

13,01

## Сравнение спектров абсолютно черного тела и термостимулированных поверхностных плазмон-поляритонов в ИК-диапазоне

© И.Ш. Хасанов<sup>1</sup>, А.К. Никитин<sup>1,2</sup>, Та Thu Trang<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Научно-технологический центр уникального приборостроения РАН, Москва, Россия

<sup>2</sup> Российский университет дружбы народов, Москва, Россия

E-mail: khasanov@sci.pfu.edu.ru; alnikitin@mail.ru

(Поступила в Редакцию 9 июля 2015 г.

В окончательной редакции 7 декабря 2015 г.)

Выполнены анализ и сравнение спектров излучения термостимулированных поверхностных плазмон-поляритонов (ТППП) и абсолютно черного тела (АЧТ), исследована температурная зависимость этих спектров. Установлено, что полная энергия всего ансамбля поверхностных плазмонов пропорциональна кубу температуры, а их спектр смещен относительно спектра АЧТ в сторону больших длин волн. Показано, что спектр ТППП подчиняется закону Вина с иной константой. Оценена доля энергии фононов проводящего слоя, передаваемая поверхностным плазмонам. На примере слоя золота численно продемонстрировано, что эта доля может превышать 10% при толщине слоя меньше 1 мкм.

### 1. Введение

Поверхностные плазмон-поляритоны (ППП) представляют собой комплекс механической волны свободных зарядов на проводящей поверхности и  $p$ -поляризованной эванесцентной (неизлучающей) электромагнитной волны [1].

Генерация ППП возможна не только падающей на поверхность плоской электромагнитной волной, но и оптическими фононами (квантами тепловых колебаний ионов кристаллической решетки) металлического образца [2,3]. Термостимулированные ППП (ТППП) играют важную роль в тепловом балансе изделий из металла, поскольку могут не только забирать на себя существенную часть тепловой энергии объекта, но и вносить значительный вклад в его тепловое излучение в областях нарушения трансляционной симметрии поверхности. Кроме того, излучение ТППП может быть эффективно использовано в пассивной спектроскопии проводящей поверхности ввиду макроскопической длины распространения инфракрасных (ИК) ТППП ( $\sim 10^3$  длин волн) и концентрации их поля в приповерхностной области.

В настоящее время хорошо разработана теория ТППП для полупроводниковых кристаллов [2–4]. Получена и аналитическая модель спектра ТППП, генерируемых на поверхности металлов, диэлектрическая проницаемость которых описывается (особенно хорошо в ИК-диапазоне) моделью Друде [5].

Однако до сих пор не исследована температурная зависимость спектра ТППП на металле, не выполнено сравнение этого спектра со спектром излучения абсолютно черного тела (АЧТ), не изучена зависимость энергии всей совокупности ТППП от температуры.

В настоящей работе выполнены теоретический анализ и численное моделирование явления термогенерации

ППП ИК-диапазона с использованием как квантово-механической модели (статистический подход) генерации ППП оптическими фононами металлического образца, в которой совокупность всех ППП представляется как идеальный двумерный „газ“, подчиняющийся статистике Бозе–Эйнштейна, так и модели ансамбля слабо затухающих эванесцентных  $p$ -поляризованных электромагнитных волн, фазовая и групповая скорости которых близки к скорости света в окружающей среде (электродинамический подход).

### 2. Спектр излучения ТППП

В физике твердого тела колебания атомов металлического кристалла представляют в виде совокупности взаимодействующих квантовых гармонических осцилляторов, моделирующей распространение упругих волн, кванты которых называют фононами. Фононы относятся к классу бозонов, описываемых, как и фотонный „газ“ АЧТ, статистикой Бозе–Эйнштейна [6]. Поскольку ТППП порождаются фононами, всю совокупность ТППП (различающихся частотами  $\omega$ ) можно представить как двумерный Бозе-газ, подчиняющийся этой статистике. Предположим, что „газ“ распределен по площадке с характерным размером меньше длины распространения  $L_{\min}$  ППП с наибольшей частотой  $\omega_{\max}$ , но больше максимальной длины волны  $\lambda_{\max}$  рабочего спектрального диапазона. Тогда на краю такой площадки можно зарегистрировать излучение, порожденное ТППП-„газом“, спектр которого может отличаться от планковского спектра АЧТ.

