

01

Сечения рассеяния поверхностных плазмон-поляритонов наночастицей в дипольном приближении

© А.Б. Евлюхин

Владимирский государственный университет
E-mail: a.b.evlyukhin@mail.ru

В окончательной редакции 14 апреля 2005 г.

В рамках дипольного приближения рассчитаны дифференциальные и полные сечения рассеяния малой частицей поверхностных электромагнитных волн оптического диапазона (поверхностных плазмон-поляритонов) в поверхностные электромагнитные волны, а также в волны, распространяющиеся от поверхности в дальнюю волновую зону. Проведено сравнение эффективности каналов рассеяния для основных параметров системы. Показано, что с увеличением длины волны излучения, возбуждающего поверхностные плазмон-поляритоны на плоской границе раздела золото-воздух, в системе может меняться наиболее эффективный канал рассеяния.

Изучению свойств поверхностных электромагнитных волн оптического диапазона, возникающих на границе раздела между диэлектриком и металлом, в настоящее время уделяется большое внимание. Так как в их создании принимают участие свободные носители заряда в металле, то их часто называют поверхностными плазмон-поляритонами (ППП) [1,2]. Экспоненциальная локализация ППП у поверхности и их высокая чувствительность к поверхностным неоднородностям делает их уникальным источником излучения в микроскопии ближнего поля. Действительно, если при распределении вдоль плоской поверхности плазмон-поляритон встречает локальную неоднородность в виде наноскопического объекта (поверхностный дефект, искусственная наноструктура, биоткань и т.п.), то он рассеивается, и по картине распределения результирующего электромагнитного поля можно судить о свойствах рассеивателя. При этом процесс рассеяния может идти по двум основным каналам — упругое рассеяние ППП в ППП и рассеяние ППП в волны, распространяющиеся в дальнюю волновую

зону от поверхности. В качестве источника информации может выступать как первый, так и второй канал рассеяния или их сочетание. В случае если таким источником является распределение ППП, второй канал рассматривается как нежелательный, поскольку он приводит к оттоку энергии из ППП. При регистрации сигнала в дальней волновой зоне наоборот встает проблема о минимизации вероятности упругого рассеяния ППП. Какой из возможных способов исследования является оптимальным, зависит от специфики взаимодействия изучаемого объекта и зонда с ППП. Таким образом, расширение возможностей микроскопии на основе ППП, включая увеличение ее разрешающей способности, связано с пониманием особенностей процесса рассеяния ППП, обусловленных конфигурационными (взаимоположение рассеивателей и поверхности с ППП) и материальными параметрами системы. Данная задача с теоретической точки зрения представляется весьма сложной, так как уже в относительно простом случае одного симметричного рассеивателя требует применения численного счета [3]. Однако, принимая во внимание тот факт, что в микроскопии ближнего поля объекты исследования, а для увеличения разрешения и регистрирующий зонд, часто имеют размеры значительно меньшие, чем длина волны ППП, описание процесса рассеяния в ряде случаев [4] может быть ограничено дипольным приближением, что позволяет значительно упростить задачу и получить основные зависимости в аналитическом виде. В данном письме приводятся результаты расчета дифференциальных и полных сечений рассеяния ППП в дипольном приближении малой частицей для двух механизмов рассеяния. А также проводится сравнение эффективности каждого канала рассеяния в зависимости от основных параметров системы. В основу расчета положен метод тензорной функции Грина для системы, состоящей из двух полупространств. Полупространства заполнены диэлектриком и металлом с относительными диэлектрическими проницаемостями ϵ_r и ϵ_m соответственно, причем $(-\epsilon_m) > \epsilon_r$ — именно в этих условиях возможно существование ППП. Диэлектрическая проницаемость металла предполагается действительной величиной, что значительно упрощает получение основных результатов и в то же время имеет прямое отношение к экспериментальной ситуации. Так как для наиболее часто используемых в экспериментах с ППП благородных металлов (золото, серебро и др.) длина затухания ППП, вызванная омическими потерями, на несколько порядков превышает длину

волны ППП [2]. Это обусловлено малой величиной мнимой части диэлектрической проницаемости. В работе рассматривается гармоническая зависимость от времени $\exp(-i\omega t)$, ω — циклическая частота ППП.

