

## Плазменная оптика наноструктур

© А.В. Ключник, С.Ю. Курганов, Ю.Е. Лозовик

Институт спектроскопии Российской академии наук,  
142190 Троицк, Московская обл., Россия

(Поступила в Редакцию 4 июля 2002 г.)

Получены аналитические выражения для дисперсионных кривых плазмонов в металлическом цилиндре и цилиндрической полости в металле при малых радиусах цилиндра. Сделаны оценки длины пробега плазмонов и передачи энергии плазмонами в таких структурах.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 02-02-17852 и 02-02-17937).

В последнее время значительный интерес вызывают эффекты взаимодействия излучения оптического диапазона с наноразмерными проводящими структурами. В частности, выполнены эксперименты по эффективному прохождению света через тонкие отверстия в металле, диаметр которых много меньше длины волны [1]. Возможным физическим механизмом, ответственным за этот эффект, является возбуждение плазменной моды на одной стороне канала, распространение плазмона по каналу и высвечивание его на другой стороне канала. Эффективность такой передачи света будет определяться эффективностью передачи энергии падающей электромагнитной волны в энергию плазменной волны (и обратно) и затуханием плазмона при его распространении по каналу.

В связи с развитием методов зондовой микроскопии поверхности большой интерес представляет возможность возбуждения и распространения плазменной волны по металлическому зонду микроскопа ближнего поля. Таким способом можно было бы увеличить эффективность доставки энергии излучения к острию микроскопа и повысить его разрешающую способность [2–4].

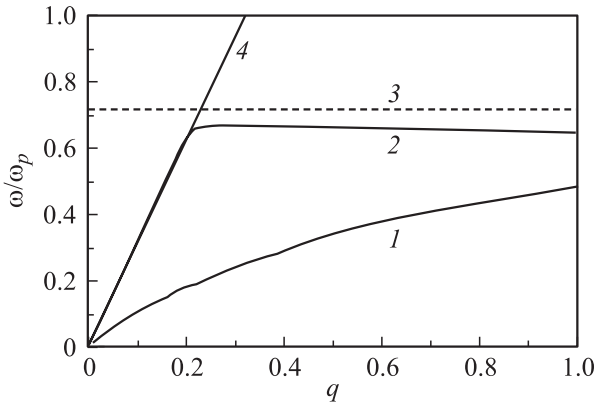
Значительный интерес представляют также плазменные моды в наноразмерных резонансных структурах, например в узких щелях и зазорах. Плазменные моды, поле которых локализовано в зазоре между острием зондового микроскопа и поверхностью, могут приводить к усилению электромагнитного поля в зазоре и к излучению квантов света. Отметим, что плазменные волны могут переносить энергию возбуждения в таких структурах, где иные типы собственных электромагнитных колебаний отсутствуют. В дальнейшем эта энергия может выводиться и высвечиваться в виде обычных фотонов [5–14].

Развитие нанотехнологии сделало возможным создание металлических структур диаметром в несколько нанометров. В этой связи также представляется весьма интересным исследовать механизмы резонансного возбуждения плазменных волн в таких структурах и проанализировать распространение плазменных волн, в том числе условия минимального затухания.

Все перечисленные выше эффекты относятся к быстро развивающейся в настоящее время плазменной опти-

ке. В данной работе рассматриваются эффекты резонансного возбуждения и распространения плазменных волн в наноразмерных проводящих структурах. В качестве простой модели будут рассматриваться тонкий цилиндрический проводник и отверстие цилиндрической формы. Собственные типы колебаний в диэлектрическом стержне хорошо известны. Однако их подробный анализ обычно давался для случая волноводных мод, для которых длина волны соизмерима с диаметром [15,16]. В разд. 1 выполнен анализ собственных мод в пределе  $\lambda \ll a$ , где  $a$  — радиус волновода. На основе полученных законов дисперсии проанализируем возможные типы плазменных колебаний в конечных структурах. Для этого используем простую модель, в которой появление границ не меняет пространственной структуры полей, а сама граница характеризуется коэффициентом отражения плазменной волны.