АЧТ замечательно тем, что спектр его излучения определяется только его температурой. В теоретической физике используют модель АЧТ, согласно которой оно

рассматривается как непрозрачная замкнутая  $D$ -мерная „полость“ с проводящими стенками размера  $l$ , имеющими одинаковую температуру  $T$ . В случае  $D = 3$  такая „полость“ представляет собой куб, а в случае ТППП ( $D = 2$ ) — квадрат с проводящей стороной („стенкой,“) размером  $l$ . В такой двумерной „полости“ (резонаторе) вследствие интерференции встречных ТППП формируется совокупность стоячих волн.

Рассчитаем спектральную плотность энергии ТППП в такой „полости“, принимая во внимание следующие факты: 1) у стенок „полости“ тангенциальная компонента электрического поля и нормальная компонента магнитного поля ТППП равны нулю; 2) вследствие линейности уравнений Максвелла любое их решение можно записать в виде суперпозиции монохроматических волн; 3) хотя ТППП распространяются внутри „полости“ по всем направлениям, каждый из них можно представить в виде суммы двух взаимно ортогональных волн.

В условиях теплового равновесия внутри „полости“ перпендикулярно ее стенкам могут распространяться только ТППП с длиной волны

$$\lambda_{n_i} = 2l/n_i, \quad (1)$$

где  $n_i$  — целые числа, равные числу полуволн, укладываемых на расстоянии  $l$ ;  $i$  — индекс направления распространения волны (в случае ТППП  $i = 1, 2$ ).

Энергия поля всей совокупности ТППП в „полости“ равна сумме энергий полевых осцилляторов, соответствующих возможным элементарным волнам (модам). Согласно квантовой механике, энергия линейного осциллятора может принимать только дискретные значения [6]

$$E_r = (r + 1/2)\hbar\omega, \quad (2)$$

где  $r$  — число квантов в осцилляторе с частотой  $\omega$ . Отметим, что для  $r = 0$  энергия осциллятора не равна нулю и соответствует вакуумной энергии электромагнитного поля.

Для любого набора чисел  $n_i$  существует два линейно-независимых решения, соответствующих двум поляризациям фотона. Поскольку поле ТППП характеризуется  $p$ -поляризацией, при которой вектор электрического поля имеет отличную от нуля нормальную (к поверхности образца) компоненту, решение, соответствующее  $s$ -поляризации, принимать во внимание не будем.

Учитывая, что  $\hbar\omega = h\nu = h[V_{\text{гр}}n/2l]$ , где  $\nu$  — частота,

$n = \sqrt{\sum_{i=1}^D n_i^2}$  — норма вектора  $\mathbf{n} = (n_1, \dots, n_D)$ , а  $V_{\text{гр}}$  — групповая скорость ТППП-моды, преобразуем выражение (2) для энергии поля ТППП-моды, содержащей  $r$  квантов, к виду

$$E_r = \left(r + \frac{1}{2}\right)\varepsilon, \quad (3)$$

где  $\varepsilon = \frac{hV_{\text{гр}}}{2l} \sqrt{n_1^2 + n_2^2}$  — энергия кванта поля ТППП,  $n_1$  и  $n_2$  — число полуволн, укладываемых на отрезках,

перпендикулярных противоположным стенкам двумерной „полости“.

Согласно квантовой механике, вероятность, с которой в определенной моде поля линейного осциллятора (в нашем случае ТППП моде) содержится  $r$  квантов, рассчитывается по формуле (С. 98 в [7])

$$P_r = \frac{\exp(-\beta E_r)}{Z(\beta)}, \quad (4)$$

где  $\beta = 1/(k_B T)$ ,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $Z(\beta) = \sum_{r=0}^{\infty} \exp(-\beta E_r)$  — статистическая сумма энергии одной моды, которую выбирают такой, что  $\sum_r P_r = 1$ . Для удовлетворения этого условия в случае ТППП при  $E_r$ , определяемой выражением (3), величина  $Z(\beta)$  должна иметь вид

$$Z(\beta) = \frac{\exp(-\beta\varepsilon/2)}{1 - \exp(-\beta\varepsilon)}. \quad (5)$$

Для оценки средней энергии  $\langle E \rangle$  данной ТППП-моды выразим ее через статистическую сумму  $Z(\beta)$

$$\begin{aligned} \langle E \rangle &= \sum_r (E_r P_r) = \sum_r [E_r \exp(-\beta E_r)] / Z \\ &= -\frac{1}{Z} \frac{\partial Z}{\partial \beta} = -\frac{\partial (\ln Z)}{\partial \beta}. \end{aligned} \quad (6)$$

