

Усиление локального электромагнитного поля над планарными “частицами” на поверхности полярного кристалла

Д. В. Казанцев⁺¹⁾, Е. А. Казанцева*

⁺Институт теоретической и экспериментальной физики, 117218 Москва, Россия

*Московский технологический университет МИРЭА, 107996 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 марта 2018 г.

На поверхности полярного кристалла SiC с помощью металлической непрозрачной маски были сформированы “частицы” открытой поверхности, с размерами отверстий в маске порядка длины фонов-поляритонной волны. При облучении образца электромагнитной волной ($\lambda = 10.68$ мкм) на частоте вблизи решеточного резонанса SiC обнаружено значительное увеличение амплитуды поля поверхностных фонов-поляритонных волн над такими “частицами” по сравнению с бесконечной открытой поверхностью SiC. Это явление, наблюдаемое нами в ИК-диапазоне, аналогично плазмонному резонансу на малых частицах металла в видимом диапазоне, однако пространственное разрешение использованного ASNOM (не хуже 30 нм на длине волны 10 мкм) делает полученное распределение поля в ИК-диапазоне более детальным. Карты распределения амплитуды и фазы локального поля над поверхностью SiC, полученные с помощью ASNOM, находятся в хорошем количественном согласии с расчетами конфигурации фонов-поляритонных волн, использующими функцию Грина.

DOI: 10.7868/S0370274X1808012X

Поляритонные явления привлекают внимание исследователей на протяжении последних нескольких десятилетий [1–5]. Отклик (смещение носителей заряда) в поляритон-активных средах на приложенное электромагнитное поле велик, вызванный этим вклад в поляризуемость среды значителен, так что для описания происходящего необходимо совместно решить уравнения Максвелла для поля и уравнения механического движения для заряженных частиц [6, 7]. Электромагнитный отклик системы свободных электронов в металле удовлетворительно описывается моделью Друде [8]. В больших объемах взаимодействие возбуждающего поля и отклика среды оказывается деструктивным с учетом задержки распространения волн, однако в частицах, небольших по сравнению с длиной волны, и вблизи таких частиц происходит, наоборот, многократное (на 6–7 порядков по амплитуде) усиление локального поля [4, 9, 10] по сравнению с полем возбуждающей электромагнитной волны. Явления усиления локального поля используются для повышения чувствительности оптического поглощения [11], флуоресценции [12], комбинационного рассеяния [13]. Между тем, частота плазмонного резонанса металлических (Ag, Au, Cu) наночастиц соответствует, как правило, видимой области длин волн. Представляется естественным по-

пытаться создать и исследовать аналогичные объекты для работы в ИК-диапазоне.

В полярных кристаллах диэлектрический отклик среды описывается²⁾ выражением

$$\varepsilon_{\text{lat}}(\omega) = \varepsilon(\infty) \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \right), \quad (1)$$

где параметры среды $\varepsilon(\infty)$, ω_L^2 , ω_T^2 и Γ известны из эксперимента [14]. Это выражение отличается лишь членом ω_T^2 от выражения, описывающего плазмонную диэлектрическую проницаемость в модели Друде. В остальном математическое описание плазмон-поляритонных и фонов-поляритонных явлений в твердых телах совпадает. В обоих случаях поляризуемость носителей заряда под действием внешнего поля и их вклад в окружающее их электромагнитное поле весьма велики. Характерные частоты, соответствующие решеточному резонансу $\omega_T - \omega_L$ полярных кристаллов (BN_{hex}: 828–1595 см⁻¹ [15], SiC_{4H}: 794–969 см⁻¹ [14], AlAs: 361–401 см⁻¹ [16], InSb: 179–190 см⁻¹ [16]), лежат в средней и дальней ИК-областях спектра.

Безапертурный сканирующий микроскоп ближнего оптического поля (ASNOM) [17, 18] позволя-

²⁾Предполагается, что концентрация свободных носителей в образце невелика, и диэлектрический отклик среды определяется лишь движением заряженных центров кристаллической решетки.

¹⁾e-mail: kaza@itep.ru

ет исследовать оптические явления на поверхности с пространственным разрешением до 1 нм [19], определяемым лишь радиусом острия сканирующей иглы (обычно 20–30 нм). В ИК-диапазоне это может соответствовать масштабу $\lambda/300$ или даже $\lambda/1000$ в единицах длины волн.

