Письма в ЖЭТФ, том 81, вып. 5, с. 278 – 282 © 2005 г. 10 марта

Условия применимости дипольного приближения в задачах рассеяния поверхностных плазмон-поляритонов

А. Б. Евлюхин[1], *С. И. Божевольный*[+]

Владимирский государственный университет, 600000 Владимир, Россия

[+]*Aalborg University, DK-9220 Aalborg Ø, Denmark*

Поступила в редакцию 21 января 2005 г.

Методом тензорной функции Грина волнового уравнения, явно получены условия, при которых дипольное приближение является достаточным в задачах рассеяния поверхностных электромагнитных волн оптического диапазона (поверхностных плазмон-поляритонов) малой сферической частицей. В качестве основного требования дипольного приближения использовалась независимость электрического поля внутри рассеивателя от пространственных координат. Условия получены в виде неравенств, включающих волновое число, материальные параметры системы, размер рассеивателя и его положение относительно поверхности, на которой возбуждаются плазмон-поляритоны.

PACS: 02.70.–c, 03.65.Nk, 71.36.+c, 78.68.+m

В настоящее время существует большой интерес к исследованию свойств поверхностных электромагнитных волн оптического диапазона, которые возникают на границе раздела между диэлектриком и металлом и спадают по экспоненциальному закону при отходе от границы [1, 2]. В создании этих волн доминирующее участие принимают свободные носители заряда металла, поэтому их часто называют поверхностными плазмон-поляритонами (ППП). Особый повышенный интерес обусловлен главным образом двумя причинами. Во-первых, с изобретением и развитием микроскопии ближнего оптического поля появилась возможность прямого наблюдения ППП непосредственно у поверхности, что открыло путь не только к исследованию их свойств, но и к прямому влиянию на процесс их возбуждения. Во-вторых, значительный прогресс в нанотехнологиях сделал возможным для исследователей контролировать процесс распространения и рассеяния ППП на масштабах длин, значительно меньших, чем длина их затухания, вызванного поглощением в металле. В связи с этим появилась возможность для экспериментального изучения на основе свойств ППП способов концентрации и направленного распространения световой энергии в микросистемах с размерами порядка длины световой волны или даже меньше.

Достижение явного прорыва в этом направлении предполагает большой объем теоретических исследований, в основе которых стоит изучение процессов рассеяния ППП различными микрообъектами. Данная задача представляет собой весьма сложную проблему, которая уже в относительно простом случае одного симметричного рассеивателя требует применения численного счета [3]. Поэтому при изучении многократного рассеяния ППП в системах с большим числом рассеивателей приходится прибегать к ряду аппроксимаций, которые позволяют описывать процесс рассеяния ППП отдельным объектом относительно простым способом. Одним из таких подходов является применение дипольного приближения. Более того, фактически только в рамках данного приближения было выполнено численное моделирование распространения ППП в различных поверхностных структурах с конечным числом рассеивателей [4 – 7]. Однако до настоящего времени существуют неясные вопросы, связанные с границей применимости данного приближением в задачах рассеяния ППП. Часто в качестве достаточных условий приводятся два ограничения на размер рассеивателя. Во-первых, рассеиватель должен быть значительно меньше, чем длина волны внешнего поля, и, во-вторых, расстояние от него до поверхности с ППП должно значительно превышать его размер. Эти два условия являются оправданными, но, как будет показано в данной работе, в общем случае они должны быть расширены рядом дополнительных требований, которые включают в себя соотношения между материальными и конфигурационными параметрами системы.