Диэлектрическую проницаемость металла будем описывать в модели Друде:  $\epsilon = I - \omega_p^2 / (\omega(\omega + i\gamma))$ . Для металлов характерная частота столкновений электрона с примесями  $\gamma = 1/\tau$ , как правило, намного меньше плазменной частоты,  $\tau\omega_p \gg 1$ . В рассматриваемых наноразмерных структурах кроме столкновений с примесями необходимо учитывать также рассеяние на шероховатостях стенок (диффузное рассеяние):  $\tau = l/v_F + a/v_F$ . Здесь  $l$  — среднее расстояние между примесями  $v_F$  — скорость Ферми,  $a$  — характерный размер шероховатостей. Наряду со столкновениями существует еще один механизм диссипации энергии электромагнитной волны — затухание Ландау, отвечающее перекачке энергии из коллективной плазменной степени свободы электронов в одночастичные степени свободы электронов. В рассматриваемых структурах мы имеем распространяющуюся волну вдоль оси цилиндра и стоячую волну в поперечном сечении. Поэтому можно выделить продольное затухание Ландау, возникающее, когда фазовая скорость плазменной волны вдоль оси сравнивается со скоростью Ферми, и поперечное затухание Ландау. Поперечное затухание Ландау обусловлено тем, что при разложении в ряд Фурье поперечного распределения поля в нем присутствуют фурье-компоненты с любыми волновыми векторами, в том числе и с такими, для которых фазовая скорость равна скорости Ферми. Затухание



**Рис. 1.** Дисперсионные кривые: 1 — симметричная  $E$ -мода в цилиндре, 2 — первая несимметричная ( $m = 1$ ) мода в цилиндре, 3 — поверхностный плазмон ( $\omega/\omega_p = 1/\sqrt{2}$ ), 4 — световая прямая ( $\omega = ck_z$ ). Здесь  $q = k_z a$ .

Ландау, обусловленное зеркальным отражением частиц на границах, оказывается в рассматриваемых системах меньше столкновительного затухания.

## 1. Собственные моды в тонком цилиндре

Рассмотрим бесконечный металлический цилиндр с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon(\omega)$  и диэлектрической проницаемостью окружающей среды  $\varepsilon_1$ . Исследуем собственные типы волн в условиях, когда  $a \ll \lambda$ ,  $a$  — радиус цилиндра,  $\lambda$  — длина волны. Ось  $Oz$  цилиндрической системы координат направим по оси цилиндра.

Из граничных условий получаем дисперсионное уравнение относительно волновых чисел  $\chi_1$  и  $\chi_2$

$$\left[ \chi_2 a \frac{J'_m(\chi_1 a)}{J_m(\chi_1 a)} - \chi_1 a \frac{H_m^{(2)'}(\chi_2 a)}{H_m^{(2)}(\chi_2 a)} \right] \left[ \frac{\varepsilon}{\varepsilon_1} \chi_2 a \frac{J'_m(\chi_1 a)}{J_m(\chi_1 a)} - \chi_1 a \frac{H_m^{(2)'}(\chi_2 a)}{H_m^{(2)}(\chi_2 a)} \right] - m^2 \left( \frac{k_z k}{\chi_1 \chi_2} \right)^2 \left( \frac{\varepsilon}{\varepsilon_1} - 1 \right)^2 = 0, \quad (1)$$

где  $\chi_1 = \sqrt{\varepsilon k^2 - k_z^2}$ ,  $\chi_2 = \sqrt{\varepsilon_1 k^2 - k_z^2}$ .

Рассмотрим сначала симметричную моду. Как следует из (1), для основной симметричной моды ( $m = 0$ ) дисперсионное уравнение распадается на два уравнения для  $E$ - и  $H$ -волн. Для несимметричных по углу типов волн такое разделение отсутствует, т.е.  $E_z$  и  $H_z$  одновременно не равны нулю. Дисперсионная кривая для симметричной  $E$ -волны в цилиндре представлена на рис. 1.

Характер спектра плазмона определяется двумя безразмерными параметрами:  $q = k_z a$  и  $b = \omega_p a / c$ . Для металлов типа Ag, Cu ( $\omega_p \sim 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ) при диаметре проводника  $2a = 20 \text{ nm}$   $b^2 \approx 0.1$ . В предельных случаях

закон дисперсии принимает достаточно простой вид

$$\text{при } 1 > q \gg \exp(-2/b^2), \quad \omega/\omega_p \cong k_z a \ln^{1/2}(1/k_z a); \quad (2)$$

$$\text{при } q \ll b \exp(-4/b^2), \quad \omega \approx k_z c$$

$$\times [1 - 4/(b^2 \ln[b^2/4q^2])]^{1/2}. \quad (3)$$

В пределе  $q \gg 1$  ( $q \gg b\omega$ ) закон дисперсии имеет в качестве асимптотики частоту поверхностного плазмона  $\omega_p/\sqrt{2}$ . Из полученного закона дисперсии (3) видно, что при уменьшении волнового вектора дисперсионная кривая, приближаясь к световой прямой, ни при каких значениях  $q$  не пересекает ее и не выходит из области радиационной устойчивости.

