Письма в ЖЭТФ, том 91, вып. 10, с. 551 – 555

Плазмон-поляритонная самоиндуцированная прозрачность

А. А. Заболотский[1)]

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 15 февраля 2010 г.

После переработки 7 апреля 2010 г.

Изучается формирование и эволюция связанного солитонного поляритон-плазмонного локализованного состояния в металлическом цилиндре, окруженном слоем двухуровневых атомов с частотой, близкой плазмонному резонансу. Для описания динамики поперечных плазмонов в протяженной среде использовано гидродинамическое приближение. Показано, что эволюционные уравнения приводятся к уравнениям, аналогичным уравнениям Максвелла – Блоха, описывающим явление самоиндуцированной прозрачности в оптике. Численно исследуется влияние потерь и нелинейностей, связанных с самодействием электронного облака, на эволюцию солитонопободных структур.

Усиление локального электромагнитного поля вблизи металлических наночастиц приводит к многим новым и интересным явлениям в оптике [1]. К ним относятся поверхностное гигантское комбинационное рассеяния [2] и усиление флуоресценции [3] вблизи наночастиц, эффективная генерация фототока [4] и пр. Многие интересные явления плазмоники связаны с изменением характеристик резонансного излучения, поглощения или дисперсии света из-за пространственной локализации резонансных плазмонов [1 – 3].

Физические механизмы, приводящие к изменению флуоресценция в окрестности металлических наночастиц, также, при определенных условиях, могут, как считает ряд авторов, приводить к когерентной генерации света, см. работы [5 – 7] и ссылки в них. Формирование солитоноподобных связанных состояний фотонов и плазмонных осцилляций, локализованых на малых, в протяженных средах, включающих периодически расположенные наночастицы или тонкие слои металла, изучалось в ряде теоретических работ, см., например, [1, 8, 9].

В протяженных однородных металлических средах, таких как тонкие металлические стержни и пластинки, важны эффекты распространения сгустков плазменных осцилляций. Условие компенсации потерь в металле посредством накачки резонансного перехода диэлектрической среды, расположенной вблизи, дает возможность наблюдения когерентных эффектов, связанных с распространением нелинейных плазмон-поляритонных волновых пакетов, в том числе, с длиной волны, много меньше световой [5, 8]. Целью настоящей работы является аналитическое и численное исследование такой возможности в длинных металлических стержнях, окруженных резонансной двухуровневой средой (ДУС).

Опишем коллективное движение электронов в рамках гидродинамической модели, см., например, [10]. В этой модели коллективное движение электронов в произвольной неоднородной системе выражается в терминах электронной плотности $n(\mathbf{r},t)$ и гидродинамической скорости $\mathbf{v}(\mathbf{r},t)$, которые в предположении безвихревого движения выражаются в виде градиента потенциала скорости $\psi(\mathbf{r},t)$ так, что $\mathbf{v}(\mathbf{r},t) = -\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)$. Основные гидродинамические уравнения (уравнение неразрывности и уравнение Бернулли) в присутствии внешней силы имеют вид

$$\frac{d}{dt}n_e(\mathbf{r},t) = \boldsymbol{\nabla}\cdot\left[\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)\; n_e(\mathbf{r},t)\right], \tag{1}$$

$$\frac{d}{dt}\psi(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\,\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t)\cdot\boldsymbol{\nabla}\psi(\mathbf{r},t) + \frac{\delta T_F(n_e)}{\delta n_e} + U(\mathbf{r},t), \tag{2}$$

где $T_F(n_e)$ – внутренняя кинетическая энергия, которая часто аппроксимируется функционалом Томаса-Ферми

$$T_F(n_e) = \frac{3\hbar^2}{10m}\,(3\pi^2)^{2/3}\,\left[n_e(\mathbf{r},t)\right]^{5/3}, \tag{3}$$

$$U(\mathbf{r},t) = \frac{e}{m}\left[\boldsymbol{\nabla}^{-1}\cdot\mathbf{E} - \phi_i(\mathbf{r},t)\right], \tag{4}$$