При  $Z(\beta)$ , определяемой формулой (5), выражение для  $\langle E \rangle$  принимает вид

$$\langle E \rangle = \frac{\varepsilon}{2} + \frac{\varepsilon}{\exp(\beta\varepsilon) - 1}. \quad (7)$$

Если оценивать  $\langle E \rangle$  относительно основного состояния, то полную энергию можно получить, суммируя разность  $\langle E \rangle - \varepsilon/2$  по всем разрешенным состояниям плазмонов. Такую оценку можно дать точно только в термодинамическом пределе, когда размер площадки (двумерной „полости“)  $l \rightarrow \infty$ . Отметим, что в случае площадки конечного размера условие  $l \rightarrow \infty$  может быть заменено требованием  $\lambda_{\text{max}} \ll l \ll L_{\text{min}}$ . В этом пределе спектр энергий ТППП становится непрерывным, и разность  $\langle E \rangle - \varepsilon/2$  можно интегрировать по параметру  $\varepsilon$ .

Тогда энергию  $U$  поля всего ансамбля ТППП, существующего в интервале частот от нуля до  $\omega_p/\sqrt{2}$  [8], можно оценить по формуле

$$U = \int_0^{\varepsilon_p \sqrt{2}} \frac{\varepsilon}{\exp(\beta\varepsilon) - 1} g(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (8)$$

где  $\varepsilon_p$  — энергия кванта поля ТППП с частотой  $\omega_p$ ;  $g(\varepsilon)d\varepsilon$  — полное число однофотонных состояний с энергиями от  $\varepsilon$  до  $\varepsilon + d\varepsilon$ ;  $g(\varepsilon)$  — плотность состояний (оценена далее).

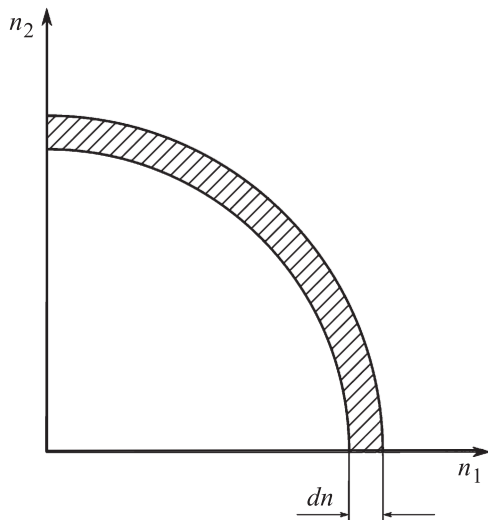


Рис. 1. Круговой сегмент шириной  $dn$  в фазовом пространстве квантовых чисел ТППП.

В формулу (8) не включен вакуумный член ( $\varepsilon/2$ ), поскольку мы условились оценивать энергию относительно основного состояния, т. е. относительно  $\langle E \rangle - \varepsilon/2$ .

С учетом следующего из выражения для  $\varepsilon$  равенства  $n = 2l\varepsilon/(hV_{gr})$  диапазон энергий  $d\varepsilon$  соответствует круговому сегменту шириной  $dn$  в фазовом  $n$ -пространстве

$$dn = \frac{2l}{hV_{gr}} d\varepsilon. \quad (9)$$

Поскольку компоненты вектора  $\mathbf{n}$  должны быть положительными, этот сегмент в случае двумерной „полости“ с  $D = 2$  находится в первом квадранте (рис. 1). Принимая во внимание (9), получим формулу для определения числа фотонных состояний  $g(\varepsilon)d\varepsilon$  в интервале энергий  $d\varepsilon$

$$g(\varepsilon)d\varepsilon = \frac{1}{4} 2\pi ndn = \frac{2\pi l^2}{h^2 V_{gr}^2} \varepsilon d\varepsilon. \quad (10)$$

Подставив (10) в (8), получим

$$U = \frac{2\pi l^2}{h^2} \int_0^{\varepsilon_p/\sqrt{2}} \frac{\varepsilon^2}{V_{gr}^2 [\exp(\beta\varepsilon) - 1]} d\varepsilon. \quad (11)$$

Применяя соотношение Планка для энергии кванта электромагнитного поля  $\varepsilon = \hbar\omega$  к полю ТППП, из (11) можно получить выражение для плотности энергии  $u$  поля всего ансамбля ТППП на единицу двумерного „объема“ в зависимости от температуры  $T$

$$u = \frac{U}{l^2} = \int_0^{\hbar\omega_p/\sqrt{2}} u_\omega(T) d\omega, \quad (12)$$

где  $u_\omega(T)$  — спектральная плотность мощности излучения ТППП, описываемая выражением

$$u_\omega(T) = \frac{\hbar\omega^2}{2\pi V_{gr}^2} \frac{1}{\exp(\hbar\omega\beta) - 1}. \quad (13)$$

Отметим, что выражение для  $u_\omega$  эквивалентно формуле (13), приведенной в [5].