Физическая система включает сферическую частицу объемом $V_p = 4\pi R_p^3/3$, центр частицы расположен в точке \mathbf{r}_p с декартовыми координатами $(0, 0, z_p)$ со стороны диэлектрика над металлической поверхностью, которая совпадает с плоскостью $z = 0$ (ось z направлена в сторону диэлектрика). Радиус частицы R_p много меньше длины волны ППП, а также $z_p \gg R_p$. Относительная диэлектрическая проницаемость частицы обозначается ϵ_p . Внешняя плоская волна ППП, распространяющаяся в положительном направлении оси x , падает на частицу и рассеивается ею. В дипольном приближении, используя метод тензорной функции Грина в уравнения, напряженность рассеянного электрического поля \mathbf{E}_{sc} в произвольной точке \mathbf{r} вне частицы определяется уравнением

$$\mathbf{E}_{sc}(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_p) \hat{\alpha}_d E_0(\mathbf{r}_p), \quad (1)$$

где ϵ_0 — диэлектрическая постоянная вакуума; k_0 — волновое число в вакууме, соответствующее частоте ω ; \mathbf{E}_0 — вектор напряженности электрического поля падающей волны ППП [5,6]; $\hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ — тензорная функция Грина рассматриваемой физической системы без частицы; $\hat{\alpha}_d$ — тензор поляризуемости частицы с учетом влияния металлической поверхности. Для малой частицы можно записать [4,5]:

$$\hat{\alpha}_d = \alpha_0 \left(\frac{1}{1 + \xi\beta} \hat{x}\hat{x} + \frac{1}{1 + \xi\beta} \hat{y}\hat{y} + \frac{1}{1 + 2\xi\beta} \hat{z}\hat{z} \right), \quad (2)$$

где $\alpha_0 = \epsilon_0 \epsilon_r V_p 3(\epsilon_p - \epsilon_r)/(\epsilon_p + 2\epsilon_r)$ — электростатическая поляризуемость сферической частицы в однородной среде с ϵ_r (диэлектрические проницаемости зависят от ω); $\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ — орты декартовой системы координат. В (2) введены обозначения $\beta = (R_p/(2z_p))^3$ и $\xi = [(\epsilon_r - \epsilon_m)(\epsilon_p - \epsilon_r)]/[(\epsilon_r + \epsilon_m)(\epsilon_p + 2\epsilon_r)]$. Для выяснения вопроса об эффективности рассеяния ППП в ППП по сравнению с их рассеянием в волны, распространяющиеся от поверхности, в уравнении (1) можно ограничиться тензором Грина, записанным в приближении дальней волновой зоны, а затем представить его в виде суммы двух частей

$\hat{G}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ и $\hat{G}_T(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$. Здесь $\hat{G}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ — часть тензора Грина, отвечающая за возбуждение в системе ППП, а $\hat{G}_T(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ — часть тензора Грина, соответствующая распространению электромагнитных волн от металлической поверхности в диэлектрик с ε_r . Как следствие, если в (1) учесть только одну часть тензора Грина, то мы получим напряженность электрического поля соответствующей рассеянной волны. Используя аналитические представления для $\hat{G}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ из [6] и для $\hat{G}_T(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ из [7], находим напряженности электрического поля соответствующих волн. Напряженности магнитных полей можно найти из уравнений Максвелла. Для рассмотрения процесса рассеяния ППП в ППП удобно пользоваться цилиндрическими координатами (ρ, φ, z) . А при рассмотрении рассеяния ППП в волны, распространяющиеся от поверхности, наиболее подходят сферические координаты (r, φ, θ) , где θ и φ — полярный и азимутальный угол в выбранной системе координат.

Дифференциальное сечение рассеяния определим как отношение между средним по времени потоком рассеянной электромагнитной энергии в выделенном направлении и средним потоком энергии падающей ППП волны, отнесенным к единице длины вдоль направления, перпендикулярного к направлению падения. Полное сечение получается интегрированием дифференциального сечения по всем направлениям рассеяния. Для дифференциального и полного сечений рассеяния ППП в ППП получаем

$$\sigma_p(\varphi) = \frac{k_0^4 k_s (-\varepsilon_m)^5 \varepsilon_r (1 + \eta_p \cos \varphi)^2}{2\pi \varepsilon_0^2 (\varepsilon_m - \varepsilon_r)^2 (\varepsilon_m + \varepsilon_r)^4} \left(\frac{\alpha_0}{1 + 2\xi\beta} \right)^2 e^{-4ak_s z_p}, \quad (3)$$

$$\sigma_{scat}^{ppp} = \frac{k_0^4 k_s (-\varepsilon_m)^5 \varepsilon_r (2 + \eta_p^2)}{2\varepsilon_0^2 (\varepsilon_m - \varepsilon_r)^2 (\varepsilon_m + \varepsilon_r)^4} \left(\frac{\alpha_0}{1 + 2\xi\beta} \right)^2 e^{-4ak_s z_p}, \quad (4)$$

где φ — угол цилиндрической системы координат, определяющий направление рассеяния; $k_s = k_0 \sqrt{\varepsilon_r \varepsilon_m / (\varepsilon_r + \varepsilon_m)}$ — волновое число ППП; $a = \sqrt{\varepsilon_r - \varepsilon_m}$; $\eta_p = a^2 (1 + 2\xi\beta) / (1 + \xi\beta)$.

