

Нелинейная наноантенна с переключающейся направленностью рассеяния

Н. С. Лапшина*¹⁾, Р. Е. Носков*, Ю. С. Кившарь*⁺

* Национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики,
С.-Петербург, Россия

⁺ Nonlinear Physics Centre, Research School of Physics and Engineering, Australian National University, Canberra, Australia

Поступила в редакцию 9 октября 2012 г.

В работе предложена новая концепция нелинейной плазмонной наноантенны с автоперестраиваемой индикатрисой рассеяния. Показано, что развитие модуляционной неустойчивости в наноантенне, состоящей из двух идентичных нелинейных металлических наночастиц сферической формы, приводит к динамическому обмену энергией между собственными модами нанодимера, который сопровождается периодическим вращением и переключением индикатрисы рассеяния. Такая наноантенна обладает широким сектором сканирования, относительно низким рабочим порогом и коротким временем отклика, что делает ее привлекательной для использования в нанофотонных и биологических приложениях.

1. Введение. В современной литературе наноантеннами называют устройства для преобразования угловых и частотных характеристик оптического излучения на масштабах, много меньших оптической длины волны. Исследование наноантенн представляет собой быстро развивающуюся область современной оптики, что обусловлено большим количеством потенциальных приложений, включающих тонкопленочные солнечные батареи, химические и биологические сенсоры, устройства для сверхбыстрой оптической обработки информации и многие другие [1–3]. Для большинства практических приложений важным фактором является возможность активного контроля над диаграммой направленности излучения (рассеяния) наноантенны. Однако принцип работы большинства наноантенн основан на использовании только одной моды, обеспечивающей лучшие направленность либо фактор Парселла [4, 5]. Тем не менее недавно были предложены механизмы перестройки направленности излучения (рассеяния) за счет переключения между различными модовыми режимами при вариации частоты в наноантеннах с нарушенной геометрической или материальной симметрией [6, 7], а также при вариации интенсивности излучения в наноантеннах с нелинейными компонентами [8–14].

В настоящей работе предложена новая концепция активного динамического контроля направленности наноантенны, основанная на использовании модуляционной неустойчивости (МН). Показано, что развитие МН в нанодимере, состоящем из двух серебряных наночастиц сферической формы, может приводить к динамическому обмену энергией между собственными

модами системы, который сопровождается периодическим вращением индикатрисы рассеяния, подобно классическим фазированным антенным решеткам [15].

2. Теоретическая модель нелинейной плазмонной наноантенны. Рассмотрим наноантенну, состоящую из двух идентичных наночастиц сферической формы, расположенных близко друг к другу и помещенных в кварцевую матрицу с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_h = 2.15$. Пусть радиус частиц a равен 10 нм, а расстояние между центрами частиц d составляет 30 нм. При выполнении соотношения $a/d \leq 1/3$ отклик частиц можно описывать в рамках дипольного приближения [16]. Полагая, что наночастицы сделаны из серебра и обладают нелинейным откликом керровского типа, их диэлектрическую проницаемость можно представить в виде $\epsilon_{Ag}^{NL} = \epsilon_{Ag}^L + \chi^{(3)} |\mathbf{E}_{1,2}^{(in)}|^2$. Здесь линейное слагаемое описывается формулой Друде: $\epsilon_{Ag}^L = \epsilon_\infty - \omega_p^2 / [\omega(\omega - i\nu)]$, где $\epsilon_\infty = 4.96$, $\hbar\omega_p = 9.54$ эВ, $\hbar\nu = 0.055$ эВ [17], $\chi^{(3)}$ – кубическая восприимчивость, а $\mathbf{E}_{1,2}^{(in)}$ – локальные поля внутри частиц.