и уравнения Пуассона

$$\Delta\phi_e(\mathbf{r},t) = 4\pi\, e\, n_e(\mathbf{r},t), \tag{5}$$

где $\mathbf{E}$ – амплитуда электромагнитного поля, действующего на наноплазму, m и e – масса и заряд элек-

1) e-mail: zabolotskii@iae.nsk.su

трона, соответственно; ϕ_e – электронный потенциал. Как правило, смещением ионов можно пренебречь [10]. Считаем, что начальная плотность электронного облака $n_e(\mathbf{r},0)$ – константа.

Гидродинамические уравнения (1)–(5) являются нелинейными уравнениями, которые могут быть решены с использованием теории возмущений по отношению к малым возмущениям $n_1(\mathbf{r},t)$ и $\psi_1(\mathbf{r},t)$:

$$n_e(\mathbf{r},t) = n_0(\mathbf{r}) + n_1(\mathbf{r},t) + \ldots, \tag{6}$$

$$\psi(\mathbf{r},t) = 0 + \psi_1(\mathbf{r},t)\ldots, \tag{7}$$

Обозначив малый сдвиг $\zeta(\mathbf{r},t)$ плазменного слоя вдоль оси z перпендикулярной к оси металлического цилиндра x, такой что $\chi(\mathbf{r},t)$, $(\partial_t\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t) = \mathbf{v}(\mathbf{r},t))$, получаем из системы (1)–(7)

$$n_1(\mathbf{r},t) = -\boldsymbol{\nabla}\left[n_0(\mathbf{r})\zeta(\mathbf{r},t)\right], \tag{8}$$

$$\frac{d^2}{dt^2}\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t) = \frac{\beta_0^2(\mathbf{r},t)}{n_0(\mathbf{r})}\Delta\left[n_0(\mathbf{r})\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t)\right] + \mathbf{F}(\mathbf{r},t) + \\ + \frac{\boldsymbol{\nabla}^{-1}}{n_0}\widehat{W}_1(\mathbf{r})\left[n_0(\mathbf{r})\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t)\right], \tag{9}$$

где $\mathbf{F} = -e\mathbf{E}_p/m$ и

$$\beta_0^2(\mathbf{r}) = \frac{\hbar^2}{2m}(3\pi^2)^{2/3}n_0(\mathbf{r})^{5/3}, \tag{10}$$

$$\widehat{W}_1(\mathbf{r}) = \frac{\beta_0^2}{n_0}\boldsymbol{\nabla}n_0\cdot\boldsymbol{\nabla} + \\ + \left[\boldsymbol{\nabla}n_0(\mathbf{r})\cdot\boldsymbol{\nabla} + n_0(\mathbf{r})\Delta\right]\left[\frac{\beta_0^2(\mathbf{r})}{n_0(\mathbf{r})}\right] + 2\boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\beta_0^2(\mathbf{r})}{n_0(\mathbf{r})}\right]\cdot\boldsymbol{\nabla}. \tag{11}$$

Для почти однородной плотности $n_0(\mathbf{r})$ вкладом оператора $\widehat{W}_1$ пренебрегаем.

Динамика электронов в среде определяется начальной внешней силой и электрическими полями, генерируемыми плазмон-поляритонными импульсами, эволюционирующими на фоне основного состояния $n_1 = 0$.

Для усиливающей среды, заполняющей концентрическую оболочку стержня, применяем приближение ДУС, которая описывается матрицей плотности $\widehat{r}$. Матричный элемент r_{12} описывает переход между основным $|2\rangle$ и возбужденным $|1\rangle$ состояниями, r_{22} и r_{11} – заселенности этих уровней и $\rho_0 = r_{11} - r_{22}$. Считаем, что плотность молекул $n_d = \mathrm{const}$, и поляризация каждой молекулы

$$\langle 1|\,\mathbf{p}\,|2\rangle = -\left[\mathbf{d}_{21}\rho_{12}(x,t) + \mathbf{d}_{21}^*\rho_{12}^*(x,t)\right], \tag{12}$$

где вектор дипольного момента $\mathbf{d}_{21} = e\,\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle = (0,0,d_{12})$.