Нами были сформированы двумерные “малые частицы” на поверхности кристаллического SiC (см. рис. 1). Для этого перед напылением непрозрачной

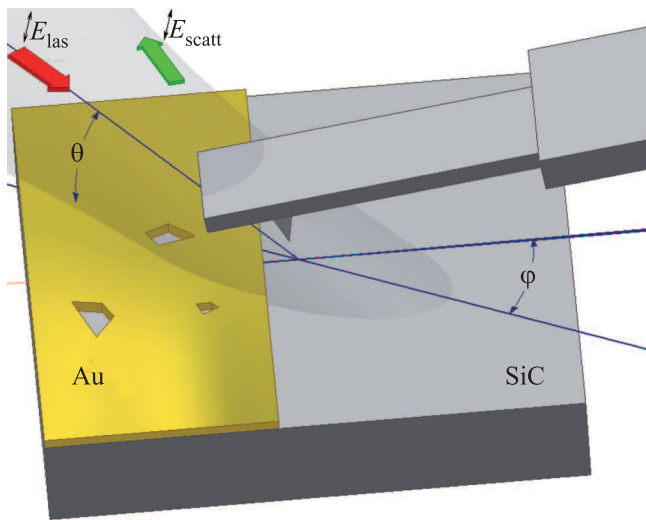


Рис. 1. (Цветной онлайн) Геометрия эксперимента. Образец кристаллического SiC покрыт металлической (Au) маской. Отверстия в маске формируют “микрочастицы” открытой поверхности SiC размером 1–10 мкм. E_{las} – амплитуда когерентной лазерной волны, возбуждающей фонон-поляритонные волны на поверхности образца. E_{scatt} – амплитуда волны, рассеянной иглой ASNOM под действием локального электромагнитного поля в точке ее расположения. Стрелками показана поляризация возбуждающей и рассеянной волн: вектор E в них ориентирован преимущественно нормально к поверхности. Рассеянная иглой ASNOM волна (E_{scatt}) собирается затем для гомодинного детектирования в интерферометре Майкельсона с модуляцией фазы опорного луча

металлической (Au) пленки на поверхность образца были насыпаны кристаллики соли, которые после напыления были смыты. В результате маска содержит открытые для возбуждающего излучения “озерца” поверхности SiC, размер которых составляет 1–10 мкм. В качестве источника эталонного сигнала мы оставили половину поверхности образца свободной от экранирующей маски. Отверстия в маске, открывающие оптический доступ к поверхности SiC, образуют таким образом малые двумерные “частицы” поверхности SiC, в фонон-поляритонном смысле

изолированные друг от друга. Согласно нашим вычислениям, длина затухания фонон-поляритонных волн на поверхности SiC под слоем металла (Au), составляет несколько микрометров.

Для облучения поверхности мы использовали перестраиваемый лазер $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$, рабочие частоты которого ($882\text{--}938\text{ см}^{-1}$) попадают в полосу остаточных лучей SiC, в которой возможно возбуждение поверхностных фонон-поляритонных волн. Луч возбуждающего лазера, прошедший через светоделитель в интерферометре Майкельсона, направлялся зеркальным объективом [20] на образец под скользящим углом $\theta = 30^\circ$. Рассеянное иглой излучение собиралось затем объективом обратно в интерферометр Майкельсона и вместе с опорным лазерным пучком попадало на фотодетектор для оптического гомодинамирования [21, 22]. С учетом нелинейности зависимости рассеянного иглой электромагнитного поля от зазора игла-поверхность, выделенную в фототоке компоненту $I_{\text{det}}^{(2\Omega)}$ на второй гармонике частоты Ω механических колебаний иглы, усредненную по всем фазам гомодинирующего луча [23], принято использовать как сигнал ASNOM, и его интерпретация в общем случае достаточно неоднозначна. Однако, как показано нами ранее [24], для случая измерения фонон-поляритонных волн на поверхности SiC сигнал $I_{\text{det}}^{(2\Omega)}$ просто пропорционален значению $E_{\text{loc}\perp}(\omega)$ нормальной компоненты локального поля \mathbf{E} в точке расположения иглы, с его амплитудой и фазой. Фокальное пятно объектива, фокусирующего исходно параллельный луч лазера на образец и собирающего затем рассеянный иглой свет в детектирующую систему, было сделано достаточно широким, чтобы можно было считать падающее на образец излучение бесконечной плоской волной. Качество волновых фронтов и распределение интенсивности в возбуждающем луче было перед началом эксперимента проверено [25] путем сканирования фокусом объектива вокруг зондирующей иглы ASNOM.