Вообще говоря, оптическая кубическая восприимчивость металлических наночастиц зависит от типа металла, размера частиц, частоты и длительности лазерного облучения, а также от некоторых других факторов [18]. В частности, аналитическая квантовая модель, развитая в работах [19, 20] и подтвержденная позже численным моделированием [21], показала, что для серебряных шариков с радиусом 10 нм при возбуждении на частотах вблизи частоты поверхностного плазмонного резонанса кубическая восприимчивость имеет чисто действительный характер и

¹⁾ e-mail: n.lapshina@phoi.ifmo.ru

равна $\chi^{(3)} \simeq 3 \cdot 10^{-9}$ ед. СГС. Это намного больше кубической восприимчивости кварца ($\sim 10^{-15}$ ед. СГС [22]). Поэтому в дальнейшем мы будем ею пренебрегать.

В настоящей работе мы ставим своей целью изучить динамическую мутацию индикатрисы рассеяния такой нелинейной димерной наноплазмы в условиях развития модуляционной неустойчивости.

3. Основные уравнения. Рассмотрим падение на димер плоской электромагнитной волны с частотой, близкой к частоте поверхностного плазмонного резонанса отдельной частицы, под произвольным углом θ (рис. 1). В силу того что каждая части-

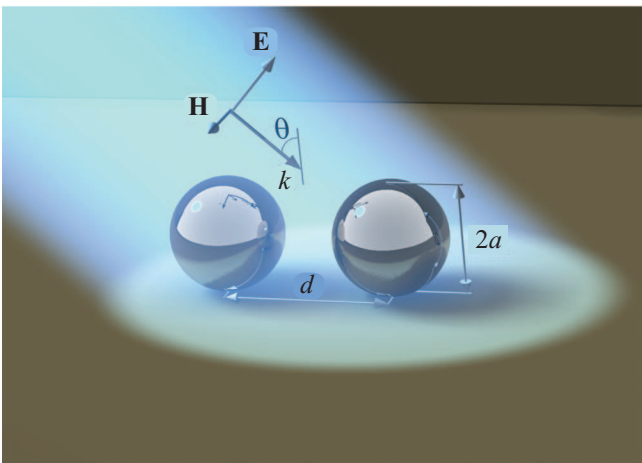


Рис. 1. Схематическое изображение нелинейного металлического нанодимера, возбуждаемого падающим излучением

ца представляет собой резонансно возбуждаемый нелинейный осциллятор с относительно медленным по сравнению с периодом колебаний света инерционным откликом, динамический отклик системы можно характеризовать в терминах медленных амплитуд поляризаций каждого шарика $\mathbf{P}_{1,2}$.

Для того чтобы получить систему связанных уравнений для медленных амплитуд поляризаций, воспользуемся недавно предложенной моделью, применявшейся для изучения локализованных мод в цепочках металлических наночастиц [23]. В случае, когда внешнее электрическое поле $E^{(ex)}$ поляризовано под некоторым углом θ к оси димера, система связанных уравнений для медленно меняющихся амплитуд дипольных моментов частиц принимает вид

$$\begin{aligned} -i \frac{dP_{1,2}^{\parallel}}{d\tau} + (\Omega - i\gamma + |\mathbf{P}_{1,2}|^2) P_{1,2}^{\parallel} + G^{\parallel} P_{2,1}^{\parallel} &= E_{1,2} \cos \theta, \\ -i \frac{dP_{1,2}^{\perp}}{d\tau} + (\Omega - i\gamma + |\mathbf{P}_{1,2}|^2) P_{1,2}^{\perp} + G^{\perp} P_{2,1}^{\perp} &= E_{1,2} \sin \theta, \end{aligned} \quad (1)$$

где

$$\begin{aligned} P_{1,2}^{\parallel,\perp} &= \frac{\sqrt{\chi^{(3)}} P_{1,2}^{\parallel,\perp}}{\sqrt{2(\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h)\varepsilon_h a^3}}, \\ E_{1,2} &= \frac{-3\varepsilon_h \sqrt{\chi^{(3)}} E_{1,2}^{(ex)}}{\sqrt{8(\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h)^3}} \end{aligned}$$