Применяя приближения вращающейся волны и одномерной среды, представим функции в виде

$$r_{21}(\mathbf{r},t) = \rho_{21}(x,t)\exp(i\omega t - ikx) + \text{c.c.}, \tag{13}$$

$$\boldsymbol{\zeta}(\mathbf{r},t) = \left[0,0,\frac{\beta_0\mathcal{Z}(x,t)}{\omega}\exp(i\omega t - ikx)\right] + \text{c.c.}, \tag{14}$$

$$\mathbf{F}(\mathbf{r},t) = \left[0,0,\beta_0\omega f(x,t)\exp(i\omega t - ikx)\right] + \text{c.c.} \tag{15}$$

Здесь ω и k – несущие частота и волновой вектор, соответственно, $\rho_{21}(x,t)$, $\mathcal{Z}(x,t)$ и $f(x,t)$ – медленные огибающие. Считаем, что характерный размер пакета сгустка плазменных осцилляций l_p больше $\beta_0/\omega \sim 10^{-8} - 10^{-7}$м и много меньше длины среды L_m, которая может быть $\sim$ 1мкм. Пренебрегаем релаксационными эффектами в ДУС. Для групповой скорости пакета $\sim\beta_0$ время пробега стержня $\sim$1 пс.

Вводим безразмерные переменные $\tau = \omega(t - x/\beta_0)$, $\chi = x\omega\beta_0^{-1}$. Сила, действующая на плазму, $f(\chi,\tau) = -eE_p(\chi,\tau)(m\omega\beta_0)^{-1}$ определяется суммой z-компонент поля индуцированных диполей молекул ДУС $E_{d\to p}$ и $E_{p\to p}$, $NE_{p\to p}$ – соответственно линейной и нелинейной (по $\mathcal{Z}$) частей электрического поля, являющихся следствием самодействия облака электронов, вызванного смещением по отношению к ионному остову.

Стандартные вычисления дают

$$E_{p\to p} = \frac{m\omega_p^2}{e\omega^2}\mathcal{Z}(\chi,\tau), \tag{16}$$

где $\omega_p^2 = 4\pi\, e^2 n_0/m$ – плазменная частота.

Для оценки поля $E_{d\to p}$ считаем, что диполи резонансных переходов ДУС коллинеарны, направлены по нормали к оси. Пренебрегаем неоднородным уширением и считаем, что атомы красителя однородно распределены в полом бесконечно длинном цилиндре с радиусом $L + r$, толщиной стенки L, окружающим металлический цилиндр с радиусом r. В общем случае взаимодействие нелокально. Однако, для простоты полагаем, что масштаб изменения $\langle 1|\,\mathbf{p}(\chi,\tau)\,|2\rangle$, то есть характерный размер поляритон-плазмон ных импульсов, много больше L и r. Интегрирование (для бесконечно длинного цилиндра) дает следующее выражение для поля диполей ДУС на оси цилиндра:

$$E_{d\to p}(x,t) \approx f_d 4\pi n_d d_{21}\rho_{12}(\chi,\tau), \tag{17}$$

где константа $f_d = L/(r+L) + \ln(1+r/L)$. Для $L \sim r$, феноменологически учитывая неоднородное уширение, температурные эффекты, полагаем $f_d \sim 1-10^{-1}$.

Разложение по $\mathcal{Z}$ дает следующее значение для квадратичной нелинейности:

$$NE_{p\to p} = -f_2 \frac{m\omega_p^2\beta_0}{e\omega^3 r}|\mathcal{Z}(\chi,\tau)|\mathcal{Z}(\chi,\tau), \qquad (18)$$

где константа $f_2 \sim 0.1$ (см. детали в [11]). Нелинейности, отвечающие более высоким степеням $\mathcal{Z}$, здесь не учитываем.