Для изучения процесса рассеяния ППП мы применили метод тензорной функции Грина волнового уравнения [8]. Преимуществом данного метода является то, что он позволяет изначально рассматри-

[1]e-mail: a.b.evlyukhin@mail.ru

вать различные каналы рассеяния ППП независимо друг от друга. Такая возможность следует из полученного недавно [9] представления тензора Грина системы из двух полупространств, заполненных металлом и диэлектриком с плоской границей раздела, в виде суммы нескольких слагаемых, каждое из которых описывает возбуждение в системе электромагнитных полей определенного типа: квазистатического или ближнего электрического поля; поля поверхностных плазмон-поляритонов; поперечных электромагнитных волн, распространяющихся от металлической поверхности в дальнюю волновую зону. Следует заметить, что разложение тензора Грина на указанные слагаемые можно строго осуществить только, если пренебречь поглощением электромагнитной энергией в металле [9]. Поэтому в данной работе мы будем считать, что диэлектрические проницаемости системы без рассеивателя являются реальными величинами. Такое ограничение оправдано тем, что для благородных металлов, которые в основном используются в экспериментах с поверхностными электромагнитными волнами на частотах видимого или инфракрасного света, длина затухания ППП на несколько порядков больше, чем их длина волны [2]. И поэтому при изучении свойств ППП на масштабах длин, соизмеримых с их длиной волны, затухание несущественно.

Рассмотрим плоскую поверхностную электромагнитную волну частоты ω, распространяющуюся вдоль плоской границы раздела между двумя полупространствами, заполненными металлом и диэлектриком с диэлектрическими проницаемостями ε_m и ε_d, соответственно. При этом $(-\varepsilon_m) > \varepsilon_d$, именно при таком соотношении возможно существование ППП. Волна ППП рассеивается макроскопической сферической частицей, расположенной над границей раздела со стороны диэлектрика. Радиус частицы – R_p, ее диэлектрическая проницаемость – ε_p. Положение центра частицы задается радиус-вектором $\mathbf{r}_p$ с координатами $(0,0,z_p)$ в декартовой системе координат, где z_p – расстояние между центром частицы и границей раздела металл–диэлектрик. Полное электромагнитное поле в системе удовлетворяет уравнениям Максвелла:

$$\nabla\times\mathbf{E} = i\omega\mu_0\mathbf{H}\,; \tag{1}$$

$$\nabla\times\mathbf{H} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon\mathbf{E} - -i\omega\Theta(R_p-|\mathbf{r}-\mathbf{r}_p|)\mathbf{P}, \tag{2}$$

где $\mathbf{E}$ и $\mathbf{H}$ – напряженности электрического и магнитного полей, соответственно; μ_0 – магнитная постоянная вакуума; ε_0 – диэлектрическая постоянная вакуума; $\Theta(R_p-|\mathbf{r}-\mathbf{r}_p|)$ – ступенчатая функция Хевисайда; $\mathbf{P}=\varepsilon_0(\varepsilon_p-\varepsilon_d)\mathbf{E}(\mathbf{r})$ – вектор поляризации частицы; ε – диэлектрическая проницаемость системы без рассеивателя. Используя метод тензорной функции Грина, полное электрическое поле вне частицы на расстояниях $|\mathbf{r}-\mathbf{r}_p|\gg R_p$ в дипольном приближении определим уравнением

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \frac{k_0^2}{\varepsilon_0}\,\hat{G}(\mathbf{r},\mathbf{r}_p)\mathbf{p}\,, \tag{3}$$

где $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ – напряженность электрического поля внешней (падающей) волны ППП; k_0 – волновое число в вакууме; $\hat{G}(\mathbf{r},\mathbf{r}')$ – тензор Грина физической системы без рассеивателя;

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0(\varepsilon_p-\varepsilon_d)\int\limits_{V_p}\mathbf{E}(\mathbf{r})d\mathbf{r} \tag{4}$$

является электрическим дипольным моментом частицы; $V_p = 4\pi R_p/3$ – объем частицы. Дипольное приближение описывает основной вклад в рассеяние, если электрическое поле внутри частицы является однородным. В этом случае дипольный момент $\mathbf{p}=\varepsilon_0(\varepsilon_p-\varepsilon)V_p\mathbf{E}(\mathbf{r}_p)$, где для определенности мы записали электрическое поле в центре частицы.