есть безразмерные медленно меняющиеся амплитуды дипольных моментов частиц и внешнего электрического поля, индексы “ \parallel ” и “ \perp ” обозначают продольную и поперечную по отношению к оси димера поляризации, коэффициенты

$$G^{\parallel} = \frac{3\varepsilon_h (a/d)^3}{\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h} (ik_0 d + 1) \exp(-ik_0 d)$$

и

$$G^{\perp} = \frac{3\varepsilon_h (a/d)^3}{2(\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h)} [(k_0 d)^2 - ik_0 d - 1] \exp(-ik_0 d)$$

отвечают за диполь-дипольное взаимодействие, параметр $\gamma = \nu/(2\omega_0) + (k_0 a)^3 \varepsilon_h / (\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h)$ описывает тепловые и радиационные потери энергии, $\omega_0 = \omega_p / (\varepsilon_{\infty} + 2\varepsilon_h)^{1/2}$ – частота поверхностного плазмонного резонанса отдельной частицы, $k_0 = \omega_0 / c \sqrt{\varepsilon_h}$, $\Omega = (\omega - \omega_0) / \omega_0$ и $\tau = \omega_0 t$. Для выбранной конфигурации $\hbar\omega_0 = 3.14$ эВ. Нелинейное слагаемое $|\mathbf{P}_{1,2}|^2 = |P_{1,2}^{\parallel}|^2 + |P_{1,2}^{\perp}|^2$ появляется после выражения $|\mathbf{E}_{1,2}^{(in)}|^2$ через $|\mathbf{P}_{1,2}|^2$ [23]. Малость размера димера по сравнению с длиной волны света дает право считать $E_1 = E_2 = E$. Система уравнений (1) описывает динамический отклик металлического нанодимера, возбуждаемого плоской волной на частоте $\omega \sim \omega_0$.

Стационарное решение этой системы отвечает равным дипольным моментам частиц ($P_{1,2}^{\parallel} = P_0^{\parallel}$ и $P_{1,2}^{\perp} = P_0^{\perp}$), и может быть представлено в виде

$$\begin{aligned} (-i\gamma + \Omega + G^{\parallel} + |P_0|^2) P_0^{\parallel} &= E_0 \cos \theta, \\ (-i\gamma + \Omega + G^{\perp} + |P_0|^2) P_0^{\perp} &= E_0 \sin \theta, \end{aligned} \quad (2)$$

где $|P_0|^2 = |P_0^{\parallel}|^2 + |P_0^{\perp}|^2$, E_0 – стационарная амплитуда внешнего поля. В скалярном случае, т.е. при $\theta = 0$ и $\theta = \pi/2$, эта система уравнений имеет бистабильное решение для $\Omega < -\text{Re}G^{\parallel,\perp} - \sqrt{3}|\gamma - \text{Im}G^{\parallel,\perp}|$ соответственно. В силу разного характера взаимодействия диполей в продольном и поперечном направлениях пороговые частоты, определяющие возникновение зон бистабильности, при ориентации поля вдоль и поперек оси димера различны. Поэтому в векторном случае, когда $\theta \neq \{0, \pi/2\}$, очевидно, может возникнуть зона мультистабильности.

Рассмотрим теперь вопрос устойчивости однородного стационарного решения (2) по отношению к малым возмущениям, взятым в виде собственных антисимметричных продольной и поперечной мод димера. Стандартная процедура линеализации [24] дает следующее выражение для продольного и поперечного инкрементов:

$$\lambda_{\parallel,\perp} = -\text{Im}G^{\parallel,\perp} - \gamma + \left[|P_0^{\parallel,\perp}|^4 - \left(2|P_0^{\parallel,\perp}|^2 + \Omega - \text{Re}G^{\parallel,\perp} \right)^2 \right]^{1/2}.$$

Стационарное состояние (2) становится неустойчивыми по отношению к малому возмущению в виде асимметричной продольной или поперечной моды при $\lambda_{\parallel,\perp}(\Omega, E_0^2) > 0$. Таким образом, условия $\lambda_{\parallel,\perp} = 0$ определяют границы областей продольной и поперечной МН на плоскости параметров Ω и E_0^2 , показанные на рис. 2. Отметим, что векторная поста-

ви мультистабильного решения, за исключением самой нижней, оказались модуляционно неустойчивыми. Последующая эволюция поляризуемостей шариков при попадании в области МН будет определяться непосредственно численным моделированием системы (1).