Выразив  $\omega$  через  $\lambda$ , можно получить формулу для расчета спектра ТППП в зависимости от длины волны

$$u_\lambda(T) = \frac{2\pi hV_{gr}}{\lambda^4} \frac{1}{\exp(2\pi\hbar V_{gr}\beta/\lambda) - 1}. \quad (14)$$

### 3. Температурная зависимость энергии поля всего ансамбля ТППП

Для единицы площади „полости“ эта зависимость неявным образом описывается интегралом (12). Чтобы выявить зависимость  $u$  от  $T$ , проведем замену переменных:  $x = (\hbar\omega)/(k_B T)$ . Тогда (12) примет вид

$$u(T) \approx \frac{2\pi (k_B T)^3}{(hc)^2} \int_0^{\hbar\omega_p/\sqrt{2}} \frac{x^2}{\exp(x) - 1} dx. \quad (15)$$

Отметим, что в выражении (15) групповая скорость ППП  $V_{gr}$  вынесена из-под знака интеграла и заменена на скорость света  $c$  на том основании, что в среднем и дальнем ИК-диапазонах она (как и фазовая скорость) близка к скорости света в окружающей среде и отличается от нее всего на сотые доли процента [9,10]. Поскольку интеграл в последнем выражении является некоторой константой  $A$ , из (15) следует, что энергию поля всего ансамбля ТППП в двумерной „полости“ можно оценить по формуле

$$U \approx \frac{2A\pi (k_B T)^3}{(hc)^2} V, \quad (16)$$

где  $V = l^2$  — объем „полости“.

Таким образом, энергия поля всего ансамбля ТППП пропорциональна  $T^3$ , а не  $T^4$ , как в случае АЧТ.

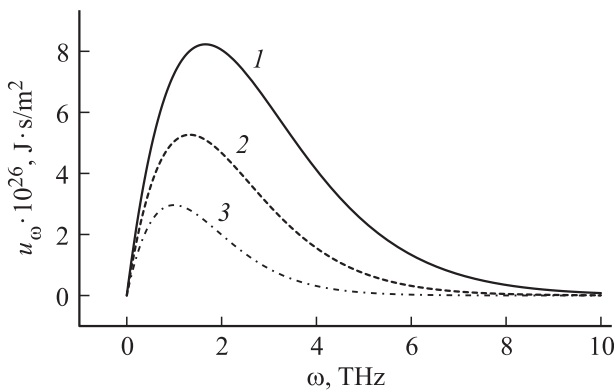
### 4. Температурная зависимость спектральной плотности мощности излучения ТППП

Свойства металла в выражении для спектральной плотности мощности излучения ТППП  $u_\omega$  учитываются групповой скоростью плазмонной моды  $V_{gr}$ . Но как отмечалось выше, в среднем и дальнем ИК-диапазонах групповая скорость ППП  $V_{gr} \approx c$ , поэтому выражение (13) для спектральной плотности мощности излучения ТППП примет вид

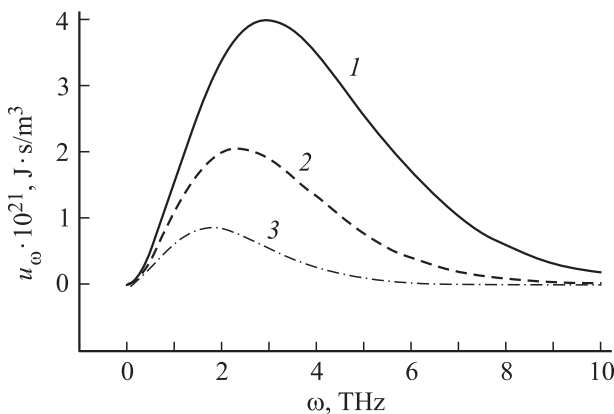
$$u_\omega(T) \approx \frac{\hbar\omega^2}{2\pi c^2} \frac{1}{\exp(\hbar\omega\beta) - 1}. \quad (17)$$

Спектральная же плотность мощности излучения АЧТ (формула Планка) описывается выражением

$$u_\omega(T) = \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} \frac{1}{\exp(\hbar\omega\beta) - 1}. \quad (18)$$



**Рис. 2.** Зависимости  $u_\omega(\omega)$ , рассчитанные по формуле (17) для ТППП, генерируемых фононами на поверхности кристалла золота ( $\omega_p = 72\,800\text{ cm}^{-1}$ ;  $\Omega = 215\text{ cm}^{-1}$  [11]), при температурах  $T = 500$  (1), 400 (2) и 300 (3).