Электрическое поле, действующее на плазму, суть сумма полей (16), (17) и (18). Аналогичным образом находим медленную огибающую z компоненты электрического поля, действующую на ДУС:

$$E_d(\chi,\tau) = \frac{\omega_p^2 m}{e}\left[\frac{f_p\beta_0\mathcal{Z}(\chi,\tau)}{\omega} + \frac{n_d}{n_0}\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle\,\rho_{12}\right], \qquad (19)$$

где положительная константа $f_p \sim 1-10^{-1}$. Вкладом нелинейного самодействия плазмы в это поле можно пренебречь. Как правило, $n_d \ll n_0$, поэтому вторым членом в правой части (19) пренебрегаем.

Рассматриваем временной интервал, на котором релаксацией ДУС можно пренебречь. Подставив эти выражения для полей в уравнение (9) и в уравнения Блоха для ДУС [12], в рамках приближения медленных огибающих получаем систему уравнений

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho_{21} = i\mu\rho_{21} - iZ\rho_0, \qquad (20)$$

$$\frac{\partial}{\partial\tau}\rho_0 = i\left(Z\rho_{21}^* - Z^*\rho_{21}\right), \qquad (21)$$

$$\frac{d}{d\chi}Z(\chi,\tau) + i\left(\frac{k}{q} - 1 + \nu\right)Z(\chi,\tau) = \\ = -i\alpha_1\alpha_2\rho_{21}(\chi,\tau) - \Gamma Z(\chi,\tau) + i\alpha_3\alpha_1^{-1}|Z|Z, \qquad (22)$$

где $Z = \alpha_1\mathcal{Z}$, ω_d – частота перехода, коэффициент Γ феноменологически учитывает линейные по Z потери и

$$\alpha_1 = f_p\nu\frac{m\beta_0\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle}{2\hbar}, \quad \alpha_2 = f_d\nu\frac{\xi\omega\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle}{\sqrt{1-\nu}\beta_0}, \\ \alpha_3 = f_2\frac{m\nu\beta_0}{e\omega r}, \quad \nu = \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad \mu = \frac{\omega_d}{\omega} - 1. \qquad (23)$$

Здесь $\xi = n_d/n_0$ и учтено, что модуль волнового вектора k определяется (без учета потерь) дисперсионным соотношением $|k| = \omega\sqrt{1-\nu}\beta_0^{-1}$.

Полученная в итоге система уравнений (20)–(22) без учета потерь и нелинейного самодействия плазмы эквивалентна уравнениям Максвелла – Блоха, описывающим явление самоиндуцированной прозрачности света в ДУС. Солитонные решения этой системы описывают связанное состояние электромагнитного поля и среды, распространяющееся в виде локализованного волнового пакета, устойчивого к малым возмущением [12]. Для солитонов характерно большее время жизни в поглощающей среде, чем для плоской волны. Возможно, этим объясняется удлинение длины пробега плазмона в присутствии поглощающей ДУС, обнаруженное экспериментально в [7].

Для $\Gamma = \alpha_3 = 0$ простейшее солитонное решение имеет вид [12]

$$|Z(\chi,\tau)| = \frac{2\eta_1}{\cosh\left[\eta_1\left(\tau - \chi v^{-1}\right)\right]}, \qquad (24)$$

где η_1 – действительное число и $v = (\eta_1^2 + \mu^2)^{-1}$ – групповая скорость солитона. Характерный масштаб, на котором проявляются нелинейные эффекты, определяется коэффициентом $\alpha_0(\nu) = \sqrt{\alpha_1(\nu)\alpha_2(\nu)}$. Для $\omega_p = 10^{15}\,\text{с}^{-1}$, $|\langle 2|\,\mathbf{z}\,|1\rangle| \sim 10^{-10}$ м оценка дает временной масштаб перехода от линейного режима к нелинейному $t_n = (\omega\alpha_0)^{-1} \sim (1-\nu)^{1/4}/(10^2\omega\sqrt{\xi}\nu^{-1})$. При $\nu \to 1$ t_n уменьшается, то есть в этой области солитоны формируются быстрее.