4. Результаты численного моделирования.

Численное моделирование системы (1) было проведено для двух случаев: $\theta = 0$ и $\theta = \pi/6$. Внешнее поле E принималось в виде функции времени, медленно нарастающей до значения насыщения E_{sat} , которое отвечает зоне МН.

Один из сценариев развития МН для $\theta = 0$ был рассмотрен в работе [14]. В ней было показано, что МН может приводить к периодическому обмену энергией между симметричной и антисимметричной продольными модами и, как следствие, вызывать периодическое вращение индикатрисы рассеяния димера. В терминах фазовой плоскости этот случай отвечает бифуркации Андронова–Хопфа [24].

Здесь мы рассмотрим последовательное возникновение бифуркаций Андронова–Хопфа и удвоения периода. На рис. 3 представлены временные реализации модулей поляризаций частиц и соответствующая фазовая плоскость для этого случая. Поляризации частиц совпадают, пока E меньше порога зоны МН, что соответствует состоянию равновесия типа “фокус” или возбуждению одной симметричной продольной моды. Когда поле E достигает области МН, данное состояние равновесия становится неустойчивым и на фазовой плоскости возникают два предельных цикла с удвоенным периодом (см. рис. 3b).

С физической точки зрения МН приводит к фазовой рассинхронизации между дипольными моментами частиц и внешним электрическим полем. Она сопровождается модуляцией полного сечения рассеяния, а также периодическими вариациями индикатрисы рассеяния (см. рис. 4a–c соответственно). В частности, бифуркация Андронова–Хопфа приводит к вращению индикатрисы рассеяния. В свою очередь, бифуркация удвоения периода обуславливает возникновение быстрых переключений индикатрисы рассеяния от рассеяния вперед к рассеянию назад в дополнение к периодическому вращению. Заметим, что время переключения примерно равно 1 фс, период вращения составляет 50 фс, отношение максимального значения сечения рассеяния к минимальному равно 47, а ширина сектора сканирования достигает 40°. Эта модуляция намного быстрее, чем описанная ранее для плазмонных антенн с нелинейной нагрузкой [8, 11].

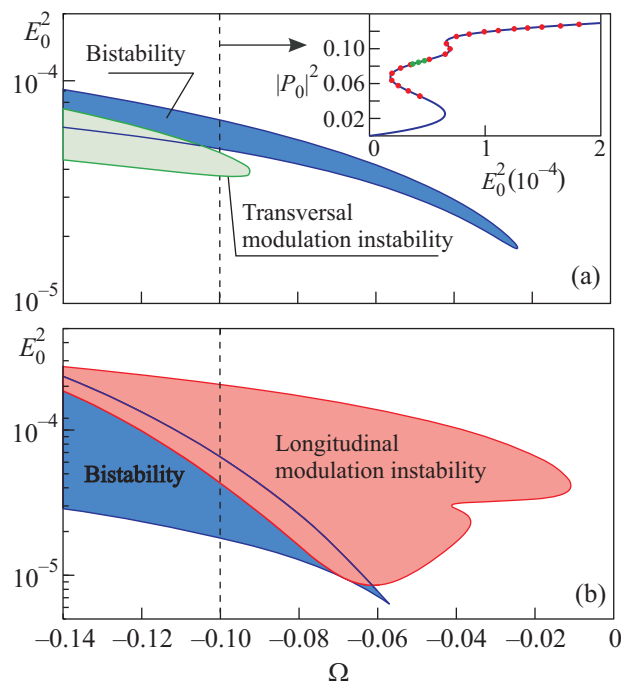


Рис. 2. (Цветной онлайн) Бифуркационные диаграммы на плоскости параметров E_0^2 и $\Omega = (\omega - \omega_0)/\omega_0$ с зонами бистабильности, а также поперечной (a) и продольной (b) модуляционной неустойчивости. Вставка – зависимость квадрата модуля поляризации частиц $|P_0|^2$ от E_0^2 при $\Omega = -0.1$. Красными точками отмечена область продольной модуляционной неустойчивости, зелеными – поперечной. Рисунки получены при $\theta = \pi/6$