Найдем групповую скорость плазмона  $v_G$  в тонкой металлической нити. При  $q \gg \exp(-2/b^2)$  получаем  $v_G/c \approx b \ln^{1/2}(1/k_z a)$ , а при  $q \ll b \exp(-4/b^2)$  групповая скорость стремится к скорости света. Таким образом, в большой области волновых векторов симметричная  $E$ -мода в цилиндре является медленной волной.

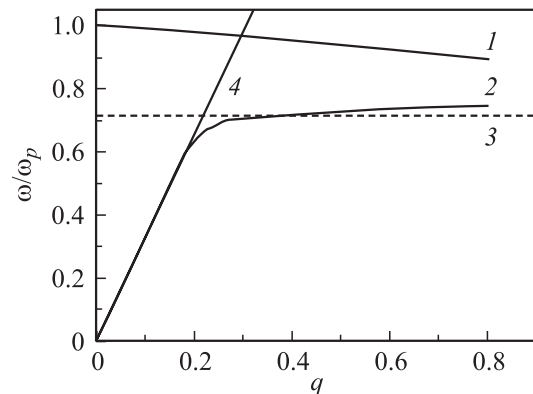
Дисперсионное уравнение для симметричной  $H$ -волны не имеет действительных корней. Отсюда следует, что в металлическом цилиндре не существует радиационно-устойчивой  $H$ -волны.

На рис. 1 приведена также дисперсионная кривая для первой несимметричной  $E$ -моды.

## 2. Поляритоны в узком круглом отверстии (канале)

Рассмотрим узкое цилиндрическое отверстие в металле и исследуем распространение поляритонов в таких каналах. Решение для плазменных волн в отверстии можно получить из решения в цилиндре, поменяв местами в (1)  $\varepsilon$  и  $\varepsilon_1$ .

Дисперсионное уравнение для симметричной моды в отверстии, как и в цилиндре, распадается на два уравнения: для  $E$ - и  $H$ -волн.



**Рис. 2.** Дисперсионные кривые поляритонов в цилиндрической полости: 1 — симметричная мода, 2 — первая несимметричная ( $m = 1$ ) мода, 3 — поверхностный плазмон ( $\omega/\omega_p = 1/\sqrt{2}$ ), 4 — световая прямая. Здесь  $q = k_z a$ .

2.1.  $E$ -волна в канале. Для симметричной  $E$ -моды в отверстии при  $q \gg \exp(-2/b^2)$  получаем

$$\omega = \sqrt{1 - q^2/2 \ln(1/q)}. \quad (4)$$

В области  $q \ll \exp(-2/b^2)$  имеем  $\omega = 1 - z_0^2 \times (1 + q^2/z_0^2 b^4)/2$ , где  $z_0 = \exp(-2/b^2)/b$ . Из (4) видно, что при  $q = 0$  частота поверхностного плазмона в цилиндрическом канале не равна плазменной частоте, а смещена от последней вниз на величину  $z_0^2/2$ . Дисперсионная кривая нулевой моды в цилиндрическом отверстии показана на рис. 2. Здесь же приведена дисперсионная кривая для первой несимметричной  $E$ -моды.

Анализ показывает, что в тонких каналах нет радиационно-устойчивых  $H$ -волн.

### 3. Передача энергии плазмонами

Оценка передачи энергии плазменными модами связана с любопытным парадоксом. Действительно, в электростатическом приближении магнитное поле считается равным нулю. При этом в нуль должен обращаться и поток энергии, пропорциональный, как известно, вектору Пойтинга  $\sim (\mathbf{E} \times \mathbf{H})$ . С другой стороны, перенос энергии связан с групповой скоростью соответствующих собственных мод. И если групповая скорость плазмонов отлична от нуля, отличным от нуля должен быть и поток энергии.