Полученные с помощью ASNOM карты распределения амплитуды и фазы собираемого сигнала приводятся на рис. 2. Видно, что локальное поле, регистрируемое над небольшим “озером” SiC в покрывающей образец маске, в 20 раз больше по амплитуде (т.е. в 400 раз по интенсивности), чем значение, регистрируемое над открытой поверхностью SiC в точке, достаточно удаленной от границы золотой маски, чтобы туда не доходила возбужденная краем маски [26] поверхностная фонон-поляритонная (SPhP) волна. На использованной нами линии лазера $\nu = 936\text{ см}^{-1}$ длина распространения поляритонной волны у SiC удовлетворительно мала, и можно убе-

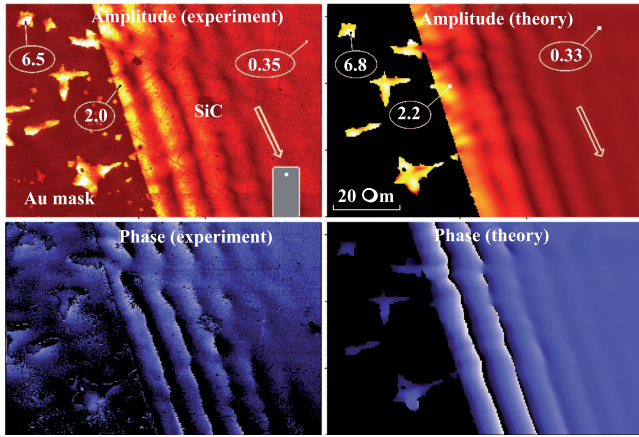


Рис. 2. (Цветной онлайн) Измеренные (слева) и вычисленные (справа) распределения амплитуды (вверху) и фазы (внизу) E_{\perp} – компоненты поля фоновой поляритонной волны, возбуждаемой на частоте $\nu = 936 \text{ см}^{-1}$ лучом лазера, падающим под углом $\theta = 30^\circ$ к плоскости образца в направлении, обозначенном на рисунке стрелкой. Кружками обведены значения амплитуды в отмеченных точках раstra

дительно указать на доступном нам растре сканирования $100 \times 100 \text{ мкм}$ точку, соответствующую бесконечной открытой поверхности SiC.

Для полу-аналитического описания наблюдаемых распределений амплитуды и фазы фоновых поляритонных возбуждений в сформированных нами “частицах” поверхности SiC, мы использовали [27] компьютерное интегрирование функций Грина [28, 29], вычисляя распространение элементарных волн лишь между точками, принадлежащими к одному открытому участку поверхности. Благодаря удачному стечению обстоятельств [27] (в первую очередь отсутствию отражений SPhP-волны от краев маски) метод дает хорошие результаты в нашем случае. Точную карту открытых участков поверхности SiC мы взяли из топографического изображения поверхности образца, полученного одновременно со сканированием сигнала ANSM. В качестве функции Грина мы использовали собственную функцию³⁾ однородной задачи – функцию Ханкеля $H_0(\Delta R_{xy} \cdot k_{xy}(\omega))$, подставив в качестве параметра $k_{xy}(\omega)$ собственное значение [7] однородной задачи – волнового уравнения, решенного для бесконечной открытой поверхности образца в отсутствие возбуждающего поля:

³⁾ Распределение поля в нормальном к поверхности направлении, описываемое множителями $e^{-z\sigma_z(\text{above})}$ или $e^{-z\sigma_z(\text{beneath})}$ в собственной функции задачи, нами для простоты записи было здесь опущено.

$$k_{xy}(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_v \varepsilon_{\text{lat}}(\omega)}{\varepsilon_v + \varepsilon_{\text{lat}}(\omega)}} \quad (2)$$

с частотной зависимостью проницаемости решетки (1), выраженной из экспериментально известных параметров [30, 31]: $\omega_T = 797 \text{ см}^{-1}$ [14], $\omega_L = 969 \text{ см}^{-1}$ [14], $\Gamma = 6 \text{ см}^{-1}$ [32], $\varepsilon(\infty) = 6.7$. Для диэлектрической постоянной воздуха над поверхностью образца тут использовано значение $\varepsilon_v \equiv 1$.