новка задачи действительно привела к образованию зоны мультистабильности на стационарном решении $|P_0|^2(|E_0|^2)$ (см. вставку к рис. 2a). Однако все вет-

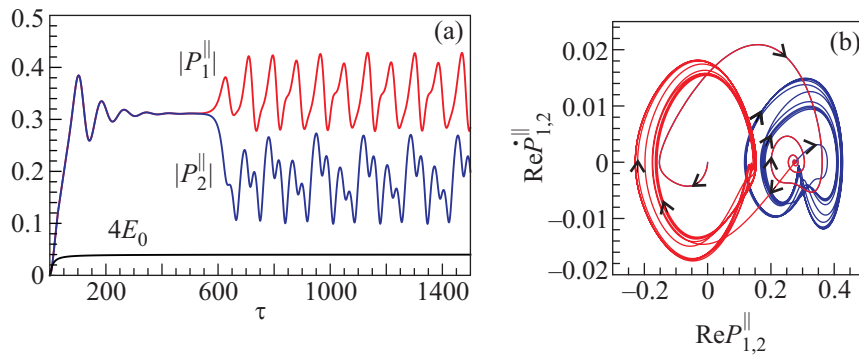


Рис. 3. (а) – Зависимости $|P_1^{\parallel}|$ и $|P_2^{\parallel}|$ от времени, полученные при численном моделировании системы (1), когда E достигает порога неустойчивости и пересекает его ($\theta = 0$, $\Omega = -0.1$, $|E_{\text{sat}}|^2 = 10^{-4}$). (б) – Фазовая плоскость, соответствующая реализации на рис. а