Чтобы проанализировать данный парадокс более детально, рассмотрим перенос энергии обычным поверхностным плазмоном и плазмоном в тонкой пленке. Эти простые случаи допускают точное решение (с учетом запаздывания). Для поверхностного плазмона-поляритона (компоненты поля  $E_z$ ,  $E_x$ ,  $H_y$  отличны от нуля, ось  $x$  направлена перпендикулярно поверхности, ось  $z$  — направление распространения волны) закон дисперсии имеет вид  $\omega = (\omega_p/\sqrt{2}) \times [1 + 2k_z^2/k_p^2 - (1 + 4k_z^4/k_p^4)^{1/2}]^{1/2}$ , где  $q$  — волновой вектор поляритона вдоль оси  $z$ ,  $k_p = \omega_p/c$ . Групповая скорость поверхностного плазмона, а следовательно, и поток энергии обращается в нуль в пренебрежении эффектами запаздывания. Этот результат совпадает с прямым вычислением вектора Пойтинга:  $S_z = A^2 \omega^3 (1 - \varepsilon) \kappa / (8\pi c^2 \kappa_1^2)$ , где  $\kappa = (k_z^2 - (\omega/c)^2)^{1/2}$ ,  $\kappa_1 = (k_z^2 - \varepsilon(\omega/c)^2)^{1/2}$ ,  $A$  — амплитуда электрического поля на поверхности.

Однако, как хорошо известно, дисперсия и отличная от нуля групповая скорость появляются для поверхностного плазмона в электростатическом приближении с учетом эффектов пространственной дисперсии. Кроме того, для плазменных мод в пленках, узких щелях и тонких каналах групповая скорость принципиально отлична от нуля в электростатическом пределе даже без учета эффектов пространственной дисперсии и запаздывания. Как было показано выше, закон дисперсии плазмона в тонкой нити  $\omega \sim k_z \ln^{1/2}(1/k_z a)$  и групповая скорость

оказывается не малой. Поэтому должен быть перенос энергии плазмонами и в электростатическом пределе.

Разрешение данного парадокса состоит в том, что вектор Пойтинга равен произведению векторного произведения  $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$  на скорость света  $c$ . В электростатическом пределе  $\mathbf{H} \rightarrow 0$ , но  $c \rightarrow \infty$  и для правильного вычисления потока энергии надо раскрывать получающуюся неопределенность. Для вычисления скорости переноса энергии необходимо найти отношение плотности потока энергии к полной энергии, заключенной в элементе объема единичной длины. Расчет показывает, что в электростатическом пределе есть перенос энергии с групповой скоростью соответствующих волн. Поток энергии в тонком плоском зазоре шириной  $2d$  ( $k_z d \ll 1$ ) в электростатическом пределе равен  $S_z = A^2 k_z^2 \omega \varepsilon / (4\pi)$  для симметричной плазменной моды с законом дисперсии  $\omega = \omega_p (qd)^{1/2}$ . Поток энергии в тонкой цилиндрической нити  $S_z = \omega / (2k_z^3 \ln(1/k_z R))$ , в тонком цилиндрическом канале  $S_z = \omega \varepsilon / (2k_z^3 \ln(1/k_z R))$ . При напряжении пробоя  $E = 30 \text{ kV/cm}^2$  для цилиндрического канала радиусом  $R = 100 \text{ nm}$  на частоте  $\omega = 0.95 \omega_p$  ( $1.57 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$  для меди) максимальный поток энергии  $S_z = 6 \text{ mW/cm}^2$ .

### 4. Плазменные моды в конечных системах

Примером плазменных мод в конечных системах являются плазмоны в тонких иглолках, плазмоны в узких каналах, зазорах, плазмоны в малых металлических частицах и отверстиях. Такие моды могут возбуждаться резонансным образом различными внешними источниками, например, светом или заряженными частицами. Наноразмерные структуры оказываются резонаторами для плазменных мод. Спектр и добротность таких нанорезонаторов будут определяться их размером и границами.

Распространение плазмонов в узких плоских щелях рассматривалось в работе [17]. Было показано, что на плавных неоднородностях может происходить локализация плазмонов. В данной работе проанализирован противоположный случай резких границ, когда размеры неоднородности меньше длины волны плазмона.

В качестве примера рассмотрим узкий канал цилиндрической формы длиной  $L$ . В канале бесконечной длины может распространяться плазменная мода. На границе канала происходит отражение с коэффициентом отражения  $R = r \exp(i\varphi)$ . Условие резонанса имеет вид  $kL + \varphi = \pi n$ . Из этого условия находим набор волновых векторов  $k_n$ . Спектр резонансных частот определяется из уравнения  $\omega_n = \omega(k_n)$ . Для несимметричной моды с  $m = 1$  собственные частоты  $\omega_n = c(\pi n - \varphi)/L$  при  $L > 5a$ . В области высоких частот спектр сгущается к частоте поверхностного плазмона.