Из оценки групповой скорости солитона v_g с длительностью $\eta_1^{-1} = t_s\omega$,

$$\frac{\beta_0}{v_g} \approx 1 + \frac{10^4\nu^2\xi t_s^2\omega^2}{\sqrt{1-\nu}\left(1+\mu^2 t_s^2\omega^2\right)}, \qquad (25)$$

следует, в частности, что при $\nu \to 1$ скорость солитона уменьшается.

Возбуждение солитоноподобных пакетов вблизи концов стержня может быть выполнено с помощью ближнепольного микроскопа. Экспериментально нелинейные эффекты в такой усиливающей среде могут наблюдаться и при возбуждении плазмонных осцилляций вдоль всего стержня внешним слабым электрическим полем. Для $\Gamma > 0$ в поглощающей среде, то есть в отсутствие начальной заселенности верхнего уровня, солитон (26) диссипирует. Численный анализ системы (20)–(22) показал, что учет квадратичного самодействия плазмы приводит к существенному подавлению затухания и увеличению времени жизни солитона, см. рис.1, на котором показана форма солитона с учетом квадратичного самодействия и без него.

В усиливающей среде возможно развитие модуляционной неустойчивости, которая приводит к образованию квазистационарной периодической решетки плазмон-поляритонных импульсов. Известно, что эта неустойчивость приводит к удвоению периода. Поэтому следует ожидать возникновения периодических решеток в распределении плазмонов при их возбуждении вдоль всего стержня внешним затравочным слабым полем. Этот процесс на начальной ста-

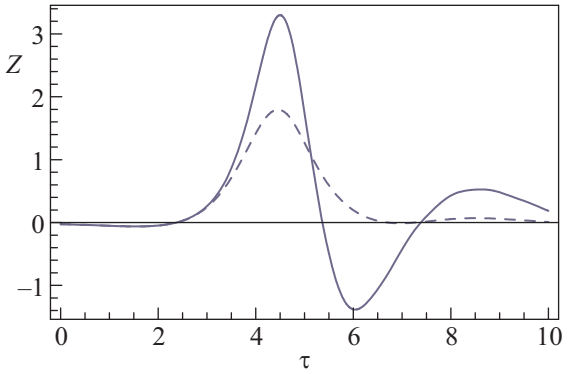

Рис.1. Зависимость $Z(\chi_0, \tau + \chi_0)$ от τ для $\Gamma = 0.5\alpha_0^2$, $\chi_0 = 5\alpha_0$. График для $\alpha_3 = 0.1\alpha_1\alpha_0^2$ показан сплошной линией и для $\alpha_3 = 0$ – пунктирной, τ дано в единицах α_0, $\mu = 0$

дии и для слабых возмущений может быть смоделирован периодическим однофазным решением со слабо изменяющимися параметрами [13], которое описывает периодическое пространственно модулированное смещение электронного облака – деформирующуюся с временем стоячую волну. Численное решение системы (20)–(22) показало, что при слабомодулированном начальном смещении электронов по оси z развивается модуляционная неустойчивость, приводящая к формированию периодической цепочки импульсов с конечной амплитудой, см. рис.2.