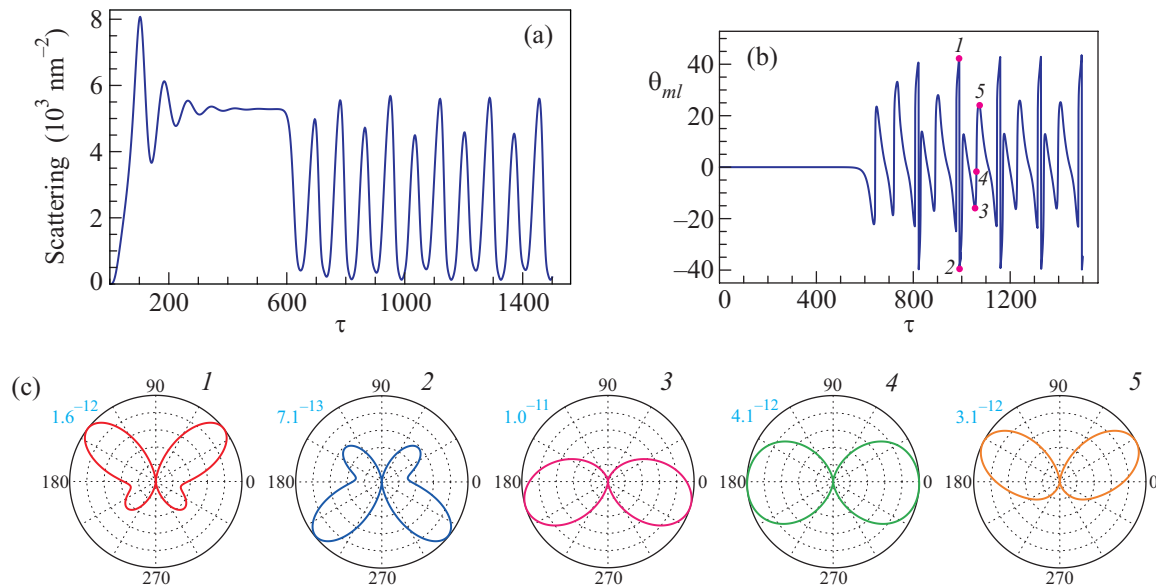


Рис. 4. (Цветной онлайн) Эволюция во времени сечения рассеяния (а) и полярного (азимутального) угла Θ_{ml} , соответствующего главному лепестку индикатрисы рассеяния (б), при $\theta = 0$. (с) – Мгновенные снимки индикатрисы рассеяния в последовательные моменты времени, отмеченные цифрами 1–5 на рис. б. В данном случае E - и H -плоскости совпадают. Голубые цифры обозначают интенсивность (в Вт), отвечающую пику индикатрисы рассеяния для данного момента времени

На рис. 5 и 6 изображено развитие МН при $\theta = \pi/6$. В этом случае МН вызывает обмен энергией между тремя модами: симметричными продольной и поперечной, а также асимметричной продольной. При этом время развития МН существенно меньше, чем при $\theta = 0$. Качественно динамика компонент дипольных моментов на фазовой плоскости аналогична предыдущему случаю: последовательно возникают бифуркации Андронова–Хопфа и удвоения периода. Однако теперь индикатриса рассеяния уже не вращается в определенном секторе, а совершает периодические мутации. Период этих осцилляций составляет 35 фс, а отношение максимального значения сечения рассеяния к минимальному равно 27.

Заметим, что интенсивность поля насыщения для обоих случаев составляет около 21.6 МВт/см^2 . Такие большие поля неизбежно приведут к тепловому разрушению димера, если не ограничивать длительности облучения. Чтобы оценить максимально допустимую длительность импульса накачки, воспользуемся экспериментально полученной величиной пороговой плотности энергии абляции серебряных наночастиц в кварцевой матрице. Она составляет 3.96 Дж/см^2 при пикосекундном режиме облучения [25]. Принимая во внимание усиление электрического поля внутри серебряной наночастицы благодаря поверхностному плазменному резонансу, мы получаем максимальную длительность импульса порядка 0.5 нс, что намного

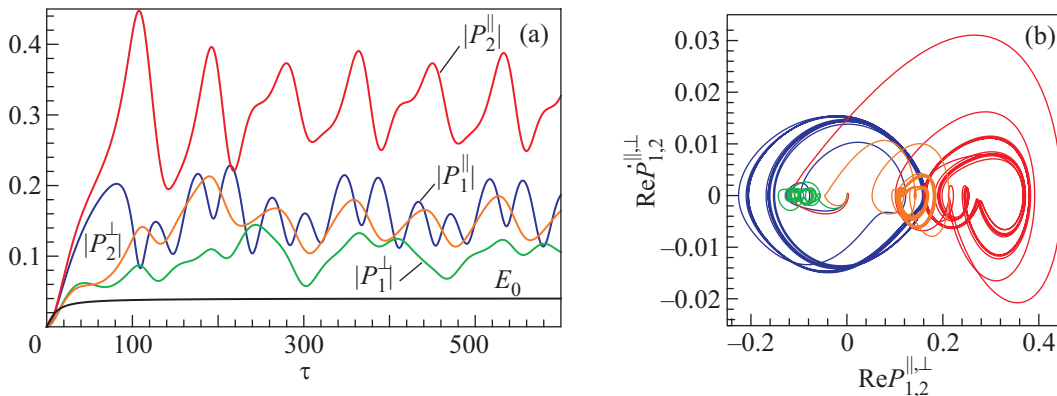


Рис. 5. (а) – Зависимости компонент поляризаций частиц $|P_1^{\parallel,\perp}|^2$ и $|P_2^{\parallel,\perp}|^2$ от времени, полученные при $\theta = \pi/6$, $\Omega = -0.1$ и $|E_{\text{sat}}|^2 = 1.02 \cdot 10^{-4}$. (б) – Фазовая плоскость, соответствующая реализации на рис. а