Определим электрическое поле внутри частицы и установим условия, когда его можно считать однородным. Для этого рассмотрим интегральное уравнение типа уравнения Липпманна–Швингера для определения электрического поля внутри частицы:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \frac{k_0^2}{\varepsilon_0}\int\limits_{V_p}\hat{G}(\mathbf{r},\mathbf{r}')\mathbf{P}(\mathbf{r}')d\mathbf{r}'\,, \tag{5}$$

где $\mathbf{r}\in V_p$. Представим тензор Грина в виде суммы нескольких частей, ответственных за возбуждение в системе электромагнитных полей определенного типа [9]:

$$\hat{G}(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \hat{G}^0_q(\mathbf{r},\mathbf{r}') + \hat{G}^s_q(\mathbf{r},\mathbf{r}') + \hat{G}^0_T(\mathbf{r},\mathbf{r}') + +\hat{G}^s_T(\mathbf{r},\mathbf{r}') + \hat{G}_{\mathrm{SPP}}(\mathbf{r},\mathbf{r}')\,, \tag{6}$$

где первых два слагаемых $\hat{G}^0_q+\hat{G}^s_q$ описывают возбуждение квазистатического поля в системе, причем второе слагаемое учитывает влияние границы раздела двух сред; следующие два слагаемых $\hat{G}^0_T+G^s_T$ описывают возбуждение в системе поперечных полей с учетом границы раздела металл–диэлектрик; $\hat{G}_{\mathrm{SPP}}$ учитывает возбуждение в системе ППП.

Наш подход основан на известном решении задачи рассеяния электромагнитных волн малой частицей в однородном пространстве (теория Рэлея) [10].

В этом случае электрическое дипольное приближение дает основной вклад в рассеянное поле, если при определении электрического поля внутри частицы можно ограничиться решением квазистатической задачи. Тогда поле в частице является однородным, и ее электрический дипольный момент вычисляется особенно просто. В терминах функции Грина это означает, что при решении уравнения Липпманна–Швингера внутри частицы и в ближней зоне внешнее поле $\mathbf{E}_0$ можно считать однородным, а функцию Грина достаточно аппроксимировать ее квазистатической частью $\hat{G}^0_q(\mathbf{r},\mathbf{r}')$. В этих условиях электрическое поле в частице определяется выражением

$$\mathbf{E} = \frac{3\varepsilon_h}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_h}\mathbf{E}_0 \, , \tag{7}$$

где ε_h – диэлектрическая проницаемость однородной среды. Если частица расположена возле плоской границы раздела двух сред, то для того, чтобы квазистатическое электрическое поле в частице можно было считать однородным, необходимо выполнение дополнительного условия: расстояние между частицей и границей раздела должно быть значительно больше размера частицы ($R_p \ll z_p$). Действительно, в этом случае квазистатическое влияние границы раздела на поле в частице можно учесть методом изображений, вводя некоторый эффективный электрический диполь, то есть изображение диполя, соответствующего частице. Электрическое поле, создаваемое изображением в месте расположения частицы, является практически однородным из-за выполнения условия $R_p \ll z_p$. Тогда можно считать, что на частицу действуют внешние однородные электрические поля, а в этих условиях поле в частице является также однородным. Таким образом, дипольное приближение будет достаточным при описании рассеяния ППП малой частицей, если можно ограничиться квазистатической аппроксимацией функции Грина (6) при определении поля в частице и если $R_p \ll z_p$ и $R_p k_s \ll 1$ ($k_s = k_0\sqrt{\varepsilon_d\varepsilon_m/(\varepsilon_d+\varepsilon_m)}$ – волновое число ППП).

Выразим из уравнения (5) поле в частице, предполагая, что оно не зависит от пространственных координат:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_p) \approx \frac{3\varepsilon_d}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_d}\left[\hat{\mathbf{I}} - \frac{k_0^2}{\varepsilon_0}\,\alpha_0\left\{\hat{G}^s_q(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}_p) + \right.\right.$$
$$+\frac{1}{V_p}\int\limits_{V_p}\left[\hat{G}^0_T(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}) + \hat{G}^s_T(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}) \; + \right.$$
$$\left.\left.\left. + \;\hat{G}_{\mathrm{SPP}}(\mathbf{r}_p,\mathbf{r})\right]\,d\mathbf{r}\right\}\right]^{-1}\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_p)\, , \tag{8}$$