Для оценки коэффициента отражения  $R$  рассчитаем мощность излучения плазменной моды, считая, что источником излучения является осциллирующий заряд

**Таблица 1.** Длины пробега поверхностных плазмонов-поляритонов  $L_p$  симметричной и первой несимметричной мод в серебряном цилиндре при разных радиусах цилиндра  $a$  и для различных частот оптического диапазона  $\omega$  при температуре 273 К

Радиус цилиндра $a$ , nm	Частота плазмона $\omega$ , $10^{15} \text{ s}^{-1}$ (в скобках относительная частота $\omega/\omega_p$ )	Нулевая мода в цилиндре $L_p$ , $\mu\text{m}$	Первая мода в цилиндре $L_p$ , $\mu\text{m}$
4	2.5 (0.18)	1.6	8.5
4	4.8 (0.35)	0.9	8.5
40	2.5 (0.18)	28	8.5
40	4.8 (0.35)	12	8.5

**Таблица 2.** Длины пробега поверхностных плазмонов-поляритонов  $L_p$  симметричной и первой несимметричной мод цилиндрической полости в серебре при разных радиусах цилиндра  $a$  и для различных частот оптического диапазона  $\omega$  при температуре 273 К

Радиус отверстия $a$ , nm	Частота плазмона $\omega$ , $10^{16} \text{ s}^{-1}$ (в скобках относительная частота $\omega/\omega_p$ )	Нулевая мода в отверстии $L_p$ , $\mu\text{m}$	Первая мода в отверстии $L_p$ , $\mu\text{m}$
4	1.2 (0.9)	0.3	8.5
4	1.1 (0.8)	0.1	8.5
40	1.1 (0.8)	1.0	8.5
40	1.0 (0.73)	0.1	8.5

в том месте, где канал выходит на поверхность. Распределение заряда возьмем из невозмущенной задачи с бесконечным каналом. Для моды с  $m = 1$  на „срезах“ имеем осциллирующий дипольный момент. Для симметричной моды с  $m = 0$  на срезе имеем осциллирующее электрическое поле, излучение которого можно оценить как излучение магнитного диполя с магнитным моментом  $\mathbf{m} = (E_s S_r / \omega) \mathbf{e}_r$ . Добротность резонатора, образованного отрезком цилиндрического канала длиной  $L$ , оценим из отношения плотности потока энергии излучения для симметричной моды ( $\sim E^2(\omega/c)^2/k_z^4$ ) к электростатической энергии плазмона внутри резонатора ( $\sim E^2 L/k_z^2$ ). В результате получаем, что радиационная добротность по порядку величины равна  $Q_{\text{rad}} \sim L\omega/(ck_z)$ .

## 5. Затухание плазмонов

Имеется три источника затухания плазменной волны. Это — диссипативное затухание, связанное с рассеянием электронов на примесях и на границе, радиационное затухание, связанное с излучением фотонов, и затухание Ландау. В рассматриваемом оптическом диапазоне частот, как правило, доминирует диссипативное затухание, которое может стать малым для благородных металлов или при низкой температуре.

Для оценки затухания будем исходить из общего выражения для мнимой части собственной частоты:  $\omega'' = P/2W$ , где  $\omega = \omega' + i\omega''$ ,  $P$  — мощность потерь электромагнитной энергии,  $W$  — запасенная энергия. Выразим мощность потерь и запасенную энергию через

электрическое поле и диэлектрическую проницаемость

$$W = \frac{1}{8\pi} \int \frac{\partial(\omega\varepsilon(\omega))}{\partial\omega} |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}, \quad P = i\omega \int \mathbf{E}\mathbf{P}^* - \text{с.с.} \quad (5)$$

где  $\mathbf{P}$  — вектор поляризации. Мощность и запасенную энергию найдем по теории возмущений, считая, что выражение для поля имеет вид, полученный выше в отсутствие затухания.

Диссипативное затухание находится наиболее просто  $\omega'' = \gamma/2$ .