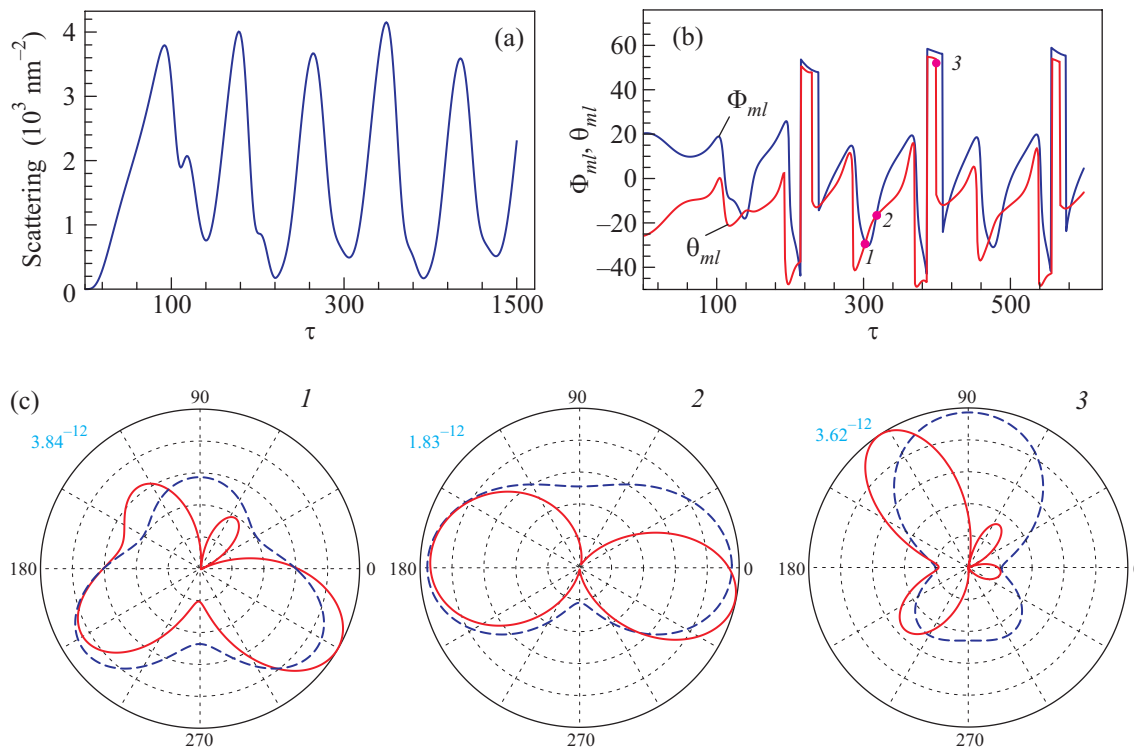


Рис. 6. (Цветной онлайн) Эволюция во времени сечения рассеяния (а) и азимутального (Φ_{ml}) и полярного (Θ_{ml}) углов, соответствующих главному лепестку индикатрисы рассеяния (б). (с) – Мгновенные снимки индикатрисы рассеяния в последовательные моменты времени, отмеченные цифрами 1–3 на рис. б. Синим и красным показаны H - и E -плоскости, соответственно. Голубые цифры обозначают интенсивность (в Вт) отвечающую пику индикатрисы рассеяния для данного момента времени

больше характерного времени развития МН. Таким образом, все рассмотренные в настоящей работе эффекты доступны для наблюдения в экспериментальных условиях.

5. Заключение. Итак, в работе исследована нелинейная плазмонная наноантенна с автоперестраиваемой индикатрисой рассеяния. Показано, что модуляционная неустойчивость в димере, состоящем из двух идентичных серебряных наночастиц, может

приводить к динамическому обмену энергией между собственными модами системы. Это обуславливает периодические вариации индикатрисы рассеяния. Такая наноантенна может работать при относительно низких интенсивностях света, обладает широким сектором сканирования и очень коротким характерным временем отклика, позволяющим осуществлять сверхбыструю модуляцию рассеянного поля. Наноантенны данного типа могут найти применение в сис-

темах динамического позиционирования наноцелей (молекулы, протеины, вирусы), а также в качестве компонент активных нанофотонных устройств.