где $\hat{\mathbf{I}}$ – единичный тензор (3×3); $\alpha_0 = 3\varepsilon_0\varepsilon_d V_p(\varepsilon_p - \varepsilon_d)/(\varepsilon_p + 2\varepsilon_d)$ – квазистатическая поляризуемость малой сферической частицы. В (8) для определенности мы записали поле в центре частицы, а также воспользовались аппроксимацией

$$\int\limits_{V_p}\hat{G}^s_q(\mathbf{r}_p,\mathbf{r})\,d\mathbf{r} \approx V_p\hat{G}^s_q(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}_p) \tag{9}$$

при условии $R_p \ll z_p$. Тензор $\hat{G}^s_q(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}_p)$ может быть получен электростатическим методом изображений [6, 11]; он имеет вид

$$\hat{G}^s_q(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}_p) = \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}\frac{1}{4\pi k_0^2\varepsilon_r z_p^3}\left(\frac{1}{8}\,\hat{x}\hat{x} + \frac{1}{8}\hat{y}\hat{y} + \frac{1}{4}\,\hat{z}\hat{z}\right), \tag{10}$$

где $\hat{x}$, $\hat{y}$ и $\hat{z}$ – орты выбранной декартовой системы координат. Из (8) видно, что для однородного пространства в квазистатическом пределе это выражение переходит в (7).

Для выяснения условий, когда можно ограничиться только квазистатической частью функции Грина при определении поля в частице, необходимо оценить интегралы в (8) и сравнить их с квазистатическим вкладом. Для оценки вклада поперечных полей удержим только первый член разложения $\hat{G}^0_T(\mathbf{r}_p,\mathbf{r})$ по малому параметру $R_p k_d \ll 1$ ($k_d = k_0\sqrt{\varepsilon_d}$) [12, 13], тогда получаем:

$$\int\limits_{V_p}\hat{G}^0_T(\mathbf{r}_p,\;\mathbf{r})\,d\mathbf{r} \approx \int\limits_{V_p}\frac{\hat{\mathbf{I}} + \hat{R}\hat{R}}{8\pi R}\,d\mathbf{r} = \frac{R_p^2}{3}\,\hat{\mathbf{I}}\, , \tag{11}$$

где $R = |\mathbf{r}_p - \mathbf{r}|$; $\hat{R} = \mathbf{R}/R$. При оценке интеграла от $\hat{G}_{\mathrm{SPP}}(\mathbf{r}_p,\mathbf{r})$ в (8) воспользуемся тем, что данный тензор не имеет особенности при $\mathbf{r} = \mathbf{r}_p$, и поэтому для малой частицы его можно вынести за знак интеграла в этой точке, тогда, используя представление для $\hat{G}_{\mathrm{SPP}}(\mathbf{r},\mathbf{r}')$ из [9], получим

$$\int\limits_{V_p}\hat{G}_{\mathrm{SPP}}(\mathbf{r}_p,\;\mathbf{r})\,d\mathbf{r} \approx \frac{V_p k_s a}{(1-a^2)(1-a^4)}\times$$
$$\times\left[i\frac{e^{-ak_s 2z_p}}{2} - \mathrm{V.p.}\int\limits_0^\infty\frac{x^2e^{-xak_s2z_p}}{\pi(1-x^2)}dx\right]\times$$
$$\times\left(\frac{a^2}{2}[\hat{x}\hat{x} + \hat{y}\hat{y}] + \hat{z}\hat{z}\right)\, , \tag{12}$$

где $a = \sqrt{-\varepsilon_d/\varepsilon_m}$; V.p. означает то, что интеграл от полюсного выражения понимается в смысле его главного значения. Используя приведенные выражения (10), (11) и (12), получаем из (8) условия, когда квазистатическая аппроксимация тензора Грина является определяющей. Таким образом, имеем два условия, связанные с поперечными волнами,

$$\left|1-\frac{(1+a^2)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)R_p^3}{8(1-a^2)(\varepsilon_p+2\varepsilon_d)z_p^3}\right| \gg (k_dR_p)^2\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right|, \tag{13}$$

$$\left|1-\frac{(1+a^2)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)R_p^3}{4(1-a^2)(\varepsilon_p+2\varepsilon_d)z_p^3}\right| \gg (k_dR_p)^2\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right|, \tag{14}$$