По поводу использованных нами методик измерений и расчетов конфигурации возбуждаемых поверхностных фоновых поляритонных волн рис. 2 позволяет заявить следующее:

(i) совпадение амплитуды и фазы наблюдаемого и вычисленного распределения поля SPhP волн позволяет предположить работоспособность и экспериментальной методики (подтверждает ранее установленный [24] факт пропорциональности измеряемого сигнала значению локального поля, с его амплитудой и фазой), и одновременно техники интегрирования функции Грина как метода предсказания распределения электромагнитного поля, возбуждаемого плоской волной на поверхности SiC в области частот поверхностных фоновых поляритонов (в полосе остаточных лучей кристалла);

(ii) ANSM, работающий в режиме оптического гомодинамирования света, рассеянного зондирующей иглой, обеспечивает высокую детальность изображения распределения полей (30–40 нм при характерной длине SPhP-волны 7–10 мкм), недостижимую при исследовании плазмонных колебаний;

(iii) зонд не вносит заметных искажений в исследуемые оптические колебания (что следует из совпадения измеряемых распределений поля с теоретическими вычислениями).

Это выгодно отличает использованный нами фоновых поляритонный образец от плазмонных поляритонных частиц (получение достоверной карты распределения полей над которыми затруднительно) и позволяет использовать фоновых поляритонные среды для моделирования плазмонных поляритонных структур с целью обстоятельного исследования механизмов поляритонных возбуждений в них под действием внешнего излучения.

На основании наблюдаемых и вычисленных распределений поля фоновых поляритонных возбуждений над поверхностью (рис. 2) можно утверждать следующее:

(i) амплитуда $E_{\text{loc}\perp}$ нормальной компоненты локального поля, возбуждаемого над открытым участком SiC, размер которого сравним с длиной волны, значительно превышает амплитуду поля, возбуждае-

мого падающей световой волной над бесконечной открытой поверхностью SiC;

(ii) амплитуда $E_{\text{loc}\perp}$ локального поля над малым по сравнению с длиной волны открытым участком SiC невелика, и усиление поля по сравнению с бесконечной открытой поверхностью отсутствует.

Возникновение резонанса при изменении размеров “двумерной частицы” поляритонной среды, как и в плазмонике, легко объясняется на языке интегрирования функции Грина. Отклик элемента среды определяется воздействующим непосредственно на него локальным полем, которое состоит из суммы двух компонент – поля возбуждающей электромагнитной волны, прилетевшей из лазера, и поля поверхностной поляритонной волны, возбужденной лазером где-то в другой точке на расстоянии R_{xy} и затем добежавшей вдоль поверхности до рассматриваемого элемента среды. Ближайшие точки поверхности “помогают” возбуждению поляритонного поля в облучаемой точке, поскольку фаза $k_{xy}(\omega)R_{xy}$ дошедшей от них поляритонной волны совпадает с фазой лазерной волны, возбуждающей колебания зарядов в данной точке. По мере удаления от рассматриваемой точки вклад окружающих элементарных источников в возбуждающее эту точку электромагнитное поле становится деструктивным за счет задержки распространения поверхностной поляритонной волны, в то время как число таких источников (определяемое фактором $2\pi R_{xy}dR_{xy}$ при интегрировании по площади) явно превышает число непосредственных соседей, у которых фаза задержки $k_{xy}(\omega)R_{xy} \approx 0$.

Между тем, сформированные нами “частицы” на поверхности поляритон-активной среды не являются частицами в полном смысле слова. Микрочастицы соли NaCl, запрессованные в порошок нерезонансного вещества, демонстрируют заметное изменение характера спектров поглощения по сравнению с объемными образцами соли [33]. В нашем же случае “частицы” карбида кремния окружены снизу таким же карбидом кремния, способным резонансно забирать энергию решеточных колебаний, хотя бы и без распространения этих возбуждений вдоль поверхности в качестве поляритонных волн. В силу этого мы не наблюдаем заметного изменения в спектре отклика исследуемых нами “озер” открытого SiC на поверхности образца. Возможно, этим же объясняется то, что нам не удалось на поверхности SiC достичь кратности усиления амплитуды поля, ожидаемой [10, 34] из “добротности” среды $\frac{\epsilon'}{\epsilon''} = \frac{\omega_T}{2\Gamma} = \frac{794 \text{ см}^{-1}}{2.6 \text{ см}^{-1}}$.

Суммируя вышеизложенное, можно отметить, что предпринятая в среднем ИК-диапазоне ($\lambda = 10.68 \text{ мкм}$) по аналогии с плазмоникой попытка

обнаружить вблизи поляритон-активной частицы заметное увеличение амплитуды (и следовательно, интенсивности) локального поля по сравнению с амплитудой возбуждающего поляритонные колебания поля внешней волны оказалась успешной, применительно к *фононным* колебаниям зарядов в среде. Подбор среды (ω_T, ω_L) позволит создать подобные “концентраторы” электромагнитного поля для разных диапазонов длин волн, а подбор формы “микрочастиц”, открытых на поверхности полярного кристалла для воздействия излучения накачки, может сделать эти оптические элементы чувствительными к направлению падающей световой волны.