При расчете сечений рассеяния для второго механизма рассеяния можно воспользоваться тем, что в дальней волновой зоне электромагнитное поле является поперечным, и поэтому амплитуды напряженностей магнитного и электрического полей связаны волновым импедансом однородной среды с ε_r . С учетом этого замечания дифференциальное сечение рассеяния ППП в волны, распространяющиеся от металлической

поверхности, можно представить в виде:

$$\sigma_{space}(\varphi, \theta) = \frac{2k_r a}{(1-a^2)(1-a^4)} |\mathbf{E}_{sc}|^2 r^2, \quad (5)$$

где $k_r = k_0 \sqrt{\varepsilon_r}$; r — расстояние от начала системы координат до точки наблюдения. Полные сечения рассеяния для двух типов поляризации определяются выражениями:

$$\sigma_{scat}^{(s-pol)} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{2k_r a |E_\varphi(r, \varphi, \theta)|^2}{(1-a^2)(1-a^4)} r^2 \sin \theta d\varphi d\theta; \quad (6)$$

$$\sigma_{scat}^{(p-pol)} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{2k_r a |E_\theta(r, \varphi, \theta)|^2}{(1-a^2)(1-a^4)} r^2 \sin \theta d\varphi d\theta, \quad (7)$$

где компоненты напряженности электрического поля рассеянной волны определяются из (1) и имеют вид:

$$E_\varphi(r, \varphi, \theta) = \frac{i k_0^2}{a \varepsilon_0} \frac{\alpha_0}{1+2\xi\beta} \eta_p \sin \varphi (1 + r^{(s)} e^{ik_r 2z_p \cos \theta}) \frac{e^{ik_r r}}{4\pi r} e^{-ak_s z_p - ik_r z_p \cos \theta}; \quad (8)$$

$$E_\theta(r, \varphi, \theta) = -\frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \frac{\alpha_0}{1+2\xi\beta} \left\{ \frac{i}{a} \eta_p \cos \varphi \cos \theta (1 - r^{(p)} e^{ik_r 2z_p \cos \theta}) + \sin \theta (1 + r^{(p)} e^{ik_r 2z_p \cos \theta}) \right\} \frac{e^{ik_r r}}{4\pi r} e^{-ak_s z_p - ik_r z_p \cos \theta}. \quad (9)$$

Коэффициенты отражения $r^{(p)}$ и $r^{(s)}$ для двух типов поляризации можно найти в [6].

На основе полученных результатов проведем сравнение эффективности обоих каналов рассеяния для определенных наборов параметров. Будем считать, что подложка с ППП изготовлена из золота [8], а рассеивающая частица может быть либо металлической, либо диэлектрической. Из рис. 1 мы видим, что при рассеянии ППП, возбужденных светом с длиной волны 800 nm, полное сечение рассеяния ППП в ППП может превышать сечения рассеяния в волны, распространяющиеся от металлической поверхности в дальнюю зону как для металлической, так и диэлектрической частицы. При этом с ростом расстояния между

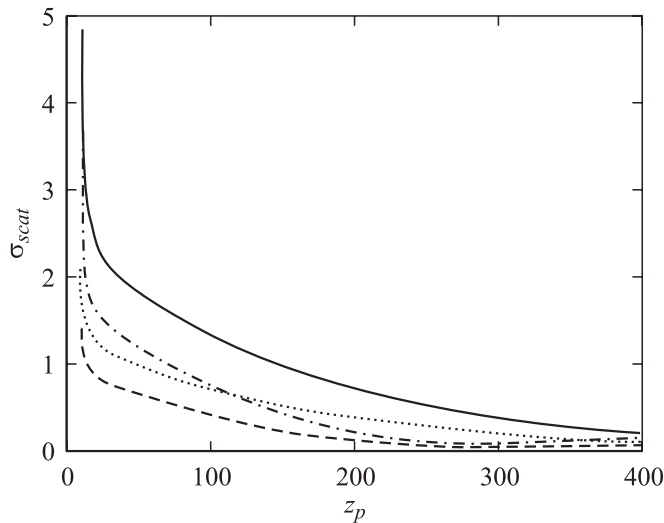


Рис. 1. Полные сечения рассеяния поверхностных плазмон-поляритонов как функции расстояния z_p между поверхностью и рассеивателем в виде сферической частицы с радиусом $R_p = 10$ nm: сплошная кривая соответствует σ_{scat}^{spp} с $\epsilon_p = -26.3$; штрихпунктирная кривая соответствует $(\sigma_{scat}^{s-pol} + \sigma_{scat}^{p-pol})$ с $\epsilon_p = -26.3$; пунктирная кривая — σ_{scat}^{spp} с $\epsilon_p = 15$; штриховая кривая — $(\sigma_{scat}^{s-pol} + \sigma_{scat}^{p-pol})$ с $\epsilon_p = 15$. Другие общие параметры: длина волны света $\lambda = 800$ nm; $\epsilon_m = -26.3$; $\epsilon_r = 1$. Сечения приведены в $(\times 10^{-4})$ nm, величина z_p в nm.