и два условия, связанные с полем плазмон-поляритонов,

$$\left|1-\frac{(1+a^2)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{8(1-a^2)(\varepsilon_p+2\varepsilon_d)}\left(\frac{R_p}{z_p}\right)^3\right| \gg$$
$$\gg \frac{3}{2}k_0^3V_p\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right|\frac{a^3\varepsilon_d^{3/2}F(ak_sz_p)}{(1-a^2)^{3/2}(1-a^4)}, \tag{15}$$

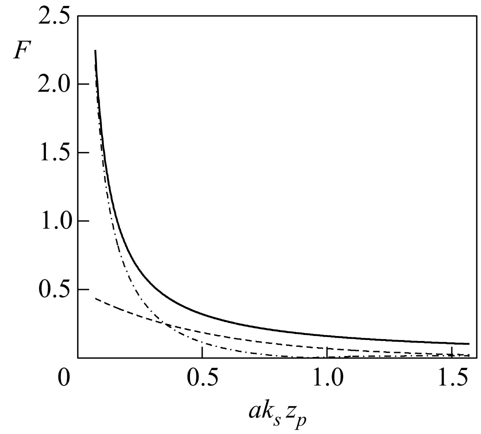
$$\left|1-\frac{(1+a^2)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{4(1-a^2)(\varepsilon_p+2\varepsilon_d)}\left(\frac{R_p}{z_p}\right)^3\right| \gg$$
$$\gg 3k_0^3V_p\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right|\frac{a\varepsilon_d^{3/2}F(ak_sz_p)}{(1-a^2)^{3/2}(1-a^4)}. \tag{16}$$

Здесь мы для компактности ввели функцию $F(ak_sz_p)$, определяемую выражением

$$F = m\frac{e^{-2ak_sz_p}}{2} + n\left|\text{V.p.}\int_0^\infty \frac{x^2e^{-x2ak_sz_p}dx}{\pi(1-x^2)}\right|, \tag{17}$$

где два слагаемых происходят от выражения в квадратных скобках уравнения (12). При этом $m=1$ и $n=0$, если величина первого слагаемого равна или превышает величину второго слагаемого, и $m=0$ и $n=1$ в противоположном случае. Для оценок в важном практическом случае $ak_sz_p \lesssim 1$ можно воспользоваться простой аналитической аппроксимацией $F \simeq 1/[2\pi ak_sz_p]$ (см. рисунок). Заметим, что величина $1/ak_s$ характеризует глубину проникновения поверхностных плазмон-поляритонов в диэлектрик.

Таким образом, кроме условий $R_p \ll z_p$ и $R_pk_s \ll 1$, мы получили дополнительные условия (13)–(16), которые позволяют считать электрическое поле внутри рассеивателя почти однородным. Заметим, что в этом приближении роль магнитного поля в рассеивателе не учитывается изначально. Если подставить полное электрическое поле из уравнения (8), удерживая только квазистатические члены, в выражение для электрического дипольного момента, то



Функциональная зависимость двух слагаемых в выражении (17), определяющих функцию $F(ak_sz_p)$: штриховая кривая представляет первое слагаемое; штрихпунктирная кривая – второе слагаемое; сплошная кривая представляет аппроксимацию функции $F(ak_sz_p)$ при $ak_sz_p \lesssim 1$

получим известное представление для тензора поляризуемости $\hat{\alpha}_d$ сферической частицы, расположенной у плоской границы раздела двух сред:

$$\hat{\alpha}_d = \alpha_0\left(\hat{\mathbf{I}} - k_0^2\frac{\alpha_0}{\varepsilon_0}\cdot\hat{G}_q^s(\mathbf{r}_p,\mathbf{r}_p)\right)^{-1}. \tag{18}$$