Для оценки затухания Ландау используем кинетическое уравнение. Для слабого поля ищем функцию распределения электронов в виде  $f = f_0 + f_1$ , где  $f_0$  — невозмущенная полем функция распределения электронов, а  $f_1$  — ее изменение под влиянием поля, которое удовлетворяет на границе  $d$  условиям зеркального отражения  $f_1(d, v_n) = f_1(d, -v_n)$ , где  $v_n$  — нормальная к границе компонента скорости электрона. Поправку к функции распределения найдем методом, предложенным в [18]. Разложим выражение для поля и функции распределения в ряд Фурье (для узкой плоской щели или пластинки) или в ряд Фурье–Бесселя (для цилиндра). Например, для симметричной (по потенциалу) плазменной моды в пластинке выражение для  $f_1$  имеет вид

$$f_1 = -e(\partial f_0/\partial\varepsilon)\varphi_n \mathbf{k}\mathbf{v}/[\omega - \mathbf{k}\mathbf{v}],$$

$$\mathbf{k} = (k_n, k_z), \quad k_n = (\pi n/d).$$

Здесь  $\varphi_n$  — фурье-компонента потенциала электрического поля. Мнимая часть, которая только и вносит вклад в выражение (5) для мощности, происходит из полюса в выражении для функции распределения, т.е. из условия  $\omega - k_z v_z - (\pi n/d) = 0$ . Существенно, что даже при

$k_z = 0$  условие резонанса может быть выполнено при достаточно большом значении  $n \sim \omega/v_F$ . Таким большим значениям  $n$  могут отвечать достаточно малые значения фурье-компонент электрического поля. Именно поэтому затухание Ландау оказывается в таких системах меньше столкновительного затухания. Для симметричной моды в пластинке, в частности, получаем

$$\omega''/\omega' = (3/4)(k_z d)^3 v_F / (d\omega_p).$$

## 6. Длина пробега плазмона в цилиндре

Представляет интерес оценка характерной длины пробега плазмона. Ее можно оценить как произведение групповой скорости пакета на характерное время затухания  $t \approx 1/2\omega''$ :  $L_p \approx v_G/2\omega''$ . Длины пробега поверхностных плазмонов в цилиндрах и в цилиндрических полостях приведены в табл. 1 и 2.

Диссипативное затухание заметно уменьшается с понижением температуры. Это ведет к увеличению длины пробега поляритонов. В таблице приведены значения длин пробега при температуре 273 К. При температуре 77 К длина пробега увеличивается приблизительно в 10 раз.

## Список литературы

- [1] T.W. Ebbesen, H.J. Lezec, H.F. Ghaemi, T. Thio, R.A. Wolff. *Nature* **391**, 667 (1998).
- [2] M. Volcker, W. Krieger, H. Walther. *Phys. Rev. Lett.* **66**, 13, 1717 (1991).
- [3] M. Specht, J.D. Pedarnig, W.M. Heckt, T.W. Hansch. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 4, 476 (1992).
- [4] R. Berndt, R. Gaisch, W.D. Schneider, J.K. Gimzewski, B. Reihl, R.R. Schlittler, M. Tschudy. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1, 102 (1995).
- [5] M. Moskovits, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 3, 783 (1985).
- [6] A. Nitzan. *J. Chem. Phys.* **74**, 9, 5321 (1981).
- [7] R. Fuchs, K.L. Kliewer, W.J. Pardee. *Phys. Rev.* **150**, 2, 589 (1966).
- [8] А.В. Ключник, Ю.Е. Лозовик, А.В. Солодов. *ЖТФ* **65**, 6, 203 (1995).
- [9] H. Morawitz, M.R. Philpott. *Phys. Rev. B* **10**, 12, 4863 (1974).
- [10] S. Efrima, H. Metiu. *J. Chem. Phys.* **70**, 4, 1602 (1979).
- [11] U. Fano. *Phys. Rev.* **103**, 5, 1202 (1956).
- [12] J.J. Hopfield. *Phys. Rev.* **112**, 5, 1555 (1958).
- [13] R.R. Chance, A. Prock, R. Silbery. *Adv. Chem. Phys.* **37**, 1 (1978).
- [14] H. Kuhn, *J. Chem. Phys.* **53**, 1, 101 (1970).
- [15] G.G. Aers, A.D. Bcardman, B.V. Paranjape. *J. Phys.* **F10**, 1, 53 (1980).
- [16] S.S. Martinos, E.N. Economou. *Phys. Rev. B* **28**, 6, 3173 (1983).
- [17] V.N. Agranovich, V.E. Kravtchov, T.A. Leskova. *Sol. Stat. Commun.* **47**, 11, 925 (1983).
- [18] А.Н. Кондратенко. Поверхностные и объемные волны в ограниченной плазме. Энергоатомиздат, М. (1985).