Исследования выполнены в Санкт-Петербургском национальном исследовательском университете информационных технологий, механики и оптики при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (соглашения 14.В37.21.0942, 14.В37.21.0307, государственный контракт 11.519.11.2037, договор 11.Г34.31.0020) и Австралийского совета по научным исследованиям.

1. P. Bharadwaj, B. Deutsch, and L. Novotny, *Adv. Opt. Photon.* **1**, 438 (2009).
2. L. Novotny and N. van Hulst, *Nature Photon.* **5**, 83 (2011).
3. P. Biagioni, J. Huang, and B. Hecht, *Rep. Prog. Phys.* **75**, 024402 (2012).
4. A. Devilez, B. Stout, and N. Bonod, *ACS Nano* **4**, 3390 (2010).
5. A. E. Krasnok, A. E. Miroschnichenko, P. A. Belov, and Y. S. Kivshar, *Pis'ma v ZhETF* **94**, 635 (2011) [*JETP Lett.* **94**, 593 (2011)].
6. N. Bonod, A. Devilez, B. Rolly et al., *Phys. Rev. B* **82**, 115429 (2010).
7. T. Shegai, S. Chen, V. Miljković et al., *Nature Commun.* **2**, 481 (2011).
8. J. Berthelot, A. Bouhelier, C. Huang et al., *Nano Lett.* **9**, 3914 (2009).
9. P.-Y. Chen and A. Alù, *Phys. Rev. B* **82**, 235405 (2010).
10. N. Large, M. Abb, J. Aizpurua, and O. L. Muskens, *Nano Lett.* **10**, 1741 (2010).
11. M. Abb, P. Albella, J. Aizpurua, and O. L. Muskens, *Nano Lett.* **11**, 2457 (2011).
12. I. S. Maksymov, A. E. Miroschnichenko, and Y. S. Kivshar, *Opt. Express* **20**, 8929 (2012).
13. R. E. Noskov, A. E. Krasnok, and Y. S. Kivshar, *New J. Phys.* **14**, 093005 (2012).
14. N. Lapshina, R. Noskov, and Y. Kivshar, *Opt. Lett.* **37**, 3921 (2012).
15. T. Jeffrey, *Phased-Array Radar Design*, SciTech Publishing, 2009.
16. I. Romero, J. Aizpurua, G. W. Bryant, and F. J. G. de Abajo, *Opt. Express* **14**, 9988 (2006).
17. P. B. Johnson and R. W. Christy, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972).
18. B. Palpant, in *Non-Linear Optical Properties of Matter* (ed. by M. G. Papadopoulos, A. J. Sadlej, and J. Leszczynski), Springer, Dordrecht, 2006, p. 461.
19. S. G. Rautian, *ZhETF* **112**, 836 (1997) [*JETP* **85**, 451 (1997)].
20. V. P. Drachev, A. K. Buin, H. Nakotte, and V. M. Shalaev, *Nano Lett.* **4**, 1535 (2004).
21. A. A. Govyadinov, G. Y. Panasyuk, J. C. Schotland, and V. A. Markel, *Phys. Rev. B* **84**, 155461 (2011).
22. M. J. Weber, *Handbook of Optical Materials*, CRC Press, 2003.
23. R. E. Noskov, P. A. Belov, and Y. S. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 093901 (2012).
24. M. I. Rabinovich and D. I. Trubetskov, *Oscillations and Waves in Linear and Nonlinear Systems*, Kluwer, Dordrecht, 1989.
25. C. Torres-Torres, N. Peréa-López, J. A. Reyes-Esqueda et al., *Int. J. Nanomedicine* **5**, 925 (2010).