Один из авторов пользуется случаем поблагодарить Ф. Кайлманна как учителя в области ASNOМ и Р. Хилленбранда за помощь в обучении.

1. Л. Новотный, Б. Хехт, *Основы нанооптики*, Физматлит (2009).
2. L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*, Cambridge University Press (2006).
3. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*, Springer-Verlag – Berlin – Heidelberg (1988).
4. S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer (2007).
5. A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, and A. A. Maradudin, *Phys. Rep.* **408**, 131 (2005).
6. K. Huang, *Proc. of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **208**, 352 (1951).
7. D. L. Mills and E. Burstein, *Rep. Prog. Phys.* **37**, 817 (1974).
8. P. Drude, *Annalen der Physik* **306**, 566 (1900).
9. L. Novotny and N. van Hulst, *Nature Photonics* **5**, 83 (2011).
10. V. Amendola, R. Pilot, M. Frascioni, O. M. Maragó, and M. A. Iatí, *J. Physics: Condensed Matter* **29**, 203002 (2017).
11. B. L. Darby, B. Auguie, M. Meyer, A. E. Pantoja, and E. C. Le Ru, *Nature Photonics* **10**, 40 (2015).
12. P. Anger, P. Bharadwaj, and L. Novotny, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 113002 (2006).
13. K. Kneipp, Y. Wang, H. Kneipp, L. T. Perelman, I. Itzkan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1667 (1997).
14. Y. Sasaki, Y. Nishina, M. Sato, and K. Okamura, *Phys. Rev. B* **40**, 1762 (1989).
15. R. Geick, C. H. Perry, and G. Rupprecht, *Phys. Rev.* **146**, 543 (1966).
16. D. Lockwood, G. Yu, and N. Rowell, *Solid State Commun.* **136**, 404 (2005).
17. F. Zehnhausern, M. P. O’Boyle, and H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **65**(13), 1623 (1994).

18. Д. В. Казанцев, Е. В. Кузнецов, С. В. Тимофеев, А. В. Шелаев, Е. А. Казанцева, *Успехи физических наук* **187**, 277 (2017).
19. F. Zehnhausern, Y. Martin, and K. Wickramasinghe, *Science* **269**, 1083 (1995).
20. R. Hillenbrand and F. Keilmann, *Spiegeloptik für nahfeldoptische Messungen*. DE Pat. DE200, 610, 002, 461.
21. J. S. Batchelder and M. A. Taubenblatt, *Appl. Phys. Lett.* **55**, 215 (1989).
22. F. Keilmann and R. Hillenbrand, *Phil. Trans. R. Soc. London A* **362**, 787 (2004).
23. D. Kazantsev, arXiv:1307.2563 (2013).
24. D. Kazantsev and H. Ryssel, *Appl. Physics A* **113**, 27 (2013).
25. D. V. Kazantsev and H. Ryssel, *Modern Instrumentation* **2**, 33 (2013).
26. Y. J. Chabal and A. J. Sievers, *Appl. Phys. Lett.* **32**, 90 (1978).
27. Д. В. Казанцев, *Письма в ЖЭТФ* **83**, 380 (2006).
28. J. R. Krenn, A. Dereux, J. C. Weeber, E. Bourillot, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, G. Schider, W. Gotschy, A. Leitner, F. R. Aussenegg, and C. Girard, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2590 (1999).
29. C. Girard and A. Dereux, *Rep. Rep. Prog. Phys.* **59**, 657 (1996).
30. D. Bimberg, R. Blachnik, P. Dean et al. (Collaboration), *Physik Der Elemente Der IV. Gruppe und Der III-V Verbindungen*, Springer (1981).
31. F. Bechstedt, P. Kaeckell, A. Zywietz, K. Karch, B. Adolph, K. Tenelsen, and J. Furthmueller, *Phys. Stat. Sol. (b)* **202**, 35 (1997).
32. H. Harima, S. Nakashima, and T. Uemura, *J. Appl. Phys. AIP* **78**, 1996 (1995).
33. R. Ruppini and R. Englman, *Rep. Prog. Phys.* **33**, 149 (1970).
34. M. G. Blaber, M. D. Arnold, and M. J. Ford, *J. Physics: Condensed Matter* **22**, 143201 (2010).