**Рис. 3.** Зависимости  $u_\omega(\omega)$ , рассчитанные по формуле (18) для объемного излучения АЧТ при температурах  $T = 500$  (1), 400 (2) и 300 (3).

Из сравнения (17) и (18) видно, что величина  $u_\omega$  для ТППП пропорциональна  $\omega^2$ , а для АЧТ —  $\omega^2$ . Физической причиной данного факта является различие геометрий излучателей: в случае АЧТ излучатель трехмерный, а в случае ТППП — двумерный.

Для иллюстрации различия спектров излучения ТППП и АЧТ выполним численное моделирование с использованием формул (17) и (18) при различных температурах излучателей. Результаты расчетов для ТППП на поверхности золота (спектры ТППП на золоте, серебре, меди и алюминии слабо отличаются друг от друга в силу выполнения для этих металлов в ИК-диапазоне неравенства  $\omega \ll \omega_p$ ) приведены на рис. 2, а для АЧТ — на рис. 3. На осях ординат отложены спектральная поверхностная плотность мощности излучения и спектральная объемная плотность мощности излучения для ТППП и АЧТ соответственно.

Анализируя зависимости, приведенные на рис. 2 и 3, можно отметить следующие особенности спектров ТППП по сравнению со спектрами АЧТ: 1) спектры

ТППП более узкие, т.е. имеют меньшую частотную „ширину“; 2) максимумы спектров ТППП достигаются при меньших частотах. Отметим, что сравнивать спектральные плотности мощности ТППП и АЧТ по величине непосредственно некорректно в силу различия их геометрий, отраженного в размерности  $u_\omega$  на рис. 2, 3.

Чтобы ответить на вопрос о том, справедлив ли закон Вина для спектра ТППП, возьмем частную производную  $\partial u_\omega / \partial \omega$  от выражения (17) и приравняем ее к нулю

$$\frac{\partial u_\omega}{\partial \omega} \approx -\frac{\hbar\omega[2(\exp(\hbar\omega\beta) - 1) - \hbar\omega\beta \exp(\hbar\omega\beta)]}{2\pi c^2[\exp(\hbar\omega\beta) - 1]^2} = 0, \quad (19)$$

где  $\beta = 1/(k_B/T)$ .

Поскольку ТППП существуют в интервале частот  $0 < \omega < \omega_p\sqrt{2}$ , уравнение (19) имеет решение только при равенстве нулю множителя в квадратных скобках числителя производной  $du_\omega/d\omega$

$$2[\exp(x) - 1] - x \exp(x) = 0, \quad (20)$$

где  $x = \hbar\omega\beta$ .

Численное решение уравнения (20) дает значение  $x = y \approx 1.59362$ .

Таким образом, закон смещения Вина в случае ТППП имеет вид

$$\omega_{\max} \approx \frac{\gamma}{\hbar} k_B T, \quad (21)$$

где  $\omega_{\max}$  — частота, при которой интенсивность излучения ТППП максимальна.

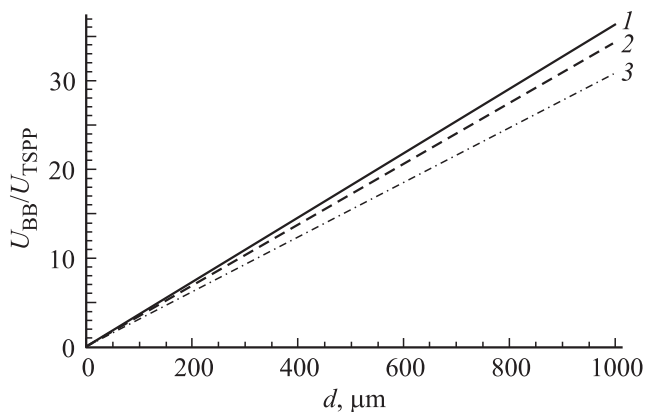
Отметим, что закон смещения Вина для ТППП отличается от классического закона Вина для АЧТ только значением константы  $\gamma$  (в случае АЧТ  $\gamma \approx 2.82144$ ). Из этого факта следует, что в случае ТППП чувствительность  $\omega_{\max}$  к изменению температуры ниже, чем в случае АЧТ.