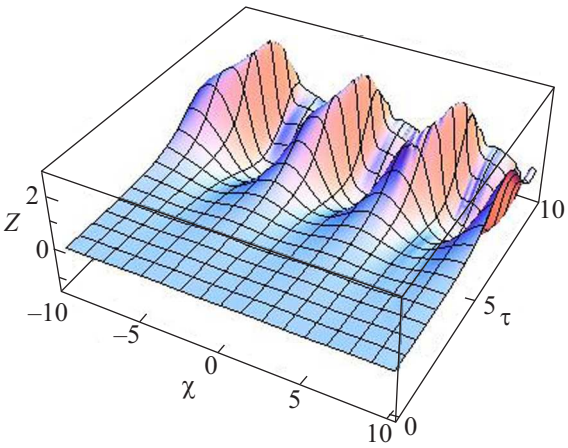

Рис.2. Образование периодической структуры сдвига электронного облака $Z(\chi, \chi + \tau)$ вследствие развития модуляционной неустойчивости. Численное решение системы (20)–(22) для $\Gamma = \alpha_0^2$, $\alpha_3 = 0.1\alpha_1\alpha_0^2$ и $Z(\tau = 0) = 0.01\sin(\chi)$; τ и χ даны в единицах α_0, $\mu = 0$

Локализованные плазмоны образуют одномерную решетку и генерируют когерентное излучение как пакеты осциллирующих диполей. Поэтому существование плазмонных решеток можно экспериментально подтвердить селективной угловой направленностью излучения плазмонов. Начальное положение максимумов $\boldsymbol{\zeta}(x, 0)$ может быть задано положением максимумов амплитуды затравочного слабого электромагнитного поля, падающего под углом к оси x. Пусть на длине L_m стержня возникло N_p периодически расположенных максимумов. Условие когерентности определяет угол между направлением с максимальной интенсивностью излучения диполей и осью стержня:

$$\theta = \arccos \frac{\pi N_p}{L_m k_p}, \tag{26}$$

где k_p – длина волнового вектора излучаемой диполями волны света. Для длины стрежня, меньшей π/k_p, излучение плазмонных диполей будет практически однородно по углу θ. Экспериментально существование плазмонных решеток в наностержнях обнаружено в работе [14].

Результаты данной работы могут применяться для анализа условий когерентного переноса возбуждения в молекулярной среде с наностержнями. Плазмон-поляритонные импульсы могут возникать при распаде начального возмущения электронного облака, вызванного кратковременным действием постоянного электрического поля. При этом распространение плазмонных импульсов и их аннигиляция (в присутствии релаксации) должны сопровождаться излучением электромагнитной волны. Такая среда может быть перспективной для создания “спазера” [5], генерирующего когерентное излучение.

Работа выполнена по междисциплинарному интеграционному проекту СО РАН N17 и при поддержке Программы фундаментальных исследований N8 Отделения физических наук РАН.

1. F. Calvayrac, P.-G. Reinhard, E. Suraud, and C. A. Ullrich, Phys. Rep. **337**, 493 (2000).
2. N. Félidj, J. Aubard, G. Lévi et al., Phys. Rev. B **65**, 075419 (2002).
3. O. G. Tovmachenko, C. Graf, D. J. van den Heuvel et al., Adv. Mater. (Weinheim, Ger.) **18**, 91 (2006).
4. B. P. Rand, P. Peumans, and S. R. Forrest, J. Appl. Phys. **96**, 7519 (2004).
5. D. J. Bergman and M. I. Stockman, Phys. Rev. Lett. **90**, 027402 (2003).
6. M. A. Noginov, G. Zhu, M. Mayy et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 226806 (2008).
7. G. Zhu, M. Mayy, M. Bahoura et al., Optics Express **16**, 15576 (2008).

8. Y. Liu, G. Bartal, D. A. Genov, and X. Zhang, Phys. Rev. Lett. **99**, 153901 (2007).
9. E. V. Kazantseva and A. I. Maimistov, Phys. Rev. A **79**, 033812 (2009).
10. S. Lundqvist, *Theory of the inhomogeneous electron gas*, Eds. S. Lundqvist and N. H. March, Plenum, New York, 1983, p. 149.
11. P. B. Parks, T. E. Cowan, R. B. Stephens, and E. M. Campbell, Phys. Rev. A **63**, 063203 (2001).
12. Дж. Л. Лэм, *Введение в теорию солитонов*, М. Мир, 1990.
13. A. A. Zabolotskii, Phys. Rev. E **56** 4813 (1997).
14. Z. Li, F. Hao, Y. Huang et al., Nano Lett. **9**, 4383 (2009).