Условия (13)–(16) могут быть значительно упрощены для случая, когда роль границы раздела металл–диэлектрик в определении поляризуемости рассеивателя пренебрежимо мала, так что выполняется условие

$$\left|\frac{(1+a^2)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{4(1-a^2)(\varepsilon_p+2\varepsilon_d)}\left(\frac{R_p}{z_p}\right)^3\right| \ll 1. \tag{19}$$

Тогда условия (13)–(16) сводятся только к двум неравенствам:

$$(k_dR_p)^2\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right| \ll 1; \tag{20}$$

$$3k_0^3V_p\left|\frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{\varepsilon_p+2\varepsilon_d}\right|\frac{a\varepsilon_d^{3/2}F(ak_sz_p)}{(1-a^2)^{3/2}(1-a^4)} \ll 1. \tag{21}$$

Следует заметить, что в этом случае условие $R_p \ll z_p$ является излишним.

В экспериментах по рассеянию поверхностных плазмон-поляритонов рассеиватель часто изготавливается из того же металла (например, золото или серебро), что и подложка с ППП ($\varepsilon_p=\varepsilon_m$), при этом диэлектрик над подложкой представляет собой воздух ($\varepsilon_d=1$). В заключение статьи оценим величину радиуса рассеивателя R_p для подобных материальных систем, удовлетворяющую требованиям дипольного приближения. Пусть длина световой волны, возбуждающей ППП, равна 800 нм, тогда мнимая часть диэлектрической проницаемости золота значительно меньше модуля вещественной части, поэтому для оценок ее величиной можно пренебречь и записать $\varepsilon_m = \varepsilon_p \approx -26$ [14]. Заметим, что в этом случае условие $R_p \ll z_p$ может быть заменено условием (19). Предположим, что $z_p = 50$ нм, тогда доминирующими условиями являются неравенства (19) и (21), из которых получаем $R_p \ll 74$ нм и $R_p \ll 71$ нм соответственно. С увеличением расстояния между рассеивателем и поверхностью с ППП определяющими становятся условия $R_p \ll 1/k_s$ и (20) ($R_p \ll 120$ нм для $z_p = 200$ нм). Так как диэлектрическая проницаемость серебра на выбранной длине волны мало отличается от диэлектрической проницаемости золота, то полученные ограничения на R_p будут иметь силу и для случая, когда золото заменяется серебром.

1. *Поверхностные поляритоны*, под ред. В. М. Аграновича, Д. Л. Миллса, М.: Наука, 1985. (*Surface Polaritons*, Eds. V. M. Agranovich and D. L. Mills, North-Holland, Amsterdam, 1982.)
2. W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, Nature **424**, 824 (2003).
3. A. V. Shchegrov, I. V. Novikov, and A. A. Maradudin, Phys. Rev. Lett. **78**, 4269 (1997).
4. S. I. Bozhevolnyi and V. Coello, Phys. Rev. **B58**, 10899 (1998).
5. S. Bozhevolnyi and V. Volkov, Opt. Commun. **198**, 241 (2001).
6. T. Søndergaard and S. I. Bozhevolnyi, Phys. Rev. **B67**, 165405 (2003).
7. V. Coello, T. Søndergaard, and S. I. Bozhevolnyi, Opt. Commun. **240**, 345 (2004).
8. В. И. Дмитриев и Е. В. Захаров, *Интегральные уравнения в краевых задачах электродинамики*, М.: Изд-во Московского университета, 1987.
9. T. Søndergaard and S. I. Bozhevolnyi, Phys. Rev. **B69**, 045422 (2004).
10. Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1992.
11. А. Б. Евлюхин и Е. В. Евлюхина, Опт. ж. **71**, 58 (2004). (A. B. Evlyukhin and E. V. Evlyukhina, J. Opt. Techn. **71**, 384 (2004)).
12. O. Keller, Phys. Rep. **268**, 85 (1996).
13. O. Keller, J. Opt. Soc. Am. **B16**, 835 (1999).
14. E. Palik, *Handbook of Optical Constant of Solids*, Academic, San Diego, CA, 1985.