рассеивателем и поверхностью с ППП разность между сечениями рассеяния уменьшается. Если частица касается металлической поверхности, то величина сечений, как следует из рис. 1, резко возрастает из-за их взаимодействия. Однако в этом случае одного дипольного приближения уже недостаточно [4] и для описания процесса рассеяния следует учитывать вклад следующих мультиполей. С увеличением длины волны излучения, возбуждающего поверхностные плазмон-поляритоны, модуль диэлектрической проницаемости золота увеличивается, что приводит к изменению соотношений между сечениями рассеяния (рис. 2). Так, из рис. 2 видно, что при относительно малом расстоянии между рассеивателем и металлической поверхностью сечение рассеяния ППП

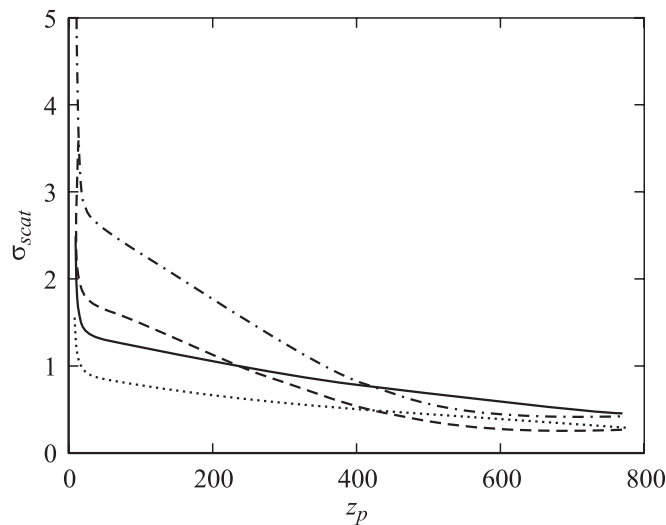


Рис. 2. Полные сечения рассеяния поверхностных плазмон-поляритонов как функции расстояния z_p между поверхностью и рассеивателем в виде сферической частицы с радиусом $R_p = 10$ nm: сплошная кривая соответствует σ_{scat}^{spp} с $\varepsilon_p = -132$; штрихпунктирная кривая соответствует $(\sigma_{scat}^{s-pol} + \sigma_{scat}^{p-pol})$ с $\varepsilon_p = -132$; пунктирная кривая $-\sigma_{scat}^{spp}$ с $\varepsilon_p = 15$; штриховая кривая $(\sigma_{scat}^{s-pol} + \sigma_{scat}^{p-pol})$ с $\varepsilon_p = 15$. Другие общие параметры: длина волны света $\lambda = 1550$ nm; $\varepsilon_m = -132$; $\varepsilon_r = 1$. Сечения приведены в $(\times 10^{-6})$ nm, величина z_p в nm.

в волны, распространяющиеся от поверхности, превышает сечение рассеяния ППП в ППП независимо от диэлектрической проницаемости частицы. Таким образом, из сравнения зависимостей, представленных на рис. 1 и 2, следует важное заключение — меняя длину волны внешнего излучения, можно изменять относительную эффективность различных каналов рассеяния ППП малой частицей, расположенной у поверхности с плазмон-поляритонами. Этот вывод имеет прямое отношение к задачам микроскопии ближнего поля на основе ППП, так как способствует выработке оптимальных режимов измерений в зависимости от внешних параметров эксперимента. В заключение заметим, что границы применимости дипольного приближения в задачах рассеяния ППП подробно рассмотрены в [4].

Список литературы

- [1] *Zayats A.V., Smolyaninov I.I.* // J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2003. V. 5. P. S16–S50.
- [2] *Barnes W.L., Dereux A., Ebbesen T.W.* // Nature. 2003. V. 424. P. 824–830.
- [3] *Shchegrov A.V., Novikov I.V., Maradudin A.A.* // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. P. 4269–4272.
- [4] *Евлюхин А.Б., Божевольный С.И.* // Письма в ЖЭТФ. 2005. Т. 81. С. 278–282.
- [5] *Søndergaard T., Bozhevolnyi S.I.* // Phys. Rev. B. 2003. V. 67. P. 165 405 (1–8).
- [6] *Søndergaard T., Bozhevolnyi S.I.* // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. P. 045 422 (1–10).
- [7] *Novotny L.* // J. Opt. Soc. Am. A 1997. V. 14. P. 105–114.
- [8] *Palik E.* Handbook of Optical Constant of Solids, Academic, San Diego, CA, 1985.