Оптика плазмон-экситонных наноструктур: теоретические модели и физические явления в системах металл/J-агрегат", УФН **195**, 50 (2025) [V. S. Lebedev and A. D. Kondorskiy, "Optics of plasmon-exciton nanostructures: theoretical models and physical phenomena in metal/J-aggregate systems", Phys.-Uspekhi **68**, 46 (2025)].
3. В. С. Лебедев, А. С. Медведев, "Эффекты плазмон-экситонного взаимодействия при поглощении и рассеянии света двухслойными наночастицами металл/J-агрегат", Квантовая электроника **42**, 701 (2012) [V. S. Lebedev and A. S. Medvedev, "Plasmon – exciton coupling effects in light absorption and scattering by metal/J-aggregate bilayer nanoparticles", Quantum Electronics **42**, 701 (2012)].
4. T. J. Antosiewicz, S. P. Apell, and T. Shegai, "Plasmon–Exciton Interactions in a Core-Shell Geometry: From Enhanced Absorption to Strong Coupling", ACS Photonics **1**, 454 (2014).
5. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (John Wiley & Sons, N.Y., 1998).
6. V. Krivenkov, S. Goncharov, I. Nabiev, and Y. P. Rakovich, "Induced Transparency in Plasmon–Exciton Nanostructures for Sensing Applications", Laser Photonics Rev. **13**, 1800176 (2019).
7. W. Du, J. Zhao, W. Zhao, S. Zhang, H. Xu, and Q. Xiong, "Ultrafast Modulation of Exciton–Plasmon Coupling in a Monolayer WS2–Ag Nanodisk Hybrid System", ACS Photonics **6**, 2832 (2019).
8. Y. Feng, K. Chao, K. Wu, S. Yuan, A. Khosla, R. Yang, F. Rosei, and H. Zhang, "Plasmonic photoelectric detection engineering: basic principle, design strategies and challenges", Rep. Prog. Phys. **88**, 096401 (2025).
9. R. Pompe, M. Hensen, M. Otten, S. K. Gray, and W. Pfeiffer, "Pure dephasing induced single-photon parametric down-conversion in a strongly coupled plasmon-exciton system", Phys. Rev. B **108**, 115432 (2023).
10. S. N. Gupta, O. Bitton, T. Neuman, R. Esteban, L. Chuntonov, J. Aizpurua, and G. Haran, "Complex plasmon-exciton dynamics revealed through quantum dot light emission in a nanocavity", Nat. Commun. **12**, 1310 (2021).
11. T. Itoh and Y. S. Yamamoto, "Electromagnetic coupling between subradiant plasmons and dye molecular excitons analyzed by spectral changes in ultrafast surface-enhanced fluorescence", J. Chem. Phys. **164**, 184704 (2026).
12. J. A. Faucheaux, J. Fu, and P. K. Jain, "Unified Theoretical Framework for Realizing Diverse Regimes of Strong Coupling between Plasmons and Electronic Transitions", J. Phys. Chem. C **118**, 2710 (2014).

13. J. Li, G. Huang, Y. Ge, W. Wang, N. Xu, L. Shao, W. Huang, H. Chen, Z. Cao, and S. Deng, "Non-Hermitian modal analysis of plasmon-exciton coupling in open systems", Phys. Rev. B **113**, 195435 (2026).
14. K. Takata, N. Roberts, A. Shinya, and M. Notomi, "Imaginary couplings in non-Hermitian coupled-mode theory: Effects on exceptional points of optical resonators", Phys. Rev. A **105**, 013523 (2022).
15. A. D. Kondorskiy, S. S. Moritaka, and V. S. Lebedev, "Manifestation of the anisotropic properties of the molecular J-aggregate shell in the optical spectra of plexcitonic nanoparticles", Opt. Express **30**, 4600 (2022).
16. D. W. Berreman, "Infrared Absorption at Longitudinal Optic Frequency in Cubic Crystal Films", Phys. Rev. **130**, 2193 (1963).
17. S. Rudin and T. L. Reinecke, "Oscillator model for vacuum Rabi splitting in microcavities", Phys. Rev. B **59**, 10227 (1999).