## 5. Соотношение энергий ТППП и АЧТ в ИК-диапазоне

Оценим отношение  $U_{\text{BB}}/U_{\text{TSPP}}$  в диапазоне частот от 3 до 30 THz ( $U_{\text{TSPP}}$  — энергия ансамбля ТППП на поверхности металла, порождаемых фононами в пределах скин-слоя  $\delta$ , величина которого не зависит от толщины образца, причем в ИК-диапазоне она слабо зависит от частоты и не превышает 10 nm [12];  $U_{\text{BB}}$  — доля энергии фононов в слое АЧТ толщиной  $d > \delta$

$$\frac{U_{\text{BB}}}{U_{\text{TSPP}}} = d \frac{\int u_\omega^{\text{BB}} d\omega}{\int u_\omega^{\text{TSPP}} d\omega}. \quad (22)$$

С этой целью нами были выполнены численные оценки зависимости отношения  $U_{\text{BB}}/U_{\text{TSPP}}$  от толщины  $d$  слоя металла на примере золота с использованием формул (17) и (18). Результаты расчетов при температурах 300, 400 и 500 К приведены на рис. 4. Анализ этих зависимостей позволяет сделать следующие



**Рис. 4.** Отношение доли энергии фононов  $U_{BB}$  в слое АЧТ толщиной  $d$  к доле энергии  $U_{TSPP}$ , передаваемой ТППП-фононами в скин-слое кристалла золота, при температурах  $T = 500$  (1), 400 (2) и 300 (3).

выводы: 1) отношение  $U_{BB}/U_{TSPP}$  пропорционально  $T$ ; 2) для металлических слоев толщиной до 1 мм доля энергии фононов, передаваемая ТППП, существенна (при  $d > 300 \mu\text{m}$  превышает 10%) и подлежит учету при численном моделировании радиационного теплообмена тонкослойных металлических покрытий изделий, особенно функционирующих в условиях вакуума.

## 6. Заключение

Таким образом, нами разработана аналитическая модель спектра термостимулированных поверхностных плазмон-поляритонов и установлено, что: 1) полная энергия всего ансамбля ТППП пропорциональна кубу температуры, а не ее четвертой степени, как энергия излучения АЧТ; 2) спектр ТППП смещен относительно спектра АЧТ в сторону больших длин волн; 3) спектр ТППП подчиняется закону Вина, содержащему константу, отличную от классической.

Авторы выражают глубокую признательность Г.Н. Жижину за консультации и полезные советы в процессе подготовки работы.

## Список литературы

- [1] S.A. Maier. Plasmonics: fundamentals and applications. Springer Science—Business Media LLC (2007). P. 89.
- [2] K. Joulain, J.-P. Mulet, F. Marquier, R. Carminati, J.-J. Greffet. Surf. Sci. Rep. **57**, 59 (2005).
- [3] Е.А. Виноградов, И.А. Дорофеев. УФН **179**, 449 (2009).
- [4] E. Širmulis, A. Šilenas, K. Požela, J. Požela, V. Juciene. Appl. Phys. A **115**, 199 (2014).
- [5] Д.А. Минаков, В.Н. Селиванов, В.Б. Зон, А.Н. Латышев, О.В. Овчинников. Конденсированные среды и межфазные границы **8**, 131 (2006).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Ч. 1. Наука, М. (1976). 584 с.
- [7] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика. Наука, М. (1989). 768 с.
- [8] Е.А. Виноградов, Г.Н. Жижин, В.И. Юдсон. В кн.: Поверхностные поляритоны. Поверхностные электромагнитные волны на границах сред / Под ред. В.М. Аграновича, Д.Л. Миллса, Наука, М. (1985). С. 105.
- [9] G.N. Zhizhin, A.K. Nikitin, G.D. Bogomolov, V.V. Zavyalov, Y.U. Jeong, B.C. Lee, S.H. Park, H.J. Cha. Infrared Phys. Technol. **49**, 108 (2006).
- [10] А.В. Кукушкин, А.А. Рухадзе, К.З. Рухадзе. УФН **182**, 11 (2012).
- [11] M.A. Ordal, R.J. Bell, R.W. Alexander, L.L. Long, M.R. Querry. Appl. Opt. **24**, 4493 (1985).
- [12] Б.А. Князев, А.В. Кузьмин. Вестн. НГУ Сер. Физика **2**, 1, 108 (2007).